Otto-Jaag-Gewässerschutzpreis 2023 und ETH-Medaille für Charlotte Bopp

21. November 2023 | Claudia Carle
Themen: Institutionelles

Für ihre Dissertation wird die Umweltwissenschaftlerin Charlotte Bopp gleich doppelt ausgezeichnet: Am ETH-Tag vom 18. November erhielt sie den Otto-Jaag-Gewässerschutzpreis. Im Januar wird sie auch noch die ETH-Medaille entgegennehmen. Ihre Arbeit leistet einen wichtigen Beitrag zum Verständnis des biologischen Abbaus von organischen Schadstoffen in der Umwelt.

Mit dem Otto-Jaag-Gewässerschutzpreis zeichnet die ETH Zürich hervorragende Master- und Doktorarbeiten auf dem Gebiet des Gewässerschutzes und der Gewässerkunde aus. Charlotte Bopp durfte diese Auszeichnung am ETH-Tag vom 18. November für ihre Dissertation zum Thema «The role of oxygen uncoupling by Rieske non-heme iron dioxygenases in the biodegradation of aromatic contaminants" entgegennehmen. Im Januar wird ihr auch noch die ETH-Medaille verliehen, welche die ETH Zürich für herausragende Master- und Doktorarbeiten vergibt.

Ineffiziente Oxidation der Schadstoffe

Als Doktorandin in der Abteilung Umweltchemie des Wasserforschungsinstitutes Eawag nahm Charlotte Bopp den biologischen Abbau schwer abbaubarer, organischer Schadstoffe unter die Lupe. Gelangen solche aromatischen Verbindungen, die zum Beispiel in Pestiziden, Medikamenten oder Sprengstoffen vorkommen, in Böden und Gewässer, können Mikroorganismen diese dank einer Gruppe von Enzymen mit dem Namen «Rieske Oxygenasen» oxidieren und so abbauen. Bopp konzentrierte sich in ihrer Arbeit auf die Untergruppe der Sprengstoff-abbauenden Enzyme und wollte wissen, wie effizient diese arbeiten. Ihre Ergebnisse stellen den Enzymen kein gutes Zeugnis aus. Statt den Sauerstoff direkt auf die Schadstoffe zu übertragen, bilden die Enzyme zuerst eine besonders

reaktive Form des Sauerstoffs. Nur rund die Hälfte davon reagiert anschliessend aber tatsächlich mit den Schadstoffen, der andere Teil des reaktionsfreudigen Sauerstoffs oxidiert alle möglichen anderen Substanzen in den Mikroorganismen. Das kann zum Nachteil der Mikroorganismen sein und diese schädigen.

Die Neuen sind effizienter

Aber dieser Prozess kann auch Vorteile mit sich bringen, wie Bopp zeigen konnte: Kommen die Mikroorganismen mit neuen Schadstoffen in Kontakt, für deren Abbau ihr bestehendes Enzymspektrum nicht geeignet ist, können sie sich anpassen. Der reaktive Sauerstoff führt bei den Enzymen zu punktuellen Mutationen, wodurch sich einzelne Aminosäuren innerhalb des Enzyms verändern und dadurch neue Enzyme entstehen. Einige davon arbeiten sogar effizienter als die ursprünglichen. Dank dieses evolutiven Prozesses können die Mikroorganismen nach einiger Zeit die neuen Schadstoffe verwerten.

«Mit ihrer Forschungsarbeit hat Charlotte Bopp Zusammenhänge beim biologischen Abbau von Schadstoffen aufgedeckt, die bisher nicht bekannt waren», sagt Thomas Hofstetter, Leiter der Abteilung Umweltchemie an der Eawag, der ihre Dissertation betreut hat. Bisher habe man rein auf Grund der Menge vorhandener Enzyme in der Umwelt auf die Kapazität zum Abbau von Schadstoffen geschlossen. «Die Resultate von Charlotte Bopp zeigen, dass man hier genauer hinschauen und die unterschiedliche Effizienz der Organismen und ihrer Enzyme mitberücksichtigen muss.»

Charlotte Bopp freut sich über die grosse Anerkennung ihrer Arbeit: «Wir haben uns getraut dahin zu schauen, wo diese Enzyme scheinbar versagen.» Dabei sei es genau die Fehlerhaftigkeit, die den Mikroorganismen auf lange Sicht erlaube mit vielfältigen Schadstoffen umzugehen. «Dieses Rätsel konnten wir nur aufklären dank der interdisziplinären Aufstellung der Eawag und einem Team, das als Ganzes diese Auszeichnungen verdient hat», erklärt Bopp. Seit Abschluss ihrer Dissertation arbeitet sie in der Industrie und beschäftigt sich mit der Weiterentwicklung von Ozonierungsprozessen in der Trink- und Abwasserbehandlung.

Titelbild: ETH-Rektor Günther Dissertori überreicht Charlotte Bopp den Otto-Jaag-Gewässerschutzpreis 2023 (Foto: ETH, Giulia Marthaler)

Originalpublikationen

.extbase-debugger-tree{position:relative}.extbase-debugger-tree input{position:absolute !important;float: none !important;top:0;left:0;height:14px;width:14px;margin:0 !important;cursor:pointer;opacity:0;z-index:2}.extbase-debugger-tree input~.extbase-debug-content{display:none}.extbase-debugger-tree .extbase-debug-header:before{position:relative;top:3px;content:"";padding:0;line-height:10px;height:12px;width:12px;text-align:center;margin:0 3px 0 0;background-image:url();display:inline-block}.extbase-debugger-tree

input:checked~.extbase-debug-content{display:inline}.extbase-debugger-tree input:checked~.
extbase-debug-header:before{background-image:url(
dmVyc2lvbj0iMS4wIiBlbmNvZGluZz0idXRmLTgiPz48c3ZnIHZlcnNpb249IjEuMSIgaWQ9IkViZ
W5lXzEiIHhtbG5zPSJodHRwOi8vd3d3LnczLm9yZy8yMDAwL3N2ZyIgeG1sbnM6eGxpbms9I
mh0dHA6Ly93d3cudzMub3JnLzE5OTkveGxpbmsiIHg9IjBweCIgeT0iMHB4IiB2aWV3Qm94P
SIwIDAgMTIgMTIiIHN0eWxlPSJlbmFibGUtYmFja2dyb3VuZDpuZXcgMCAwIDEyIDEyOyIgeG
1sOnNwYWNlPSJwcmVzZXJ2ZSI+PHN0eWxlIHR5cGU9InRleHQvY3NzIj4uc3Qwe2ZpbGw6
Izg4ODg4ODt9PC9zdHlsZT48cGF0aCBpZD0iQm9yZGVyIiBjbGFzcz0ic3QwIiBkPSJNMTEsM
TFIMFYwaDExVjExeiBNMTAsMUgxdjloOVYxeiIvPjxnIGlkPSJJbm5lciI+PHJlY3QgeD0iMiIgeT
0iNSIgY2xhc3M9InN0MCIgd2lkdGg9IjciIGhlaWdodD0iMSIvPjwvZz48L3N2Zz4=)}.extbase-
debugger{display:block;text-align:left;background:#2a2a2a;border:1px solid #2a2a2a;box-
shadow:0 3px 0 rgba(0,0,0,.5);color:#000;margin:20px;overflow:hidden;border-radius:4px}.ext
base-debugger-floating{position:relative;z-index:999}.extbase-debugger-
top{background:#444;font-size:12px;font-family:monospace;color:#f1f1f1;padding:6px
15px}.extbase-debugger-center{padding:0 15px;margin:15px 0;background-image:repeating-
linear-gradient(to bottom,transparent 0,transparent 20px,#252525 20px,#252525
40px)}.extbase-debugger-center,.extbase-debugger-center .extbase-debug-string,.extbase-
debugger-center a,.extbase-debugger-center p,.extbase-debugger-center pre,.extbase-
debugger-center strong{font-size:12px;font-weight:400;font-family:monospace;line-
height:20px;color:#f1f1f1}.extbase-debugger-center pre{background-color:transparent;margin:
0;padding:0;border:0;word-wrap:break-word;color:#999}.extbase-debugger-center .extbase-
debug-string{color:#ce9178;white-space:normal}.extbase-debugger-center .extbase-debug-
type{color:#569CD6;padding-right:4px}.extbase-debugger-center .extbase-debug-
unregistered{background-color:#dce1e8}.extbase-debugger-center .extbase-debug-
filtered,.extbase-debugger-center .extbase-debug-proxy,.extbase-debugger-center .extbase-
debug-ptype,.extbase-debugger-center .extbase-debug-visibility,.extbase-debugger-center
.extbase-debug-scope{color:#fff;font-size:10px;line-height:12px;padding:2px 4px;margin-
right:2px;position:relative;top:-1px}.extbase-debugger-center .extbase-debug-
scope{background-color:#497AA2}.extbase-debugger-center .extbase-debug-
ptype{background-color:#698747}.extbase-debugger-center .extbase-debug-
visibility{background-color:#698747}.extbase-debugger-center .extbase-debug-
dirty{background-color:#FFFFB6}.extbase-debugger-center .extbase-debug-
filtered{background-color:#4F4F4F}.extbase-debugger-center .extbase-debug-seeabove{text-
decoration:none;font-style:italic}.extbase-debugger-center .extbase-debug-
property{color:#f1f1f1}.extbase-debugger-center .extbase-debug-
closure{color:#9BA223;}Extbase Variable Dumparray(3 items) publications => '25093,24911'
(11 chars) libraryUrl => '' (0 chars) layout => '0' (1 chars) Extbase Variable Dumparray(2
items) 0 => Snowflake\Publications\Domain\Model\Publicationprototypepersistent entity
(uid=25093, pid=124) originalId => protected25093 (integer) authors =>
protected'Bopp, C. E.; Bernet, N. M.; Kohler, H.-P. E.;
Hofstetter, T. B.' (103 chars) title => protected'Elucidating the role of
O₂ uncoupling in the oxidative biodegrada
tion of organic contaminants by Rieske non-heme iron dioxygenases' (141 chars) journal
=> protected'ACS Environmental Au' (20 chars) year => protected2022 (integer) volume =>
protected2 (integer) issue => protected'5' (1 chars) startpage => protected'428' (3 chars)
otherpage => protected'440' (3 chars) categories => protected'non-heme ferrous iron
oxygenases; Rieske oxygenases; biocatalysis; O2 uncoup
ling; O2 activation; kinetic isotope effect; biodegradation' (135 chars) description =>

protected'Oxygenations of aromatic soil and water contaminants with molecular O₂ catalyzed by Rieske dioxygenases are frequent initial steps of biodegradation in natural and engineered environments. Many of these non-heme ferrous iron enzymes are known to be involved in contaminant metabolism, but the understanding of enzyme-substrate interactions that lead to successful biodegradation is still elusive. Here, we studied the mechanisms of O₂ activation and substrate hydroxylation of two nitroarene dioxygenases to evaluate enzyme- and substrate-specific factors that determine the efficiency of oxygenated product formation. Experiments in enzyme assays of 2-nitrotoluene dioxygenase (2NTDO) and nitrobenzene dioxygenase (NBDO) with methyl-, fluoro-, chloro-, and hydroxy-substituted nitroaromatic substrates reveal that typically 20-100% of the enzyme's activity involves unproductive paths of O₂ activation with generation of reactive oxygen species through so-called O₂ uncoupling. The ¹⁸O and ¹³C kinetic isotope effects of O₂ activation and nitroaromatic substrate hydroxylation, respectively, suggest that O₂ uncoupling occurs after generation of Fe^{III}-(hydro)peroxo species in the catalytic cycle. While 2NTDO hydroxylates ortho-substituted nitroaromatic substrates more efficiently, NBDO favors meta-substituted, presumably due to distinct active site residues of the two enzymes. Our data implies, however, that the O₂ uncoupling and hydroxylation activity cannot be assessed from simple structure-reactivity relationships. By quantifying O₂ uncoupling by Rieske dioxygenases, our work provides a mechanistic link between contaminant biodegradation, the generation of reactive oxygen species, and possible adaptation strategies of microorganisms to the exposure of new contaminants.' (1924 chars) serialnumber => protected'' (0 chars) doi => protected'10.1021/acsenvironau.2c00023' (28 chars) uid => protected25093 (integer) _localizedUid => protected25093 (integer)modified _languageUid => protectedNULL _versionedUid => protected25093 (integer)modified pid => protected124 (integer) 1 => Snowflake\Publications\Domain\Model\Publicationprototypepersistent entity (uid=24911, pid=124) originalId => protected24911 (integer) authors => protected'Pati, S. G.; Bopp, C. E.; Kohler, H.-P. E.; Hofstetter, T. B.' (101 chars) title => protected'Substrate-specific coupling of O₂ activation to hydroxylations of aromatic compounds by rieske non-heme iron dioxygenases' (132 chars) journal => protected'ACS Catalysis' (13 chars) year => protected2022 (integer) volume => protected12 (integer) issue => protected'11' (2 chars) startpage => protected'6444' (4 chars) otherpage => protected'6456' (4 chars) categories => protected'non-heme ferrous iron oxygenases; nitrobenzene dioxygenase; biocatalysis; O2 uncoupling; isotope effects; xenobiotics' (117 chars) description => protected'Rieske dioxygenases catalyze the initial steps in the hydroxylation of aromatic compounds and are critical for the metabolism of xenobiotic substances. Because substrates do not bind to the mononuclear non-heme Fe^{II} center, elementary steps leading to O₂ activation and substrate hydroxylation are difficult to delineate, thus making it challenging to rationalize divergent observations on enzyme mechanisms, reactivity, and substrate specificity. Here, we show for nitrobenzene dioxygenase, a Rieske dioxygenase capable of transforming nitroarenes to nitrite and substituted catechols,

that unproductive O₂ activation with the release of the unreacte
d substrate and reactive oxygen species represents an important path in the
catalytic cycle. Through correlation of O₂ uncoupling for a serie
s of substituted nitroaromatic compounds with ¹⁸O and <sup>13</su
p>C kinetic isotope effects of dissolved O₂ and aromatic substrat
es, respectively, we show that O₂ uncoupling occurs after the rat
e-limiting formation of Fe^{III}-(hydro)peroxo species from which su
bstrates are hydroxylated. Substituent effects on the extent of O<sub>2</sub
> uncoupling suggest that the positioning of the substrate in the active sit
e rather than the susceptibility of the substrate for attack by electrophili
c oxygen species is responsible for unproductive O₂ uncoupling. T
he proposed catalytic cycle provides a mechanistic basis for assessing the v
ery different efficiencies of substrate hydroxylation vs unproductive O<sub>
2</sub> activation and generation of reactive oxygen species in reactions ca
talyzed by Rieske dioxygenases.' (1703 chars) serialnumber => protected'2155-5435' (9 chars) doi => protected'10.1021/acscatal.2c00383' (24 chars) uid => protected24911 (integer) _localizedUid => protected24911 (integer)modified _languageUid => protectedNULL _versionedUid => protected24911 (integer)modified pid => protected124 (integer)
Bopp, C. E.; Bernet, N. M.; Kohler, H.-P. E.; Hofstetter, T. B. (2022) Elucidating the role of O2 uncoupling in the oxidative biodegradation of organic contaminants by Rieske non-heme iron dioxygenases, *ACS Environmental Au*, 2(5), 428-440, doi:10.1021/acsenvironau.2c00023, Institutional Repository

Pati, S. G.; Bopp, C. E.; Kohler, H.-P. E.; Hofstetter, T. B. (2022) Substrate-specific coupling of O2 activation to hydroxylations of aromatic compounds by rieske non-heme iron dioxygenases, *ACS Catalysis*, 12(11), 6444-6456, doi:10.1021/acscatal.2c00383, Institutional Repository

Links

Otto-Jaag-Gewässerschutzpreis

Projektseite “Enzyme Mechanisms and Kinetics of Organic Contaminant Oxygenation”

Kontakt

Thomas Hofstetter

Abteilungsleiter

Tel. +41 58 765 5076

thomas.hofstetter@eawag.ch

Claudia Carle
Wissenschaftsredaktorin
Tel. +41 58 765 5946
claudia.carle@eawag.ch

https://www.eawag.ch/de/info/portal/aktuelles/newsarchiv/archiv-detail/otto-jaag-gewaesserschutzpreis-2023-und-eth-medaille-fuer-charlotte-bopp