

Spektroskopische Charakterisierung Ru(II)-basierter Photosensibilisatoren im Hinblick auf deren photophysikalischen Eigenschaften bei Wechselwirkung mit DNS

DISSERTATION

(kumulativ)

zur Erlangung des akademischen Grades
doctor rerum naturalium (Dr. rer. nat.)



seit 1558

vorgelegt dem Rat
der Chemisch-Geowissenschaftlichen Fakultät
der Friedrich-Schiller-Universität Jena

von Diplom-Chemiker Christian Reichardt
geboren am 12. Juni 1990 in Greiz

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung.....	1
2	bpy₂RuippyH – Photophysik in Wasser.....	6
2.1	Lokalisierung des initial angeregten Zustandes.....	7
2.2	Ermittlung photoinduzierter Prozesse im ps-Zeitregime.....	9
2.2.1	Nachweis der Schwingungskühlung.....	11
2.2.2	Untersuchung der Pyren-Rotation mittels transientser Absorptionsspektroskopie...	12
2.2.3	Berechnung der Pyren-Drehung mittels TDDFT.....	14
2.2.4	Variation der Anregungswellenlänge.....	15
2.3	Ermittlung photoinduzierter Prozesse im μ s-Zeitregime.....	16
2.4	Einfluss der Koliganden auf die Photophysik.....	18
3	bpy₂RuippyH – Einfluss des pH-Wertes.....	21
3.1	Ermittlung der Protonierungsstufen.....	21
3.2	Photoinduzierte Prozesse der Baseform.....	23
3.3	Photoinduzierte Prozesse der Säureform.....	26
4	bpy₂RuippyH – Einfluss der Ionenstärke und von DNS-Interkalation.....	29
4.1	Untersuchung des stationären Zustandes.....	30
4.2	Aufbau des langlebigen angeregten Zustandes in verschiedenen Puffersystemen.....	31
4.3	Aufbau des langlebigen angeregten Zustandes in DNS.....	33
4.4	Abbau des langlebigen angeregten Zustandes.....	35
5	Ru(II)-Wirkstoffe mit selektiven Effekten.....	38
5.1	Selektive Einlagerung in die Mitochondrien.....	38
5.2	Selektives Ausbilden von Phototoxizität.....	40
6	Zusammenfassung.....	42
7	Summary.....	46

Literaturverzeichnis	50
Abkürzungsverzeichnis.....	55
Publikationen.....	57
[CR1] Ru(II) Dyad Derived from 2-(1-pyrenyl)1H-imidazo[4,5-f][1,10] phenanthroline: Versatile Photosensitizers for Photodynamic Applications	58
[CR2] Photophysics of Ru(II) Dyads Derived from Pyrenyl-Substitued Imidazo[4,5 f] [1,10]phenanthroline Ligands.....	82
[CR3] Influence of Protonation State on the Excited State Dynamics of a Photobiologically Active Ru(II) Dyad.....	104
[CR4] Excited State Dynamics of a Photobiologically Active Ru(II) Dyad in Biologically Relevant Environments	121
[CR5] Mitochondria Targeted Protein-Ruthenium Photosensitizer for Efficient Photodynamic Applications.....	162
Liste der Veröffentlichungen.....	186
Selbstständigkeitserklärung.....	188
Danksagung.....	189