

Abstract

Wasserstoffbrücken-Bindungen sind für viele biophysikalische Prozesse von fundamentaler Bedeutung wie z.B. bei der Stabilisierung der doppelhelikalen Struktur der Desoxyribonukleinsäure (DNS) oder bei der Faltung von Proteinen, welche schlussendlich deren Biofunktionalität gewährleistet. Aber auch die physikalischen Eigenschaften des vermeintlich einfachsten biologisch relevanten Moleküls H_2O sind geprägt von intermolekularen H-Brücken. So zeigt Wasser eine Vielzahl an Anomalien [Fra72], darunter auch eine stark erhöhte Mikrowellenabsorption.

Bereits 1913 entwickelte der niederländische Physikochemiker Peter Debye die theoretischen Grundlagen zur Erklärung dieser „...anomalen Dispersion im Gebiete der langwelligen elektrischen Strahlung“ [Deb13], die zugrunde liegenden mikroskopischen Ursachen blieben allerdings ungeklärt. In den darauf folgenden fast 100 Jahren wurden eine Reihe von Modellen zur Beschreibung dieses Debye-Prozesses entwickelt, mit teilweise mehr oder weniger großem Erfolg [Böh14]. Kürzlich wurde jedoch die Idee transientser Ketten thematisiert, welche ein vielversprechendes Modell zur Erklärung dieses Mikrowellen-Phänomens bietet [El08, Gai10, Gai11].

In der vorliegenden Dissertation wird der Frage nachgegangen, ob die im Modell der transienten Ketten auftretenden linearen Wasserstoffbrücken-gebundenen Suprastrukturen tatsächlich existieren und wie deren thermische Entwicklung verläuft. Als Probensysteme bieten sich dafür u.a. Monohydroxy-Alkohole oder sekundäre Amide an, die einen ähnlich ausgeprägten Debye-Prozess wie Wasser aufweisen [Bas64, Gai11]. Aber auch andere Chemikalien wie etwa das amorphe Pharmazeutikum Ibuprofen mit einem nur schwachen Debye-Prozess [Brá08] eignen sich zum Studien dieser langsamen dielektrischen Relaxation und erlauben Rückschlüsse über dessen Universalität zu ziehen. Des Weiteren kann das Wasserstoffbrücken-Netzwerk durch binäre Mischsysteme destabilisierend beeinflusst werden, um eine konzentrationsabhängige Auslöschung des Debye-Prozesses zu erzielen.

Eine geeignete experimentelle Methode ist hier die Nahinfrarotspektroskopie, welche bei Detektion der kovalenten OH-Schwingung indirekt sensitiv auf Wasserstoffbrücken-Bindungen ist. Neben diesen statischen Messungen werden im Folgenden auch die Ergebnisse Kernmagnetischer Resonanz Experimente überwiegend an deuterierten Probensystemen gezeigt, die über einen breiten Frequenzbereich Zugang zu dynamischen Aspekten gewährleisten, um die Bewegung der Hydroxylgruppe zu untersuchen.