

STRESZCZENIE

W niniejszej rozprawie doktorskiej otrzymano nanocząstki magnetytu (Fe_3O_4) pokryte różnymi polimerami: chitozanem, pochodnymi chitozanu, kolagenem i poli[bromkiem *N,N*-dimetylo-*N*-benzylo-*N*-(etylo metakrylanu) amonu]. Podczas syntezy zastosowano wybrane czynniki sieciujące, takie jak: aldehyd glutarowy, epichlorohydrynę oraz kwas kwadratowy.

Chitozan poddano chemicznej modyfikacji, w celu zwiększenia ilości pierwszorzędowych grup aminowych, otrzymując $\text{CS-Et}(\text{NH}_2)$, $\text{CS-Et}(\text{NH}_2)_2$, $\text{CS-Et}(\text{NH}_2)_3$ oraz $\text{CS-But}(\text{NH}_2)$, $\text{CS-But}(\text{NH}_2)_2$, $\text{CS-But}(\text{NH}_2)_3$.

Strukturę chemiczną polimerów oraz ich układów z nanocząstkami, z uwzględnieniem określenia ilości grup aminowych, badano metodami spektroskopowymi (ATR-FTIR, ^{13}C NMR, UV-ViS), natomiast obecność rdzenia magnetytowego potwierdzono metodą rentgenografii dyfrakcyjnej (XRD). Wielkość i polidispersję nanocząstek Fe_3O_4 wyznaczono metodą dynamicznego rozpraszania światła (DLS) oraz transmisyjnej mikroskopii elektronowej (TEM). Analiza TEM posłużyła również do zbadania morfologii uzyskanych próbek.

Określono stabilność termiczną nanocząstek oraz polimerów stabilizujących ich powierzchnię, stosując analizę termograwimetryczną (TGA-DTA). Analiza termograwimetryczna posłużyła również do oznaczenia zawartości wody w badanych nanomateriałach. Scharakteryzowano właściwości fizykochemiczne (w tym hydrofilowość) próbek różnego typu (proszku, filmów).

Otrzymane nanocząstki magnetyczne wykorzystano do chemicznej immobilizacji lipazy z grzybów *Candida rugosa*. Immobilizacja możliwa była dzięki obecności w polimerach reaktywnych grup zdolnych do wiązania chemicznego enzymu i fizycznego oddziaływania z enzymem. Skuteczność immobilizacji oznaczono metodą Bradforda. Zbadano również aktywność katalityczną unieruchomionego na magnetycznych nanocząstkach enzymu oraz jego stabilność operacyjną.

Stwierdzono, że skuteczność immobilizacji enzymu na nanocząstkach magnetycznych zależy od rodzaju zastosowanej powłoki i jej hydrofilowości, długości łańcucha bocznego, ilości pierwszorzędowych grup aminowych, rodzaju czynnika sieciującego, pola powierzchni właściwej oraz warunków suszenia.

Otrzymane nanomateriały, ze względu na obecność grup funkcyjnych na powierzchni, charakteryzują się reaktywnością, ale również stabilnością termiczną, co umożliwia ich wykorzystanie jako nośniki katalizatorów, przydatne w zarówno w naukach biomedycznych, jak i syntezie organicznej.

Dorota Chełmińska-Dudkiewicz

ABSTRACT

In present doctoral thesis, magnetite nanoparticles (Fe_3O_4) coated with different polymers such as: chitosan, chitosan derivatives, collagen, and poly[*N*-benzyl-2-(methacryloxy)-*N,N*-dimethylethanaminium bromide] (PQ) have been obtained. Three types of cross-linkers: glutaraldehyde, epichlorohydrine, and squaric acid have been used.

Chemical modification of chitosan have been performed to give polymeric material with surface rich of amino groups distanced from chitosan chain: CS-Et(NH₂), CS-Et(NH₂)₂, CS-Et(NH₂)₃ and CS-But(NH₂), CS-But(NH₂)₂, CS-But(NH₂)₃.

The chemical structure of the obtained systems and the amount of the primary amino groups available on the magnetite nanoparticles were investigated by spectroscopy (ATR-FTIR, ¹³C NMR, UV-Vis). The presence of magnetite core was confirmed by X-ray diffraction (XRD). The size and polydispersity of Fe_3O_4 nanoparticles was determined by Dynamic Light Scattering method (DLS) and Transmission Electron Microscopy (TEM). Morphology was investigated also by using TEM.

Moreover, thermal stability of the obtained systems and the content of water in the nanomaterials have been examined by using thermogravimetry (TGA-DTA).

The physicochemical properties (such as hydrophilicity) of the various types of samples (powder, films) have been determined.

All of the obtained magnetic nanoparticles were applied for chemical immobilization of lipase from *Candida rugosa*. The covalent bonding between the prepared nanoparticles and the carboxylic group of enzyme has taken place. The amount of immobilized lipase adsorbed onto the magnetic nanoparticles was determined using the Bradford method. The enzymatic activity and operational stability were also investigated.

It has been found that the immobilization of enzyme onto magnetic nanoparticles depends on the type of coating and cross-linkers, surface hydrophilicity, length of the side chain, amount of the primary amino groups in glucoside ring, surface area and drying conditions.

Due to the presence of functional groups, the obtained systems are characterized by reactivity but also thermal stability, which allows to use them as catalytic supports in biomedicine and organic synthesis.

Dorota Chełmińska-Dudkiewicz