

Molekuláris lenyomatú polimerek analitikai jellemzése és alkalmazása

Pap Tímea

tézisfüzet

Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi Egyetem

Általános és Analitikai Kémia Tanszék

2004

Témavezető: Dr. Horvai György

Bevezetés

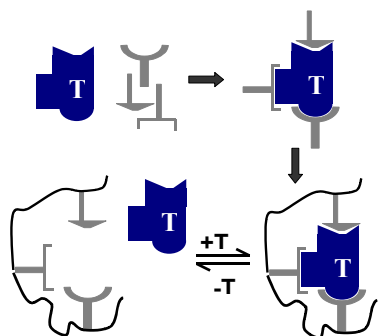
Doktori munkám során egy Európai Unió Projekt célkitűzéseire igazodóan molekuláris lenyomatú polimerek vizsgálatát és a vizsgálati eredményeket felhasználva molekuláris felismerésen alapuló analitikai eljárások kidolgozását tűztem ki célul.

Molekuláris lenyomatú polimerek (MIP)

A molekuláris lenyomatképzés egy adott molekulára (templát) szelektív kötőhely kialakítását jelenti polimer mátrixban. A templát molekulához olyan monomereket szükséges adni, melyek képesek kölcsönhatásokat kialakítani a templát funkciós csoportjaival. A kialakult monomer(ek)-templát komplex szerkezetét keresztköti hozzáadása után polimerizációval rögzítjük. A kész polimerből a templátot eltávolítva a funkciós csoportjainak és térállásának megfelelő kötőhely (üreg) marad vissza, ahová képes szelektíven visszakötődni (ábra).

Tebutilazin lenyomatot tartalmazó polimer segítségével különböző oldószereket és körülményeket vizsgálva kapcsolt

szilárd fázisú extrakciós eljárást dolgoztam ki terbutilazin meghatározására nagy térfogatú felszíni vízmintából.



Fenitoin lenyomatot tartalmazó polimert elúciós kromatográfiával teszteltem hasonló szerkezetű, hatású vagy hidrofóbicitású molekulák segítségével és a kapott eredményekből következtettem a szelektív kötőhely struktúrájára és kialakulására.

A fenitoinra imprintelt polimeren mért fenitoin adszorpciós izoterma és a kromatográfiás elúciós csúcsok alapján arra a következtetésre jutottam, hogy a MIP-eknél az elnyúló csúcsalak nagyrészt a nemlineáris izoterma miatt alakul ki.

Fenitoin és atrazin együttes adszorpcióját vizsgálva először mutattam ki két különböző molekula egymás adszorbeálódását kölcsönösen segítő hatását MIP-eken.

TÉZISEK

1. Kidolgoztam egy terbutilazin szelektív dúsítására optimált mintaelőkészítési eljárást melyben először alkalmaztam C18-as extrakciós lemez és molekuláris lenyomatot tartalmazó töltetű szilárd fázisú extrakciós oszlop kapcsolását nagy térfogatú felszíni vízminta feldolgozására.
2. Terbutilazinra szelektív polimer szilárd fázisú extrakciós körülmények között végzett vizsgálatával megállapítottam, hogy az acetonitrilben tapasztalható H-hidas kölcsönhatáson alapuló szelektív kötődés kis mennyiségű víz hozzáadásával megszűnik, majd nagy víztartalomnál átalakul hidrofób kölcsönhatáson alapuló szelektív kötődéssé. HPLC mérésekkel ezt a jelenséget a fenitoinra imprintelt polimeren is megfigyeltem.
3. Fenitoinnal rokon szerkezetű valamint fenitoinhoz hasonló hidrofóbicitású molekulák retenciós tényezőit acetonitril eluensben összehasonlítva megállapítottam, hogy a fenitoin difenil csoportja a MIP-re történő adszorpció során nem lép számottevő kölcsönhatásba a felülettel, a molekula a hidantoin gyűrűn lévő csoportjaival kapcsolódik a kötőhelyre. Lényeges viszont, hogy az adszorpció során a difenil csoport térkitöltésével ne gátolja az adszorpciós

helyhez megfelelő irányból való hozzáférést. A molekuláris lenyomatok alakhúségi követelményének ez az interpretációja a korábbiaktól eltér és kiküszöböli azok ellentmondásait.

4. Bizonyítottam, hogy a MIP alapú homológ kompetitív assay kalibrációs görbéje kiszámítható a MIP adszorpciós izotermájából és a felhasznált reagensek mennyiségéből. Ennek alapján a mérési módszer egyetlen izoterma mérés után már számításokkal optimálható (tetszőleges célfüggvény szerint), még hozzá anélkül, hogy az izotermát bármilyen kémiai modell szerint kellene interpretálni.
5. Módosítottam az adszorpciós megoszlás mérésére szolgáló ún. batch adszorpciós módszert. Az új módszerrel kevesebb mérés szükséges azonos minőségű eredmények eléréséhez, különösen két adszorbeálódó anyag együttes vizsgálata esetén.
6. Szimultán kétkomponensű adszorpciós mérésekkel bizonyítottam, hogy a MIP-eken és kontroll polimerjeiken nem csak a mások által észlelt versengő, hanem az eddig különböző komponensekre ki nem mutatott egymást erősítő adszorpció is előfordulhat.

Közlemények:

1. **Tímea Pap, Viola Horváth, Antal Tolokán, George Horvai, Börje Sellergren**
Effect of solvents on the selectivity of terbutylazine imprinted polymer sorbents used in solid-phase extraction
Journal of Chromatography A, 973 (2002) 1-12
2. **Tímea Pap, George Horvai**
Characterization of the selectivity of a phenytoin imprinted polymer
Journal of Chromatography A, 1034 (2004) 99-107
3. **Tímea Pap, George Horvai**
Binding assays with molecularly imprinted polymers – why do they work?
Journal of Chromatography B, 804/1 (2004) 167-172