

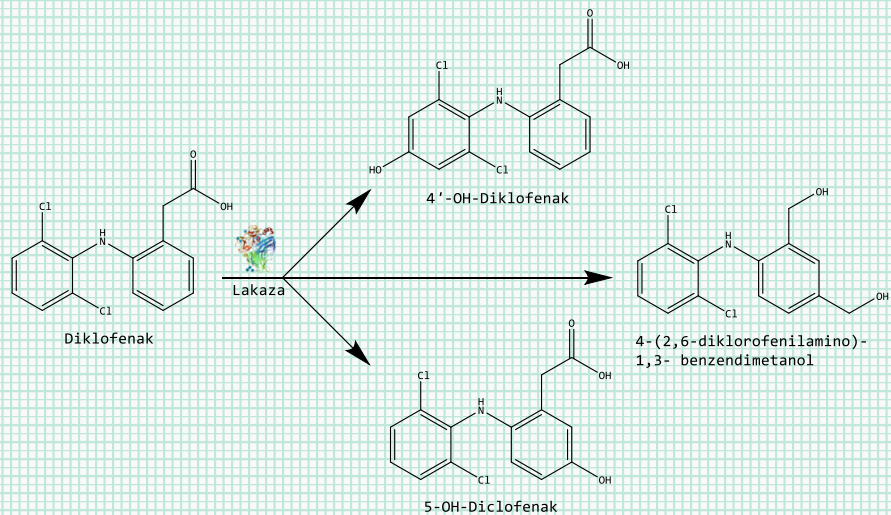
PRIMJENA HIBRIDNOG MAGNETSKOG BIOKATALIZATORA NANOCVJETOLIKE STRUKTURE U REAKCIJI RAZGRADNJE DIKLOFENAKA

Dino Skendrović, Ana Vrsalović Presečki, Ena Polović, Tina Škrgatić, Anamarija Verović
University of Zagreb, Faculty of Chemical Engineering and Technology, Marulićev trg 19, 10000 Zagreb, Croatia

Teorijska
pozadina

Diklofenak pripada skupini nesteroidnih protuupalnih lijekova (NSAID) i široko se primjenjuje zbog svojih protuupalnih i antipiretičkih svojstava. Zbog intenzivne i globalno rasprostranjene primjene, čija se godišnja potrošnja procjenjuje na približno 940 tona, tragovi diklofenaka danas se mogu pronaći u različitim vodenim sustavima, uključujući površinske i pitke vode. Učinkovitost uklanjanja diklofenaka u uređajima za pročišćavanje otpadnih voda vrlo je promjenjiva te se kreće od gotovo potpunog izostanka uklanjanja do približno 80 %, dok se najčešće vrijednosti nalaze između 21 i 40 %.

Oksidativni enzimi lakaze pokazale su se obećavajućima u razgradnji širokog spektra farmaceutskih spojeva, uključujući antibiotike, analgetike i hormone, putem ekološki prihvatljivih katalitičkih procesa. Međutim, praktična primjena slobodne lakaze ograničena je njezinom niskom stabilnošću, osjetljivošću na sastojke otpadnih voda i nedostatkom mogućnosti ponovne upotrebe. Imobilizirane lakaze pokazuju veću stabilnost, aktivnost u širem rasponu pH i temperatura, bolju mogućnost ponovne upotrebe te zadržavaju značajnu aktivnost i nakon više operacijskih ciklusa i duljeg skladištenja.



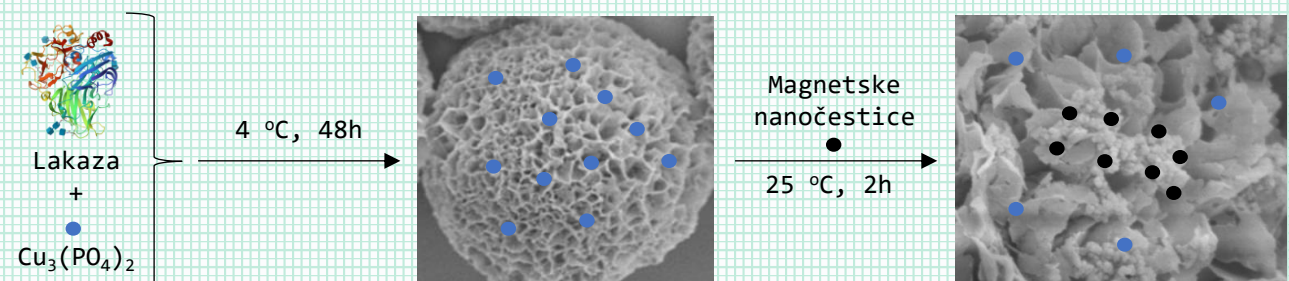
Slika 1. Produkti razgradnje diklofenaka.

Metode

Eksperimenti

U ovom radu istražena je priprema i primjena kemijski modificiranog hibridnog magnetskog biokatalizatora nanocvjetolike strukture temeljenog na lakazi. Pripravljen je CuII-lakaza/Fe₃O₄ hibridni magnetski nanocvijet s ciljem povećanja stabilnosti enzima, omogućavanja jednostavnijeg izdvajanja iz reakcijske smjese te njegove višekratne primjene u procesima razgradnje farmaceutskih onečišćivala. Kao modelno onečišćivalo korišten je diklofenak, nesteroidni protuupalni lijek koji se često pojavljuje u otpadnim i površinskim vodama.

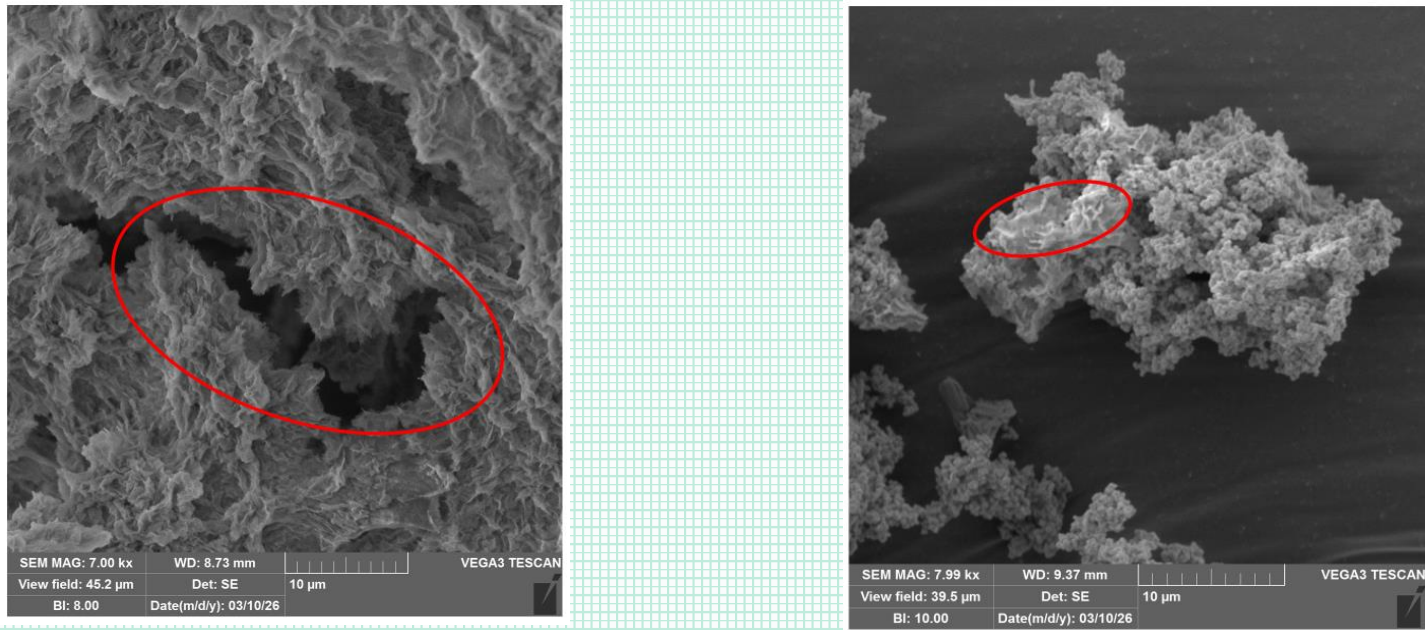
Sinteza sustava uključivala je pripravu enzim-bakar nanocvjetova, funkcionalizaciju magnetskih nanočestica Fe₃O₄ te njihovo povezivanje u hibridni magnetski sustav. Dobiveni biokatalizatori karakterizirani su SEM i EDS analizama, kojima je potvrđeno formiranje cvjetolike strukture i prisutnost magnetskih nanočestica u sustavu. Razgradnja diklofenaka praćena je HPLC metodom.



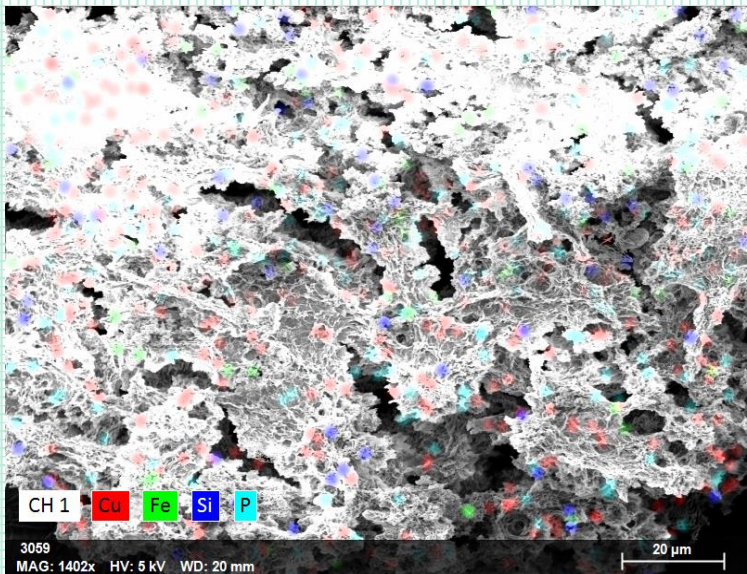
Slika 2. Shema sinteze enzim-bakar nanocvjetova.

SEM i EDS

Rezultati



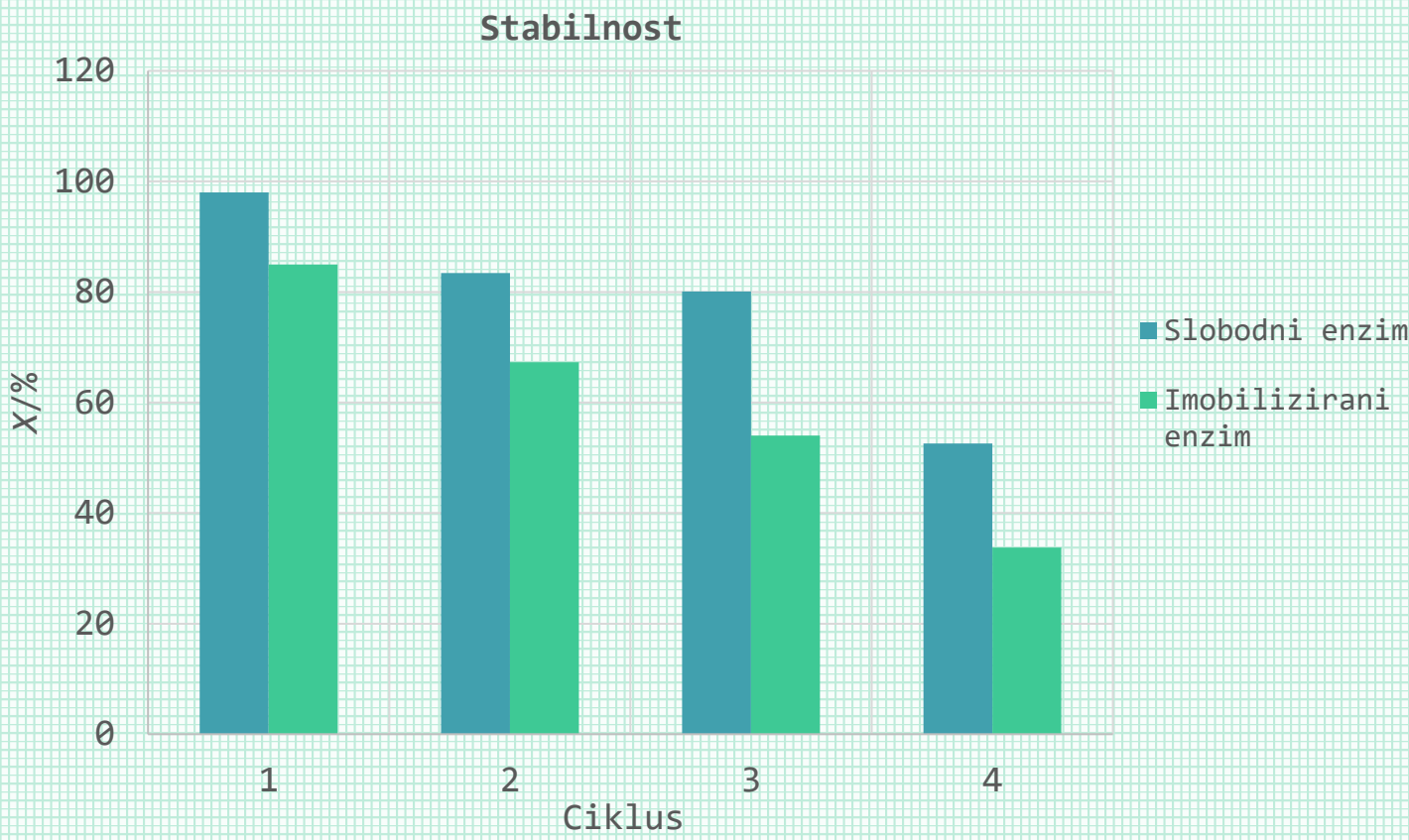
Slika 3. SEM snimak a) enzim-bakar nanonocvijeta i b) hibridnog magnetskog nanocvijeta



Slika 4. EDS analiza hibridnog magnetskog nanocvijeta

DCF razgradnja

Rezultati



Slika 5. Usporedba konverzija slobodnog i imobiliziranog enzima kroz četiri ciklusa reakcije

Istaknuto

Zaključak

- Preko SEM analize enzim-bakar nanocvijeta uočava se formiranje struktura nepravilnog oblika, pri čemu se na pojedinim dijelovima mogu razlikovati karakteristične cvjetolike tvorbe sastavljene od slojevito raspoređenih latica
- Dodavanjem magnetskih nanočestica, mogu se uočiti značajne promjene u površinskoj morfologiji uzrokovane adsorpcijom magnetskih nanočestica
- EDS analizom hibridnog magnetskog nanocvijeta uz bakar i fosfor, mogu se uočiti silicij i željezo, kao pokazatelji uspješnog vezanja
- Iz prikazanih rezultata stabilnosti, vidljivo je da slobodni enzim pokazuje manji pad konverzije kroz sva četiri ciklusa u usporedbi s imobiliziranim enzimom, odnosno zadržava veću katalitičku aktivnost i pokazuje bolju stabilnost u uvjetima realnog reakcijskog sustava
- Dobiveni rezultati ukazuju na to da u ovom radu nije postignuto očekivano poboljšanje operacijske stabilnosti imobilizacijom enzima, ali istovremeno potvrđuju potencijal hibridnih magnetskih nanocvjetova za primjenu u biokatalitičkim procesima obrade farmaceutskih onečišćivala

Reference:
V. Analitka, I. Benzen, Pure Appl. Chem. 64 (1992) 42.
M. Fernández-Fernández, M. Ángeles Sanromán, D. Moldes, Biotechno. Adv. 31 (2013) 1808-1825.
M. Fu, J. Xing, Z. Ge, Sci. Tot. Env. 651 (2019) 2857-2865.
D. Chmelova, M. Ondrejevič, S. Miertuš, Life 14 (2024) 230.