ACS Catal封面：再造超级塑料食客

作者：writer 来源：爱科学

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/17447.html

本文仅供学习交流之用，版权归原作者所有，请勿用于商业用途！

ACS Catal封面：再造超级塑料食客。



ACS Catalysis封面。最有效PET水解酶结构机制解析及性能提升改造。 受访者供图

全世界都在为处理塑料污染苦苦挣扎。

在众多塑料制品中，生产和使用最多的是聚对苯二甲酸乙二酯（简称PET塑料），目前全球年产量已近七千万吨。

能否发展绿色温和的PET塑料酶降解方法，并回收水解产物用于PET再生，一直是国际上苦苦探寻的难题。

近日，湖北大学生命科学学院、省部共建生物催化与酶工程国家重点实验室教授郭瑞庭和陈纯琪团队在前期工作基础之上，改造了一种目前已知最有效的PET水解酶，从而获得活力更高、热稳定性更佳的PET新水解酶，为发展闭环式PET生物降解平台提供了一个有利的渠道。

2022年2月18日，该研究成果在线发表于《美国化学学会会刊—催化》（ACS Catalysis），并被选为封面文章。

降解塑料能像洗衣服一样简单吗？

塑料制品的出现给人类的生活带来了很大的便利，人们在享受塑料便利的同时，也在承受着塑料污染对自然环境和人类健康的巨大负面影响。

大多数矿泉水瓶的原料就是PET塑料。然而，PET的回收率仅有10%左右，大部分PET废弃物以土地掩埋或焚烧法来处理——掩埋法无法彻底消除PET，焚烧则会产生温室气体排放，并造成二次污染。

利用化学法进行PET的降解与循环再利用的过程中需要加入强酸、强碱或有机溶剂，并在高温高压下反应，这样容易造成二次污染，且降解产物很难循环再利用。郭瑞庭告诉《中国科学报》，解决PET塑料降解酶的难题，是他和团队成员多年来坚持做的一件事。

2017年，该团队在国际上首次解析了一种天然的PET塑料降解酶IsPETase的晶体结构（Nature Communications, 2017）；2021年他们又首次发现影响IsPETase水解PET的关键结构，并证实这是自然界中的微生物为了以塑料为食改造古老的角质酶从而进化出的PET水解酶（Nature Reviews Chemistry, 2020; Nature Catalysis, 2021）。

在此基础上，他们继续进行着获得最有效PET水解酶的研究。

然而，要使PET达到最好的降解效果，需要酶能够在PET玻璃态的温度范围（65-70°C）下发挥作用。论文作者、湖北大学张丽兰告诉《中国科学报》，这是因为PET塑料大部分是有序的网状致密结构，在较高温度下，PET结构才会趋向于松散无序的状态，有利于酶的进入并发生降解反应。

如果能提高PET水解酶的耐热性，一些PET塑料就可能通过用酶‘清洗’来回收利用，就像用洗涤剂洗掉脏衣服上的污渍一样。陈纯琪说。

对塑料食客二次改造

陈纯琪注意到了2020年法国研究团队在Nature期刊封面报道的一个耐热角质酶ICCG。

张丽兰介绍，ICCG其实是科学家由一种耐热角质酶LCC改造而来。2012年日本研究团队在树叶堆肥的宏基因组测序中发现了LCC，并发现它是已知所有PET水解酶中活力最高的酶之一，最适反应温度为65°C。

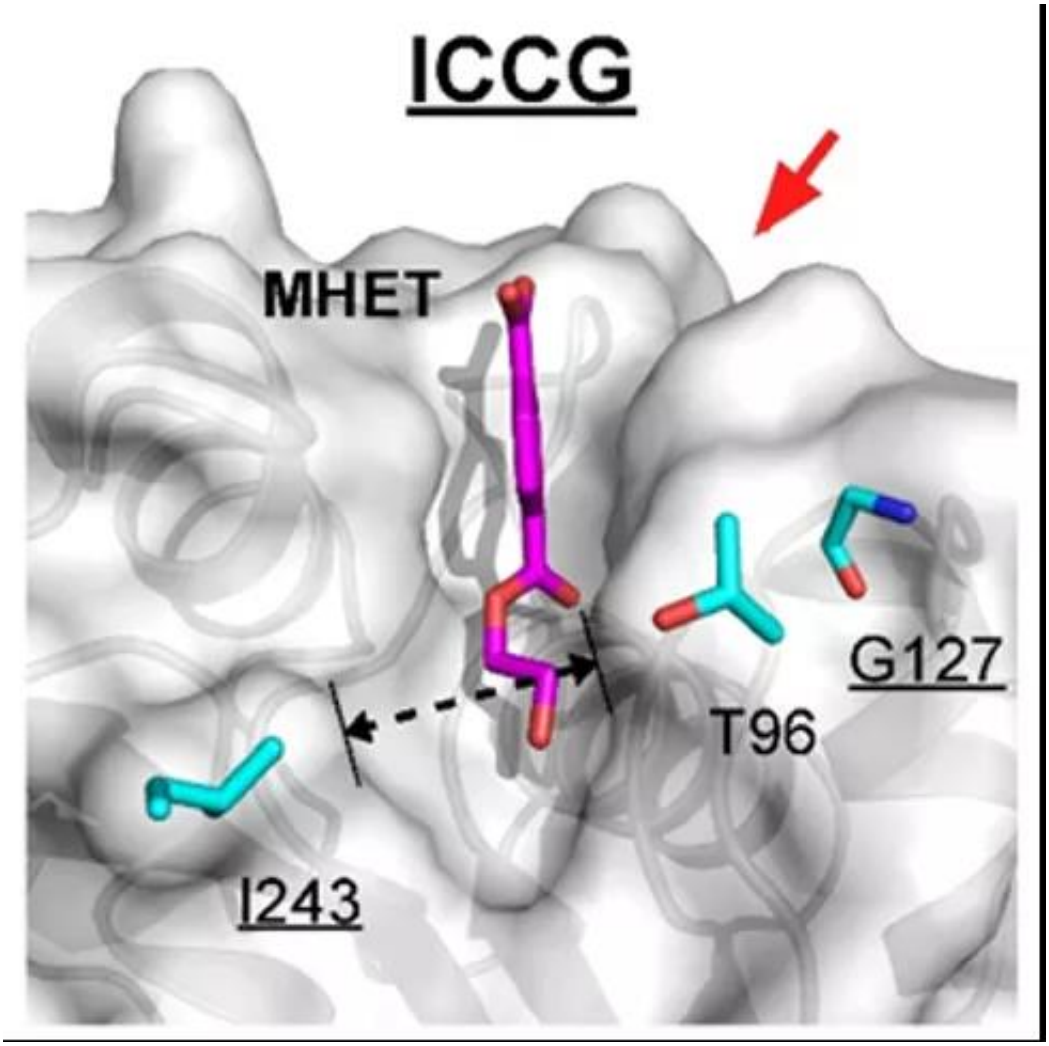
为了提升LCC的效率，法国研究团队引进了四个氨基酸的突变，并将之命名为ICCG。ICCG耐热性提升，在72°C反应10小时可以降解90%无定形态或者预处理的PET塑料，生成的TPA单体可以被用于重新合成符合商业标准的PET塑料，也就是说可以实现循环再利用。

ICCG为何不同于其它PET水解酶，水解活力和耐热性都异常突出呢？如果能了解ICCG独特的作用机制，我们也有可能从中得到启发，获得具有更高热稳定性的PET水解酶。陈纯琪说。

于是，该团队充分发挥了在结构生物学和理性设计及改造方面的研究专长，使用结构生物学的手段解析了ICCG突变体与底物MHET（PET预处理后获得的一种降解产物）的复合体结构。

论文共同第一作者、湖北大学副教授杨云云介绍，结构解析发现，MHET结合在酶表面的活性凹槽内，ICCG四个突变氨基酸中，有两个位于MHET的结合位点附近，第三个位于酶的表面，与MHET结合的活性凹槽邻近，而第四个突变氨基酸I243的存在扩大了底物结合通道，这可能增加了酶与PET的结合能力。

这个特征也揭示了I234突变体可能具有更高的PET水解活性。郭瑞庭进一步解释道。



ICCG与底物结合凹槽。 受访者供图

内外兼修终成超级食客

有了复合体结构作为基础，我们接下来的ICCG耐热性改造就可以做到有的放矢。陈纯琪解释说。为了增加耐热性，他们采取内外兼修的策略改造ICCG：在内增加酶内部的疏水相互作用；在外增加蛋白质表面的脯氨酸等相互作用。

由此，他们共选择并构建了27个突变体，其中有7个突变体在90℃时比ICCG具有更高的活性。进一步将这7个突变体组合突变，筛选获得5个活性明显提升的三突变体。

最后优中选优，他们得到了三种活性更高、变性温度比ICCG高出三度（98-98.9℃vs. 95.2℃）的突变体——RIP、KIP和KRP。

为了进一步探索突变体热稳定性增加的分子机制，结构生物学的手段被再次运用。陈纯琪说，结果显示，突变分别在酶的外壳、中层、核心产生了稳定结构的效果，我们猜测是这些个别效应叠加起来增进了蛋白质整体的耐热性。

在文章投稿的过程中，两位审稿人一致评论这是一个对该领域影响重大的工作，指出该团队继先前报导了第一个来源于能够分解PET塑料的细菌的PET水解酶的复合体结构，本篇论文中又再度报导了活力最强的PET水解酶与底物的复合体结构。一方面证明了该团队结构解析的能力，另一方面，这些复合体结构信息对于将来发展PET生物降解、改造PET水解酶，具有极大的重要性。

郭瑞庭说，这项成果更加清晰地阐述了PET水解酶的分子机制，同时也证明了增加耐热性对PET生物降解的重要性。

不过，郭瑞庭也坦言，目前PET塑料的处理主要依靠掩埋和焚烧，化学降解方法因为产生二次污染，目前也尚未采用，而生物降解方法则受到成本限制等原因尚未投诸使用。未来如果能降低酶的生产成本、提高反应温度所需的电费、回收分离的成本等，并配套上完善的降解工艺，才能真正实现应用。(来源：中国科学报李晨)

相关论文信息：https://doi.org/10.1021/acscatal.1c05800

版权声明：凡本网注明来源：中国科学报、科学网、科学新闻杂志的所有作品，网站转载，请在正文上方注明来源和作者，且不得对内容作实质性改动；微信公众号、头条号等新媒体平台，转载请联系授权。邮箱：shouquan@stimes.cn。
作者：郭瑞庭等 来源：《美国化学学会会刊—催化》

更多 科学进展 请访问 https://www.iikx.com/news/progress/

本文版权归原作者所有，请勿用于商业用途，爱科学iikx.com转发