

13. Fluide Membranen

Udo Seifert

Institut für Festkörperforschung, Theorie II
Forschungszentrum Jülich GmbH

Inhalt

1	Einführung	2
1.1	Biologische Membranen	2
1.2	Vesikel	4
1.3	Übersicht über die Vorlesung	7
2	Biegeenergie und Krümmungsmodell	8
2.1	Lokale Biegeenergie im klassischen Modell	8
2.2	Fast planare Membran und Persistenzlänge	9
2.3	Kopplung zwischen lokaler Dichte und Krümmung	10
3	Krümmungsenergie für Vesikel	13
3.1	Flächendifferenzmodell	13
3.2	Varianten des Krümmungsmodells: eine kurze Geschichte	15
3.3	Formen minimaler Energie	15
3.3.1	Formgleichung und stationäre Formen	16
3.3.2	Stationäre axialsymmetrische Formen	17
3.3.3	Kontinuierliche und diskontinuierliche Übergänge	18
3.3.4	Bemerkungen zur Stabilitätsanalyse	19
3.4	Phasendiagramm für $\alpha = 0$	20
4	Knospungsübergang	21

5 Vesikel nichtsphärischer Topologie	23
5.1 Konforme Invarianz der lokalen Krümmungsenergie	23
5.2 Willmore–Problem	24
5.3 Phasendiagramm für Tori	26
5.4 Konforme Diffusion für höheren Genus	27
6 Dynamik	30
6.1 Navier–Stokes–Gleichungen	30
6.2 Dynamik im klassischen Modell	32
6.3 Gekoppelte Dynamik	33
6.3.1 Kräftebalance in den Monoschichten	33
6.3.2 Dispersionsrelation	34
6.3.3 Dynamische Korrelationsfunktionen	36
6.3.4 Rechtfertigung der Stokesapproximation	36
7 Wechselwirkung und Adhäsion	37
7.1 Kräfte zwischen Membranen	37
7.2 Fast planare Membran im Potential	37
7.3 Sterische Abstoßung	38
8 Ausblick	39

1 Einführung

1.1 Biologische Membranen

Membranen unterteilen lebende Materie in getrennte Kompartimente.¹ Diese räumliche Organisation ist notwendige – wenn auch nicht hinreichende – Voraussetzung für das Phänomen „Leben“. So definiert die Plasmamembran das Innere einer Zelle und trennt es von der Umgebung. Sie dient dabei als äußerst selektive Barriere und gleichzeitig als aktives Transportelement, indem sie Konzentrationsunterschiede aber auch elektrische Gradienten zwischen innen und außen aufrecht erhält. Als Sensor der Zelle ermöglicht sie es ihr, auf externe Signale zu reagieren. Die in den Zellen liegenden Organellen sind ebenfalls durch Membranen mit ähnlich vielfältigen Funktionen begrenzt.

Trotz aller Differenzierung zwischen den Membranen beruht ihre Architektur, wie in Abb.1 skizziert, auf *einem* Bauprinzip, das immer zwei und manchmal drei Komponenten

¹Eine gute Übersicht über biologische Membranen bietet das Lehrbuch [1].

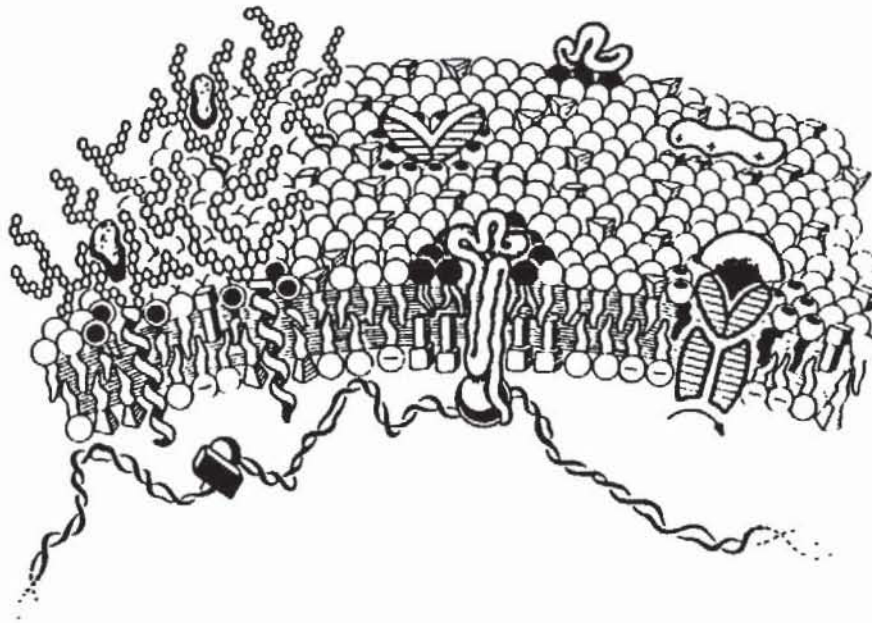


Abbildung 1: Cartoon einer Membran aus [2].

umfaßt. In eine dünne Doppelschicht aus Lipidmolekülen sind Membranproteine eingelagert, an denen wiederum ein Proteinnetzwerk verankert sein kann.

Die Lipidmoleküle sind Amphiphile mit polaren (hydrophilen) Kopfgruppen und unpolaren (hydrophoben) Kohlenwasserstoffketten als Schwänzen. Wegen dieser Zwitternatur ordnen sich die Lipidmoleküle in wässriger Umgebung in eine etwa 4 nm dicke Doppelschicht an, wobei sich die Ketten so gegenüberstehen, daß sie den Kontakt mit der wässriger Lösung vermeiden. Diese Doppelschicht ist fluide, das heißt die Lipidmoleküle diffundieren ständig innerhalb der beiden Monoschichten umher. Typischerweise besteht die Doppelschicht aus einem Gemisch mehrerer geladener und ungeladener Lipide mit unterschiedlichen Kopfgruppen und Kettenlängen, die asymmetrisch in den beiden Monoschichten verteilt sind.

Integrale Membranproteine durchspannen die Doppelschicht, während periphere Proteine oberflächlich an die Membran angelagert sind. Diese Proteine sind für viele spezifischen Funktionen der Membran wie zum Beispiel die Photosynthese oder den Transport von Stoffwechselprodukten zuständig.

Stützende und elastische Funktion hat ein an die Membran angelagertes Netzwerk, da die fluide Lipiddoppelschicht keine Scherkräfte aufnehmen kann. Bei der Membran von roten Blutzellen, zum Beispiel, besteht das auf der Innenseite der Zelle verankerte zweidimensionale Proteinnetzwerk aus Aktin- und Spektrinpolymeren mit einer Maschenweite von etwa 70 nm.

Diese Membranen sind einerseits sehr weich, wie das seit hundert Jahren bekannte, im Mikroskop sichtbare Flickern von Blutzellen beweist, das Mitte der siebziger Jahre als Ergebnis thermischer Bewegung erklärt wurde [3]. Andererseits ist die Blutzelle aber

auch äußerst stabil, denn sie wird im Laufe ihres Lebens unzählige Male durch feinste Kapillaren gequetscht. Dabei faltet sich die Zelle aus der bikonkaven Ruheform, die wie ein eingedellter, dicker Pfannkuchen aussieht, wie ein Omelett in der Mitte zusammen. Die dabei entstehenden Scherkräfte müssen vom Netzwerk aufgenommen werden. Drastische aber reversible Formumwandlungen der Ruheform lassen sich zum Beispiel auch durch Änderung der chemischen Bedingungen wie Zugabe des Energieträgers ATP oder Entzug von Cholesterol induzieren.

Durch diese wenigen Anmerkungen sollte klar werden, daß wir es bei der biologischen Membran mit einem faszinierenden, aber auch recht komplexen System zu tun haben. Aus der Perspektive des Physikers oder der Physikerin scheint es sinnvoll, diese Komplexität zu reduzieren, indem man sich zunächst auf *eine* Komponente der Membran, die Lipiddoppelschicht, konzentriert. Diese Reduktion führt zum Modellsystem des Vesikels.

1.2 Vesikel

Vesikel bestehen nur noch aus der Lipiddoppelschicht, ohne eingelagerte Proteine und ohne angehängtes Netzwerk. Vorzugsweise verwendet man dann auch nur noch eine Sorte Lipid, um ein möglichst gut definiertes einkomponentiges System zu haben. Diese Vesikel lassen sich herstellen, indem getrocknetes Lipid unter Wasserzugabe langsam gequollen wird. Mit etwas experimentellem Fingerspitzengefühl und Erfahrung erhält man so große ($10 - 50\mu\text{m}$) unilamellare Vesikel, die unter dem Mikroskop beobachtet und mit Videotechnologie aufgenommen und quantitativ ausgewertet werden können. Dabei zeigt sich, daß diese Systeme rein phänomenologisch betrachtet immer noch viele der Erscheinungen zeigen, wie sie auch an biologischen Systemen gefunden wurden, obwohl sie doch viel von deren Komplexität verloren haben.

Experimente an Vesikeln lassen sich in die (mindestens) drei Klassen Formumwandlungen, Flickerexperimente und Adhäsionsexperimente einteilen. Im Mikroskop fällt zunächst die große Vielfalt an Vesikelformen auf. Umwandlungen zwischen verschiedenen Vesikelformen werden induziert, indem die Temperatur oder die osmotischen Bedingungen geändert werden [4]. In Abb.2 sind zwei Sequenzen von Formen gezeigt, die durch Temperaturerhöhung erzeugt wurden. Die erste Sequenz zeigt den sogenannten Knospungsübergang, der dem biologischen Phänomen der Exozytose gleicht, bei dem die Zelle Teile ihres Innenraums durch die Zellmembran einschließt und dann abkapselt. Bei Lipidvesikeln kommt es jedoch typischerweise nicht zur topologischen Trennung der Knospe vom Muttervesikel. Die zweite Sequenz zeigt eine Formumwandlung, den Discozyt-Stomatozytübergang, der bei Blutzellen chemisch induziert werden kann.

Überraschend war vor zwei Jahren die Entdeckung von Formen nichtsphärischer Topologie [6, 7, 8], von denen einige in Abb.3 gezeigt werden. Typisch für die Abb.3d gezeigten

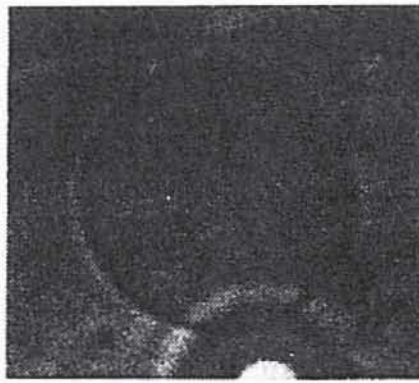
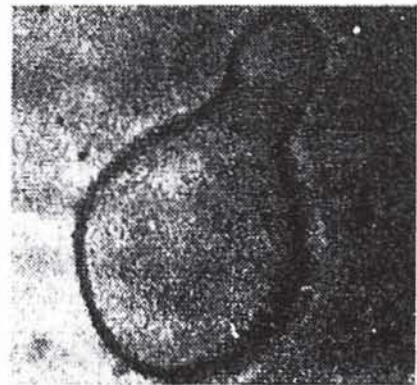
(1): $T=27.2^{\circ}\text{C}$ $V=12200\mu\text{m}^3$ $A=2570\mu\text{m}^2$ (2): $T=36.0^{\circ}\text{C}$ $V=12200\mu\text{m}^3$ $A=2770\mu\text{m}^2$ (3): $T=37.5^{\circ}\text{C}$ $V=10800\mu\text{m}^3$ $A=2750\mu\text{m}^2$ (4): $T=39.1^{\circ}\text{C}$ $V=12000\mu\text{m}^3$ $A=2800\mu\text{m}^2$ (5): $T=41.0^{\circ}\text{C}$ $V=11900\mu\text{m}^3$ $A=2810\mu\text{m}^2$ (6): $T=41.0^{\circ}\text{C}$ $V=12000\mu\text{m}^3$ $A=2820\mu\text{m}^2$ 10 μm 

Abbildung 2: Thermisch induzierte Formumwandlungen von Vesikeln: Knospungsübergang (obere Sequenz, T , A und V bezeichnen Temperatur, Fläche und Volumen) [4], Diskozyt-Stomatozytübergang (untere Reihe, das Temperaturintervall beträgt hier 43.8 - 44.1°C) [5].

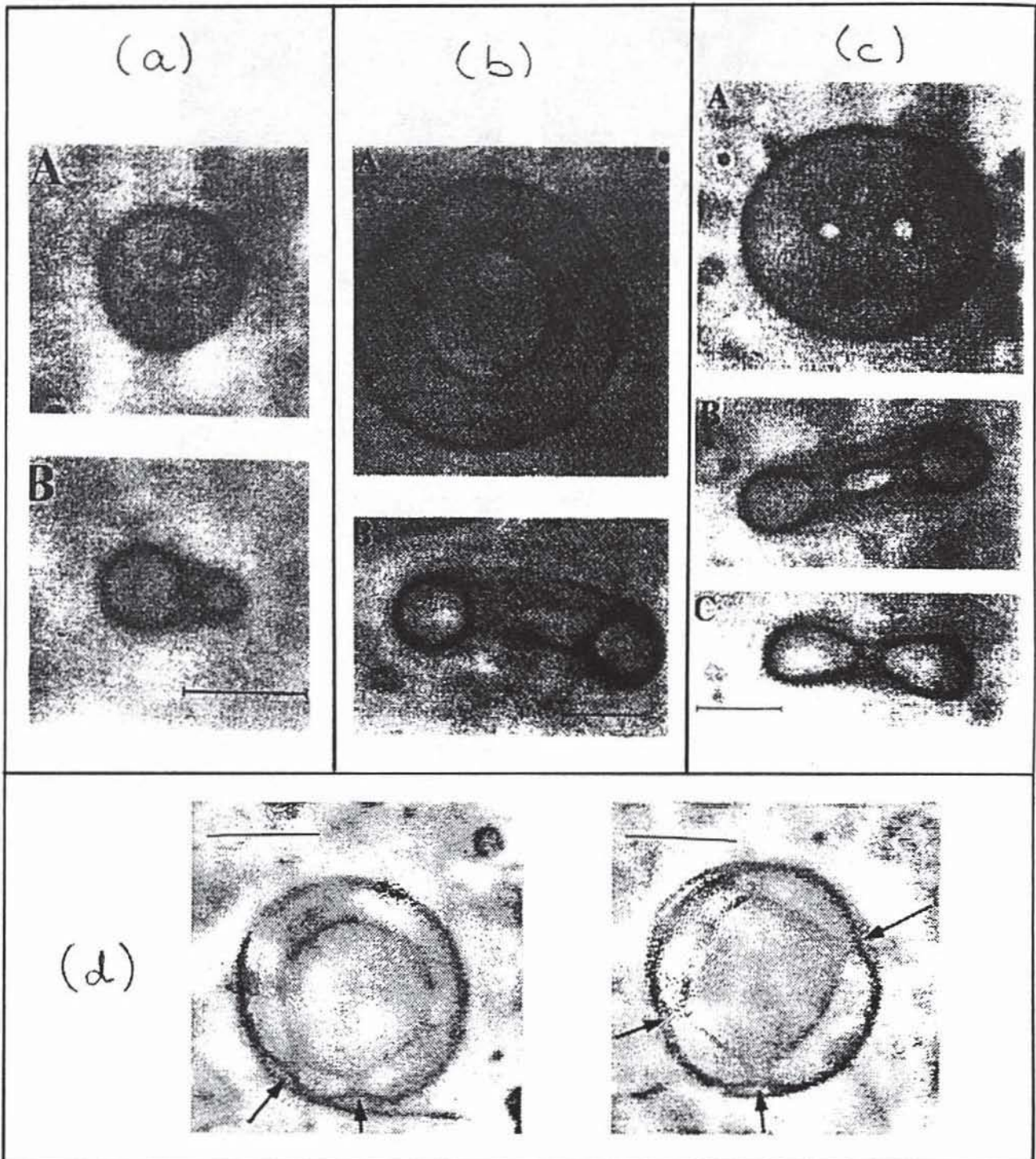


Abbildung 3: Vesikel nichtsphärischer Topologie: (a) Ein nicht-axialsymmetrischer Torus, (b) ein axialsymmetrischer Torus, (c) der „Knopf“ und (d) eine Form mit mehreren Hälsen, die eine Kugel und eine Hohlkugel verbinden; aus [7] und [8]. Der Balken entspricht $10 \mu\text{m}$.

Formen sind starke Fluktuationen der durch Pfeile angedeuteten „Hälsen“ zwischen der Kugel und der Hohlkugel.

Bei Flickerexperimenten werden die thermisch angeregten Fluktuationen von quasi-sphärischen Vesikeln quantitativ ausgewertet [9]. Aus solchen Messungen erhält man

den wichtigen Materialparameter der Biegesteifigkeit. Weil die Dynamik der langwelligen Moden relativ langsam ist (mit typischen Relaxationszeiten im Zehntelsekundenbereich), können auch dynamische Korrelationsfunktionen im Videoexperiment bestimmt werden, aus denen sich Informationen über die dissipativen Mechanismen gewinnen lassen.

Die Wechselwirkung zwischen einzelnen Vesikeln oder Vesikeln und Substraten lassen sich in Adhäsionsexperimenten untersuchen. Dabei werden entweder zwei Vesikel mit Hilfe dünner Glaspipetten in Kontakt gebracht [10] oder Vesikel, die an einer festen Grenzfläche adhärieren, im Mikroskop im Reflektionsinterferenzkontrastverfahren beobachtet [11]. Dabei wird einerseits die durch die Adhäsion induzierte Formänderung ausgewertet, andererseits können wiederum Orts- und Zeitkorrelationen von Fluktuationen im Kontaktbereich analysiert werden.

Aus diesen Experimenten ergeben sich vielfältige Fragestellungen an die Theorie wie zum Beispiel: Was (welche Energie) bestimmt die Form und die Formumwandlungen dieser Vesikel? Welche Rolle spielt dabei die Temperatur? Woher kommen die starken Fluktuationen für nicht-sphärische Topologie? Woher rührt die langsame Dynamik in diesen Systemen? Wie beschreibt man die Adhäsion von Membranen?

1.3 Übersicht über die Vorlesung

Diese Experimente und theoretischen Fragestellungen zu Vesikeln, die vor etwa zwanzig Jahren begonnen wurden, haben in den letzten Jahren immer mehr Interesse innerhalb der Physik gefunden. Damit hat sich das Feld teilweise auch von der ursprünglichen Motivation, nämlich besseren Einblick in die biologischen Systeme zu gewinnen, gelöst und sich zu einem eigenen Gebiet innerhalb der Physik komplexer Fluide emanzipiert.

Ich möchte in dieser Vorlesung nach einer gründlichen Darstellung des Konzeptes der Krümmungsenergie in Abschnitt 2 für planare Membranen und in Abschnitt 3 für Vesikel anhand von vier - nicht zuletzt vom persönlichen Interesse - ausgewählten Beispielen versuchen, verschiedene Aspekte dieses faszinierenden Feldes zu verdeutlichen.² Der in Abschnitt 4 diskutierte Knospungsübergang ist die am besten untersuchte Formumwandlung von Vesikeln. Vesikel mit nicht-sphärischer Topologie verlangen zu ihrer Beschreibung Konzepte aus der Differentialgeometrie, die in Kapitel 5 diskutiert werden. In Kapitel 6 werden wir sehen, wie die Dynamik von Membranen von ihrer Doppelschichtarchitektur und der Einbettung in die viskose Flüssigkeit bestimmt wird. In Kapitel 7 schließlich wird in das Feld wechselwirkender und adhärrierender Membranen kurz eingeführt. Diese letzten vier Kapitel sind unabhängig voneinander lesbar.

²Eine andere Gewichtung findet man in den Übersichtsartikeln und Sammelbänden [2, 12, 13, 14, 15, 16].

2 Biegeenergie und Krümmungsmodell

In Gleichgewicht werden Membranen und Vesikel diejenige Form annehmen, die die freie Energie minimiert. Andernfalls bliebe eine treibende Kraft für eine Formänderung. Die Suche nach der richtigen Energie wird durch die grundlegenden physikalischen Eigenschaften der Membran geleitet.

2.1 Lokale Biegeenergie im klassischen Modell

Zunächst legt die Längenseparation zwischen der im Nanometerbereich liegenden Dicke der Membran und der im Mikrometerbereich liegenden Größe des Vesikels eine Beschreibung der Membran als zweidimensionale Fläche nahe, die in den dreidimensionalen Raum eingebettet ist. Eine solche Fläche wird durch $\mathbf{R}(s_1, s_2)$ parametrisiert, wobei s_1 und s_2 innere Koordinaten bezeichnen. Auf dieser Fläche sind nun zwei wichtige Größen definiert, die mittlere Krümmung H und die Gauß'sche Krümmung K . Anschaulich sind diese Größen durch die beiden in jedem Punkt der Fläche gegebenen vorzeichenbehafteten Krümmungsradien R_1 und R_2 über

$$H \equiv (1/R_1 + 1/R_2)/2, \quad (1)$$

und

$$K \equiv 1/(R_1 R_2) \quad (2)$$

gegeben.³ Das klassische Krümmungsmodell für Membranen gewinnt man, indem die lokale Energiedichte f_0 einer symmetrischen Membran als Entwicklung in H und K ge-

³Die mathematische Definition (siehe, z. B. [17]) von H und K als Funktion von $\mathbf{R}(s_1, s_2)$ erhält man folgendermaßen. In jedem Punkt der Fläche sind die beiden Tangentialvektoren

$$\mathbf{R}_i \equiv \partial_i \mathbf{R}(s_1, s_2) \quad \text{mit} \quad i = s_1, s_2 \quad (3)$$

definiert, aus denen man den Normalenvektor

$$\mathbf{n} = \frac{\mathbf{R}_1 \times \mathbf{R}_2}{|\mathbf{R}_1 \times \mathbf{R}_2|} \quad (4)$$

erhält. Die Determinante $g \equiv \det(g_{ij})$ des metrischen Tensors $g_{ij} \equiv \mathbf{R}_i \cdot \mathbf{R}_j$, bestimmt das Flächenelement $dA = \sqrt{g} ds_1 ds_2$. Mittlere Krümmung, H , und Gauß'sche Krümmung, K , erhält man aus dem Krümmungstensor

$$h_{ij} \equiv (\partial_i \partial_j \mathbf{R}) \cdot \mathbf{n} \quad (5)$$

durch $H \equiv -\frac{1}{2} \text{Spur } h_j^i$ und $K \equiv \det(h_j^i)$, wobei $h_j^i \equiv g^{ik} h_{kj}$, mit $g^{ij} \equiv (g_{ij})^{-1}$. Die hier für H gewählte Vorzeichenkonvention sichert für die Kugel eine positive mittlere Krümmung im Gegensatz zur in der Differentialgeometrie üblichen Konvention.

geschrieben wird. In niedrigster Ordnung⁴ lautet f_0 daher [18, 19]

$$f_0 \equiv (\kappa/2)(2H)^2 + \kappa_G K. \quad (6)$$

Die beiden elastischen Konstanten κ und κ_G heißen Biegesteifigkeit und Gauß'sche Biegesteifigkeit und haben die Dimension einer Energie.

2.2 Fast planare Membran und Persistenzlänge

Für eine Membran, die in der ($z = 0$)-Ebene orientiert ist, lassen sich kleine Auslenkungen in der Mongeardarstellung durch eine Höhe $h(\mathbf{x})$ über der Basiscoordinate $\mathbf{x} = (x, y)$ parametrisieren. Für die mittlere Krümmung H gilt dann in niedrigster Ordnung

$$2H = -\nabla^2 h, \quad (7)$$

während die Gauß'sche Krümmung K wie weiter unten erläutert als totale Divergenz vernachlässigt werden kann. Mit der Fourierzerlegung

$$h(\mathbf{x}) \equiv \int \frac{d^2 q}{(2\pi)^2} h_{\mathbf{q}} e^{i\mathbf{q}\mathbf{x}} \quad (8)$$

findet man die Energie

$$F_0 \equiv \int dx dy f_0(x, y) = \frac{\kappa}{2} \int \frac{d^2 q}{(2\pi)^2} q^4 h_{\mathbf{q}} h_{\mathbf{q}}^* \quad (9)$$

wobei der Stern komplex konjugiert bedeutet.

Aus (9) läßt sich unmittelbar die statische Korrelationsfunktion, das heißt die mittlere quadratische Amplitude einer Mode mit Wellenvektor \mathbf{q} , berechnen. Man erhält

$$\langle h_{\mathbf{q}} h_{\mathbf{q}}^* \rangle = \frac{T}{\kappa q^4} \quad (10)$$

wobei $\langle \dots \rangle$ thermische Mittelung mit dem Boltzmannfaktor $\exp(-F_0/T)$ bedeutet ($k_B \equiv 1$ gilt im ganzen Beitrag).

Mit diesem Resultat kann auch die Konsistenz der Vernachlässigung höherer Terme in (9) überprüft werden. So wurden Terme der Ordnung $(\nabla h)^2$ vernachlässigt, für deren Erwartungswert man

$$\langle (\nabla h)^2 \rangle = \int \frac{d^2 q}{(2\pi)^2} q^2 \langle h_{\mathbf{q}} h_{\mathbf{q}}^* \rangle = \frac{T}{2\pi\kappa} \int_{1/L}^{1/a} dq/q = \frac{T}{2\pi\kappa} \ln(L/a) \quad (11)$$

findet. Hierbei bezeichnet L die lineare Dimension eines Membranstücks und a einen cut-off im Nanometerbereich. Damit die Entwicklung um die planare Membran physikalisch

⁴Ein konstanter Term in f_0 , der einer „Oberflächenspannung“ entspräche, fällt bei Membranen weg, da die Fläche der Membran durch die (feste) Anzahl von Molekülen in der Membran bestimmt wird, wie weiter unten diskutiert wird.

sinnvoll ist, muß der Erwartungswert für $(\nabla h)^2$ klein gegen 1 sein. Dies beschränkt die Ausdehnung L der Membran, die noch als fast planar behandelt werden kann, auf Werte $L \ll L_p$, wobei

$$L_p \equiv a e^{2\pi\kappa/T} \quad (12)$$

die *Persistenzlänge* [20] bezeichnet, die auch die Bedeutung einer Korrelationslänge für die Normalenvektoren auf der Membran hat.

Einen Wert für die Biegesteifigkeit erhält man aus den in der Einführung angesprochenen Flickerexperimenten, die mit einem Ausdruck für die mittleren Amplituden der Konturfluktuationen in der sphärischen Geometrie analog zu (10) ausgewertet werden. Diese Experimente führen für Phospholipidmembranen typischerweise auf $\kappa \simeq 10 - 25T$. Damit kommt man auf den astronomischen Wert $L_p \simeq a e^{60-150}$. Dies zeigt einerseits, daß für die hier betrachteten Membranen die Entwicklung um die planare Lage gerechtfertigt ist. Die exponentielle Abhängigkeit der Persistenzlänge von κ/T zeigt jedoch auch, daß das Konzept einer fast planaren Membran dann zusammenbricht, wenn κ vergleichbar mit T wird, wie es, zum Beispiel, durch Zugabe sogenannter Bolalipide in die Membran erreicht wurde [9].

2.3 Kopplung zwischen lokaler Dichte und Krümmung

Es hat sich nun durch eine weitere Analyse der Energiedichte (6) herausgestellt, daß sie nicht ausreicht, um die Formenvielfalt der Vesikel beschreiben zu können. Bis jetzt ist nämlich die wichtige Eigenschaft, daß eine Membran eine sehr dünne *Doppelschicht* ist, noch nicht berücksichtigt. Sie läßt sich jedoch leicht integrieren, indem die mathematische Fläche $R(s_1, s_2)$, wie in Abb.4 skizziert, auf jeder Seite mit einer fluiden Monoschicht dekoriert wird. Diese zweidimensionalen Flüssigkeiten können durch ihre Dichte $\phi^\pm(s_1, s_2)$ charakterisiert werden. Abweichungen dieser Dichte von der Gleichgewichtsdichte ϕ_0 kosten, in niedrigster Ordnung $\phi^\pm/\phi_0 - 1$, die Energie

$$f_1^\pm \equiv (k/2)(\phi^\pm/\phi_0 - 1)^2, \quad (13)$$

wobei k als elastischer Flächenausdehnungsmodul der zweidimensionalen Flüssigkeit interpretiert werden kann. Die Dichten ϕ^\pm sind in den sogenannten „neutralen“ Flächen der beiden Monoschichten definiert, welche jeweils in einem Abstand d von der Mittelfläche der Doppelschicht liegen.⁵ Da es günstig ist, alle Variablen auf nur einer Fläche zu definieren, müssen die Dichten ϕ^\pm auf die Mittelebene der Doppelschicht projiziert werden. Wann immer die Membran gekrümmt ist, unterscheiden sich die projizierten Dichten ϕ_{proj}^\pm

⁵Die neutrale Fläche einer Monoschicht wird dadurch definiert, daß Biegung und Streckung in der Energie der einzelnen Monoschicht entkoppeln, wenn sie auf diese Fläche bezogen werden.

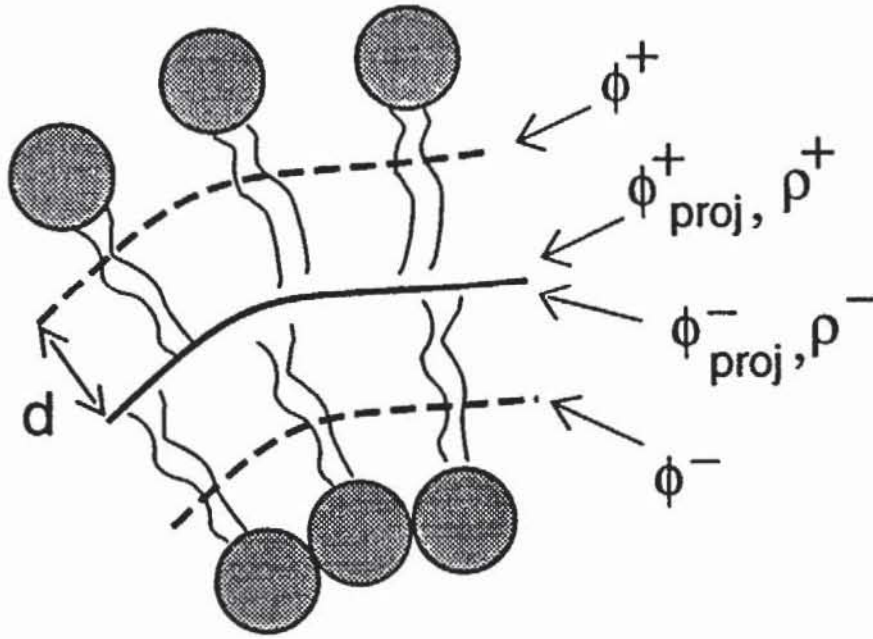


Abbildung 4: Cartoon einer Doppelschichtmembran. Die gestrichelten Linien sind die neutralen Flächen der Monoschichten, auf denen die Dichten ϕ^\pm definiert sind. Die dick-durchgezogene Linie ist die Mittelebene der Membran auf der die projizierten Dichten ϕ_{proj}^\pm und die skalierten Größen ρ^\pm definiert sind.

von den Dichten ϕ^\pm . In niedrigster Ordnung in dH , das heißt für kleine Krümmungen, sind diese Dichten über

$$\phi^\pm = \phi_{proj}^\pm (1 \mp 2dH) \quad (14)$$

verknüpft. Dann läßt sich die elastische Energie der beiden Monoschichten in der Form

$$f_1^\pm = (k/2)(\rho^\pm \mp 2dH)^2 \quad (15)$$

ausdrücken, wobei noch die (skalierte) Abweichung

$$\rho^\pm \equiv (\phi_{proj}^\pm / \phi_0 - 1) \quad (16)$$

der projizierten Dichte vom Gleichgewichtswert ϕ_0 einer flachen Membran eingeführt wird.

Die gesamte Energiedichte für die Doppelschicht lautet somit [21]

$$f \equiv f_0 + f_1^+ + f_1^- = \frac{\kappa}{2}(2H)^2 + \kappa_G K + \frac{k}{2} [(\rho^+ - 2dH)^2 + (\rho^- + 2dH)^2]. \quad (17)$$

Dieses Modell enthält eine Kopplung der Dichten in den beiden Monoschichten an die lokale Krümmung, die noch deutlicher wird, wenn man die mittlere Dichteabweichung

$$\bar{\rho} \equiv (\rho^+ + \rho^-)/2 \quad (18)$$

und den Dichteunterschied

$$\rho \equiv (\rho^+ - \rho^-)/2 \quad (19)$$

in (17) einsetzt. Mit diesen Größen erhält man

$$f = \frac{\kappa}{2}(2H)^2 + \kappa_G K + k [\bar{\rho}^2 + (\rho - 2dH)^2]. \quad (20)$$

als lokale Energiedichte einer symmetrischen Doppelschichtmembran [21].

Wiederum werden wir zunächst kleine Auslenkungen um eine planare Ruhelage betrachten. Mit der Fourierzerlegung der Dichten

$$\rho^\pm(\mathbf{x}) \equiv \int \frac{d^2q}{(2\pi)^2} (\bar{\rho}_q \pm \rho_q) e^{i\mathbf{q}\mathbf{x}}, \quad (21)$$

findet man die Gesamtenergie

$$F \equiv \int \frac{d^2q}{(2\pi)^2} f_q = \frac{1}{2} \int \frac{d^2q}{(2\pi)^2} (h_q, \rho_q, \bar{\rho}_q) \begin{pmatrix} \tilde{\kappa}q^4 & -2kdq^2 & 0 \\ -2kdq^2 & 2k & 0 \\ 0 & 0 & 2k \end{pmatrix} \begin{pmatrix} h_q \\ \rho_q \\ \bar{\rho}_q \end{pmatrix}. \quad (22)$$

Durch

$$\tilde{\kappa} \equiv \kappa + 2d^2k \quad (23)$$

ist eine renormierte Biegesteifigkeit $\tilde{\kappa}$ definiert.

Während die mittlere Dichte $\bar{\rho}_q$ nicht an die Krümmung koppelt, sind die Dichtedifferenz ρ_q und die Form miteinander verknüpft. Wenn man nämlich f_q bezüglich ρ_q minimiert erhält man

$$\rho_q^{\min}(h_q) = dq^2 h_q. \quad (24)$$

Setzt man diesen Wert in (22) ein, ergibt sich

$$f_q(h_q, \rho_q^{\min}, \bar{\rho}_q = 0) = \frac{\kappa}{2} q^4 h_q h_q^*. \quad (25)$$

als Energie für eine Biegemode bei relaxierter Dichte. Diesen Wert sollte man mit

$$f_q(h_q, \rho_q = 0, \bar{\rho}_q = 0) = \frac{\tilde{\kappa}}{2} q^4 h_q h_q^*. \quad (26)$$

für eine Biegung bei festgehaltener Dichte $\rho = 0$ vergleichen. Für eine Abschätzung des Unterschieds zwischen κ und $\tilde{\kappa}$ nimmt man vereinfachend an, daß jede Monoschicht eine dünne strukturlose elastische Platte der Dicke $2d$ ist. Für dünne Platten sind nämlich Biegesteifigkeit $\kappa^{(m)}$ und Flächenausdehnungsmodul k über

$$\kappa^{(m)} = kd^2/3 \quad (27)$$

verknüpft [22].⁶ Mit $\kappa = 2\kappa^{(m)}$ führt diese Relation auf $\tilde{\kappa} = 4\kappa$, was zeigt, daß die lokale Anpassung der Dichten an die Form die Energie einer gebogenen Doppelschicht deutlich

⁶Wir brauchen den oberen Index ^(m) (für Monoschicht) bei $\kappa^{(m)}$, weil wir in (6) κ als Biegesteifigkeit der Doppelschicht eingeführt haben.

absenken kann. Ob diese lokale Anpassung der Dichte an die Form immer möglich ist, ist eine Frage an die relative Zeitskala für Biegung und Dichteanpassung, die in Kapitel 6 diskutiert werden wird.

Schließlich geben wir noch die statischen Korrelationsfunktionen für dieses gekoppelte Modell an, die man wie in Abschnitt 2.2 aus (22) erhält,

$$\left\langle \begin{pmatrix} h_q \\ \rho_q \\ \bar{\rho}_q \end{pmatrix} (h_q, \rho_q, \bar{\rho}_q)^* \right\rangle = T \begin{pmatrix} 1/\kappa q^4 & dq^2/\kappa & 0 \\ dq^2/\kappa & \tilde{\kappa}/2k\kappa & 0 \\ 0 & 0 & 1/2k \end{pmatrix}. \quad (28)$$

3 Krümmungsenergie für Vesikel

3.1 Flächendifferenzmodell

In diesem Abschnitt leiten wir die Gesamtenergie eines geschlossenen Vesikels ausgehend von der lokalen Form (20) ab. Integration von (20) über das geschlossene Vesikel führt zur Gesamtenergie

$$F = \frac{\kappa}{2} \oint dA (2H)^2 + \kappa_G \oint dA K + k \oint dA \bar{\rho}^2 + k \oint dA (\rho - 2dH)^2. \quad (29)$$

als Summe von vier Beiträgen.

Das zweite Integral ist nach einem Satz der Differentialgeometrie, dem Gauß-Bonnet-Theorem (siehe, z. B. [17]), eine topologische Invariante mit dem Wert $\kappa_G 4\pi(1-g)$, wobei g der Genus, das heißt, die Anzahl der Löcher oder Henkel der Form ist. Sofern man sich auf eine bestimmte Topologie beschränkt, kann dieser Term also weggelassen werden.⁷

Das dritte Integral wird minimal für $\bar{\rho} = 0$, das heißt mit (16) und (18), falls die mittlere Dichte der Gleichgewichtsdichte ϕ_0 entspricht. Diese Forderung bestimmt die Gesamtfläche des Vesikels gemäß $A = (N^+ + N^-)/2\phi_0$, wobei N^+ und N^- die Anzahl der Lipidmoleküle in jeder einzelnen Schicht bezeichnet.

Die Größen N^+ und N^- sind vernünftige Parameter, weil sie auf den für Vesikelexperimente typischen Zeitskalen im Minutenbereich konstant sind. Einerseits gibt es praktisch keine freien Lipidmoleküle in Lösung, andererseits ist auch der Austausch von Lipidmolekülen zwischen den beiden Monoschichten auf dieser Zeitskala vernachlässigbar, weil die Aktivierungsbarriere für diesen Prozeß relativ hoch ist.

Das vierte Integral in (29) würde für $\rho = 2dH$ verschwinden. In diesem Fall könnte sich die lokale Dichtedifferenz ρ optimal an die lokale Krümmung H anpassen. Im allgemeinen

⁷Wegen dieser Invarianzeigenschaft läßt sich die Gauß'sche Biegesteifigkeit κ_G durch Experimente an einem Vesikel auch nicht bestimmen. Sie würde aber zum Beispiel in die Verteilung der Vesikel auf die verschiedenen topologischen Klassen eines Ensembles eingehen.

ist das jedoch wegen der Zwangsbedingung

$$\oint dA\rho = (N^+ - N^-)/(2\phi_0) \equiv \Delta A_0/2 \quad (30)$$

nicht möglich. Hier haben wir noch die für das folgende wichtige Größe ΔA_0 , die *optimale* Flächendifferenz, eingeführt. Führt man die Minimierung von (29) mit dieser Nebenbedingung durch, erhält man

$$\rho^{\min}(s_1, s_2) = 2d[H(s_1, s_2) - M/A] + \Delta A_0/2A. \quad (31)$$

Die geometrische Größe

$$M \equiv \oint dA H \equiv \Delta A/4d \quad (32)$$

bezeichnet die totale mittlere Krümmung, aus der sich auch die *tatsächliche* Flächendifferenz ΔA der beiden Monoschichten, ergibt, die im allgemeinen von der optimalen Flächendifferenz ΔA_0 abweicht. Mit dem so umgeformten vierten Term erhält man schließlich die Gesamtenergie [23, 24]

$$W \equiv (\kappa/2) \oint dA (2H)^2 + \frac{\bar{\kappa}\pi}{8A_0 d^2} (\Delta A - \Delta A_0)^2. \quad (33)$$

eines Vesikels, wobei

$$\bar{\kappa} = 2k^{(m)}d^2/\pi. \quad (34)$$

Die Energie (33) definiert das sogenannte *Flächendifferenzmodell*. Es wird implizit ergänzt um die Zwangsbedingung an die Gesamtfläche

$$A = (N^+ + N^-)/2\phi_0 \equiv 4\pi R_0^2 \quad (35)$$

sowie das eingeschlossene Volumen V . Das letztere muß auch als von außen vorgegeben betrachtet werden, obwohl die Membran für Wasser relativ gut permeabel ist. Denn selbst dreifach destilliertes Wasser enthält Spuren von Ionen oder Molekülen für die die Membran nicht durchlässig ist. Dann würden sich bei ungehindertem Wasseraustausch osmotische Gradienten aufbauen, die groß auf der Skala der Krümmungsenergie sind und von dieser nicht mehr balanciert werden könnten. Die Forderung, daß sich kein osmotischer Druck aufbaut, bestimmt daher das eingeschlossene Volumen über die Anzahl der osmotisch aktiven Moleküle.

Die elastische Konstante $\bar{\kappa}$ vor dem zweiten Term in (33) heißt – etwas unglücklich – nichtlokale Biegesteifigkeit. In der oben gegebene Herleitung wird sie durch (34) bestimmt. Aus theoretischen Gründen ist es jedoch hilfreich, das Verhältnis

$$\alpha \equiv \bar{\kappa}/\kappa \quad (36)$$

als zusätzlichen Parameter einzuführen und sich bei Bedarf daran zu erinnern, daß die Relation (27) mit (34) die Abschätzung $\alpha = 3/\pi$ liefert.

3.2 Varianten des Krümmungsmodells: eine kurze Geschichte

Die oben gegebene Herleitung des Krümmungsmodells spiegelt die Evolution dieser Konzepte über den Verlauf von etwa zwanzig Jahren wieder. Zum erstenmal scheint ein Krümmungsmodell bei Canham [18] bei der Beschreibung der Gestalt von Blutzellen aufzutreten, wobei nur der lokale (erste) Term in (33) vorkommt. Helfrich [19] hat in einer wegweisenden Arbeit dann die Form

$$F_{SC} \equiv \frac{\kappa}{2} \oint dA (2H - C_0)^2 \quad (37)$$

für die Krümmungsenergie vorgeschlagen, wobei die spontane Krümmung C_0 eine mögliche Asymmetrie der Membran reflektieren soll. Das mit (37) definierte Modell ohne nichtlokalen Term aber mit der Zwangsbedingung an Fläche und Volumen wird heutzutage als *spontane Krümmungs-Modell* bezeichnet. Physikalisch könnte eine spontane Krümmung einerseits durch unterschiedliche Lösungen im Innern und im Äußeren des Vesikels hervorgerufen sein. Andererseits würden für mehrkomponentige Membranen auch Kompositionsunterschiede in der inneren und äußeren Schicht eine solche Größe erzeugen. Im letzteren Fall muß bei einer fluiden Membran jedoch damit gerechnet werden, daß die lokale Komposition an die Krümmung koppelt, wie im Ausblick kurz erwähnt wird. Da es keine direkten Messungen der spontanen Krümmung an Lipidvesikeln gibt, kann die spontane Krümmung zur Zeit als eine noch unverstandene Größe bezeichnet werden.

Die Physik hinter dem zweiten Term in (33) wurde auch schon in den ersten Arbeiten zum Krümmungsmodell, insbesondere auch von Evans [25], diskutiert. Leider geriet dieser Aspekt dann wieder etwas in Vergessenheit. In den achtziger Jahren wurde mit dem sogenannten *Bilayer-Couple-Modell* [26] eine Karikatur dieses Effektes eingeführt, indem eine dritte Zwangsbedingung an die Flächendifferenz ΔA gestellt wurde. Im Rahmen der obigen Herleitung würde das $\alpha = \infty$ bedeuten, was offensichtlich physikalisch fragwürdig ist, denn diese Wahl entspräche Monoschichten, die sich zwar biegen aber überhaupt nicht dehnen ließen. Die Erkenntnis, daß beide Beiträge zur Krümmungsenergie gleich wichtig sind, wurde erst in den letzten drei Jahren in verschiedenen Arbeiten zum Flächendifferenzmodell umgesetzt [23, 24, 27, 28].

3.3 Formen minimaler Energie

Nachdem das Krümmungsmodell aufgestellt wurde, würde man es gerne lösen. Unter einer Lösung wäre dabei diejenige Form zu verstehen, die für gegebene Fläche A , Volumen V und optimale Flächendifferenz ΔA_0 die Energie W minimiert. Zu einer Lösung gelangt man, im Prinzip, in drei Schritten. Zunächst addiert man die Zwangsbedingungen an Fläche und Volumen mit Lagrangemultiplikatoren Σ und P zu W und bestimmt die

stationären Lösungen. Danach analysiert man die lokale Stabilität einer jeden Form. Gibt es mehrere lokale Minima zu demselben Parametersatz $(A, V, \Delta A_0)$, wählt man dasjenige mit der kleinsten Energie. So leicht sich dieses Programm formulieren läßt, so aufwendig ist seine praktische Umsetzung.

3.3.1 Formgleichung und stationäre Formen

Statt die Energie W zu betrachten, kann man für die Bestimmung der stationären Formen auch das Funktional

$$\Phi[S] \equiv \kappa G[S] + \Sigma A[S] + PV[S] - 2C_0 M[S], \quad (38)$$

untersuchen. Hier bezeichnet

$$G \equiv \frac{1}{2} \oint dA (2H)^2 \quad . \quad (39)$$

die dimensionslose Form der lokalen Krümmungsenergie und $-2C_0$ den Lagrangemultiplikator für die totale mittlere Krümmung, die nach (32) äquivalent zur Flächendifferenz ist. Sofern nämlich eine Form S stationär für W ist, ist sie auch stationär für Φ falls

$$-2C_0 R_0^2 = \alpha(M - \Delta A_0/4d) \quad (40)$$

gewählt wird [24].

Parametrisiert man eine variierte Form mit $\mathbf{R}(s_1, s_2) = \mathbf{R}_0(s_1, s_2) + \epsilon(s_1, s_2)\mathbf{n}(s_1, s_2)$, wobei $\mathbf{n}(s_1, s_2)$ der lokale Normalenvektor ist, läßt sich die Stationaritätsbedingung $\delta\Phi/\delta\epsilon(s_1, s_2) = 0$ nach einiger Rechnung [29] als partielle Differentialgleichung

$$P + 2\Sigma H - 2\kappa[2H(H^2 - K) + C_0 K - \Delta H] = 0, \quad (41)$$

ausdrücken. Hierbei ist Δ der Laplace–Beltrami–Operator auf der Fläche, den man aus den in der Fußnote zu Abschnitt 2.1 definierten Größen über

$$\Delta \equiv (1/\sqrt{g})\partial_i(g^{ij}\sqrt{g}\partial_j). \quad (42)$$

erhält.

Für $\kappa = 0$ heißt die Gleichung (41) nach Laplace. Sie gibt dann die Balance zwischen Druck P und Oberflächenspannung Σ wieder, wie sie zum Beispiel auch für Seifenblasen gilt. Für endliche Biegesteifigkeit κ tragen auch Biegemomente zu dieser Balance bei.

Die Formgleichung (41) ist eine nichtlineare partielle Differentialgleichung (vierter Ordnung, falls man in eine Koordinatendarstellung geht). Ihre Lösungen haben eine wichtige Eigenschaft, die sich aus der *Skaleninvarianz der lokalen Krümmungsenergie* (39) ergibt. Skaleninvarianz bedeutet hier, daß die lokale Krümmungsenergie einer Form nicht von ihrer Größe abhängt. Für die Formgleichung (41) gilt, daß mit $\mathbf{R}(s_1, s_2)$ auch die skalierte Form $\mathbf{R}(s_1, s_2) \rightarrow \lambda^{-1}\mathbf{R}(s_1, s_2)$ eine Lösung ist, vorausgesetzt $\Sigma \rightarrow \lambda^2\Sigma$, $P \rightarrow \lambda^3P$

und $C_0 \rightarrow \lambda C_0$ werden entsprechend umskaliert. Während man also zunächst erwarten würde, daß sich die Gesamtheit aller Lösungen zu (41), der „Formenraum“, durch das Tripel (Σ, P, C_0) parametrisieren läßt, ist diese Gesamtheit tatsächlich nur zweidimensional, wenn Reskalierungen ignoriert werden. Von dieser zweidimensionalen Mannigfaltigkeit aller Lösungen kennt man nur *eine* Form mit sphärischer Topologie, nämlich die Kugel, analytisch. Durch eine Störungstheorie um die Kugel sind auch die Ellipsoide analytisch noch zugänglich [30].

Wegen der Skaleninvarianz können stationäre Formen durch ihr reduziertes Volumen

$$v \equiv \frac{V}{(4\pi/3)R_0^3} \leq 1, \quad (43)$$

und die skalierte Flächendifferenz

$$m \equiv M/R_0 \quad (44)$$

charakterisiert werden. Für eine Kugel gilt $v = 1$ und $m = 4\pi$. Für das folgende brauchen wir auch noch die skalierte optimale Flächendifferenz

$$m_0 \equiv \Delta A_0/4dR_0. \quad (45)$$

3.3.2 Stationäre axialsymmetrische Formen

Für die Unterklasse der axialsymmetrischen Formen vereinfacht sich die Gleichung (41) zu einer gewöhnlichen Differentialgleichung vierter Ordnung, die sich mit etwas Sorgfalt numerisch lösen läßt [26, 31, 32, 33]. Auf diese Weise hat man einen guten Einblick in die Vielfalt der stationären Formen gewonnen.

Die numerisch gefundenen Formen lassen sich, wie in Abb.5 gezeigt, nach ihrer Symmetrie klassifizieren, wobei innerhalb eines Lösungsastes die Symmetrie der Form erhalten bleibt. Die Kugel hat die volle Rotationsymmetrie, die prolaten und oblaten Ellipsoide, die aus der Kugel bifurkieren, sind axialsymmetrisch und symmetrisch bezüglich Spiegelung an der Mittelebene. Verfolgt man numerisch die Evolution dieser Formen weg von der Kugel, findet man, daß sich die Prolaten zu Hanteln und die Oblaten zu bikonkaven Formen, den Discozyten, weiter entwickeln. Es gibt jedoch noch eine Bifurkation entlang dieser Äste, bei denen die Spiegelsymmetrie gebrochen wird. Die so entstehenden Formen sind birnen- bzw. schalenförmig (Stomatozyten). Lösungsäste enden in Grenzformen, bei denen die Kontur singulär wird. So enden die Birnen in einer Grenzform, bei der zwei Kugeln aufeinandersitzen, die durch einen sehr dünnen (mathematisch infinitesimalen) Hals miteinander verbunden sind. Neben diesen einfach zu klassifizierenden Formen gibt es noch weitere Klassen, die in Grenzformen enden, die aus mehreren Kompartimenten bestehen [32].

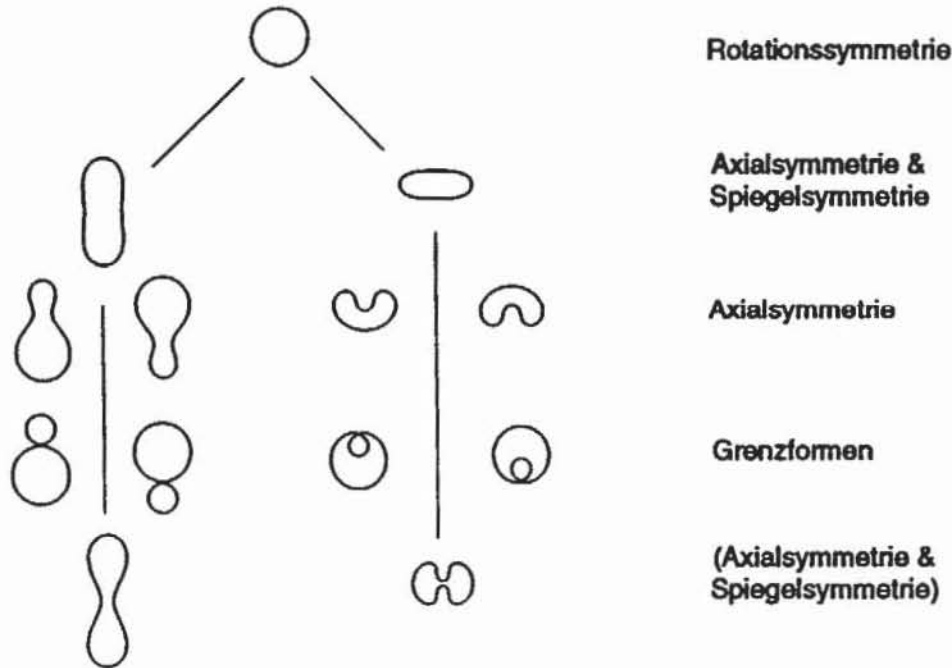


Abbildung 5: Stationäre Formen und ihre Symmetrie

3.3.3 Kontinuierliche und diskontinuierliche Übergänge

Nachdem man sich so stationäre Formen beschafft hat, müßte man deren lokale Stabilität überprüfen. Diese hängt im allgemeinen von α ab, während wir oben gesehen haben, daß eine bestimmte Form stationär für alle $(\alpha, \Delta A_0)$ Paare ist, die (40) erfüllen.

Die Stabilität in der Umgebung einer Bifurkation läßt sich am leichtesten graphisch diskutieren. Es gibt zwei Typen von Bifurkationen, die beide in Abb.6 skizziert sind. Es ist jeweils die Energie W für festes v als Funktion von m_0 für zwei verschiedene Werte von α aufgetragen.

Im ersten Fall, der einem *kontinuierlichen Übergang* entspricht, hat die asymmetrische Form nach der Bifurkation eine tiefere Energie als die symmetrische Form. Daher ist die symmetrische Form jenseits der Bifurkation C lokal instabil, während die asymmetrischen Formen lokal stabil sind. Im zweiten Fall, der einem *diskontinuierlichen Übergang* entspricht, entwickelt der asymmetrische Ast eine Gibbsschleife. Formen entlang des oberen Teils der Gibbsschleife entsprechen Sattelpunkten, die lokal stabile symmetrische Formen von lokal stabilen asymmetrischen Formen trennen. Die Spitze im asymmetrischen Ast, M^{pear} sowie der Verzweigungspunkt M^{pro} selbst, bezeichnen die Spinodalen dieses diskontinuierlichen Übergangs. Die lokale Stabilität der asymmetrischen Formen hängt also von dem Wert von α ab. Je kleiner α , desto mehr asymmetrische Formen sind instabil, weil die Größe der Gibbsschleife mit abnehmendem α zunimmt [24].

Die Analogie zur Thermodynamik, die in dieser Terminologie anklingt, darf nur vor-

sichtig angewendet werden. Im Experiment betrachtet man meistens nicht ein Ensemble von Vesikeln sondern ein einzelnes. Im Fall des kontinuierlichen Übergangs kann das Energiediagramm in Abb.6 so interpretiert werden, daß mit zunehmenden m_0 die symmetrische Form bei C instabil wird. Im Fall des diskontinuierlichen Übergangs wird eine symmetrische Form dann instabil werden, wenn die Aktivierungsenergie zum Sattelpunkt thermisch erreichbar wird. Entsprechendes gilt für eine asymmetrische Form mit abnehmendem m_0 . Am diskontinuierlichen Übergang erwartet man also Hysterese.

3.3.4 Bemerkungen zur Stabilitätsanalyse

Soweit haben wir jedoch nur die relative Stabilität nahe der Bifurkation, die eine Symmetrie bricht, analysiert. Für eine generelle Stabilitätsanalyse muß die zweite Variation der Energie W unter Berücksichtigung der Nebenbedingungen an Fläche und Volumen auf instabile Richtungen untersucht werden. Dies wurde wegen des beträchtlichen numerischen Aufwandes bisher erst unvollständig durchgeführt [34]. Jedoch lassen sich mit verschiedenen Methoden Einblicke in die Stabilität der stationären Formen gewinnen.

Zunächst läßt sich allgemein beweisen [35], daß die lokale Stabilität bezüglich Deformationen, die eine Symmetrie brechen, eine Eigenschaft der Form ist; sie hängt nicht vom

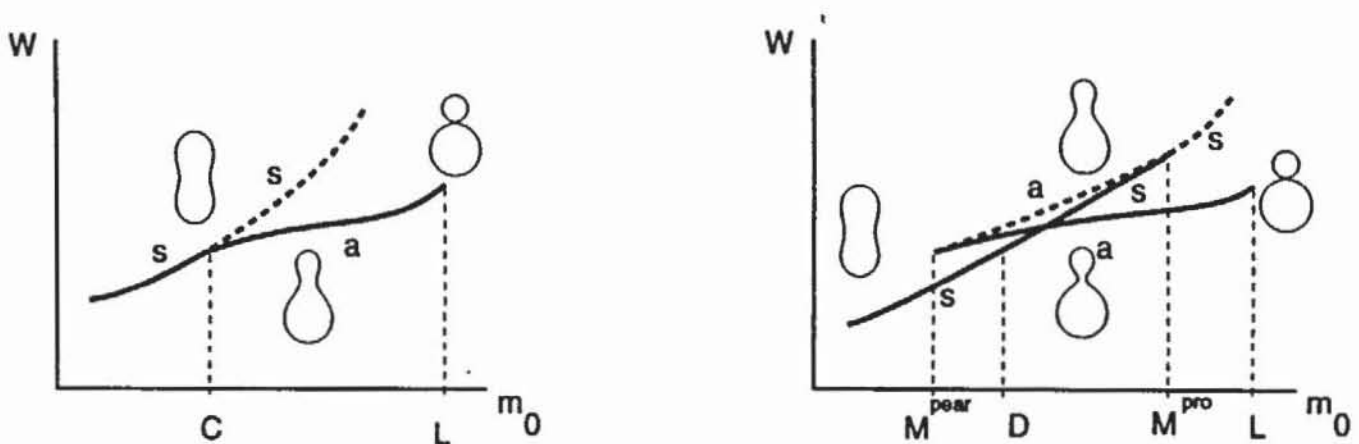


Abbildung 6: Kontinuierliche (großes α , links) und diskontinuierliche (kleines α , rechts) Bifurkation. In beiden Figuren ist die Energie W von symmetrischen (s) und asymmetrischen (a) Formen bei festem reduziertem Volumen v als Funktion der reduzierten optimalen Flächendifferenz m_0 skizziert. Typische Formen sind entlang der Äste eingezeichnet. Die gestrichelten Linien bezeichnen die Energie von instabilen Formen. Im linken Diagramm sind alle asymmetrischen Formen lokal stabil, die symmetrischen werden rechts von der Bifurkation bei C instabil. Im rechten Fall sind die asymmetrischen Formen auf dem oberen Teil der Gibbsschleife Sattelpunkte. M^{pear} sowie der Verzweigungspunkt M^{pro} bezeichnen dann die Spinodalen dieses diskontinuierlich Übergangs.

spezifischen Wert von α ab. Wenn also eine bestimmte axialsymmetrische Form bezüglich nichtaxialsymmetrischer Verformungen instabil ist, ist sie das unabhängig von α . Abb.6 illustriert einen Umkehrschluß dieses Satzes: Die lokale Stabilität der asymmetrischen Formen hängt von α ab, denn die beim diskontinuierlichen Übergang auftretende Instabilität entlang des oberen Teils der Gibbsschleife bricht keine Symmetrie mehr, weil diese Formen schon gebrochenen Symmetrie haben.

In der Umgebung der Kugel läßt sich Stabilität bezüglich nichtaxialsymmetrischer Formen auch in Störungstheorie berechnen [36]. Man findet dann, zum Beispiel, daß prolate Formen bei festem v nahe 1 mit abnehmendem m instabil bezüglich einer ellipsoidalen Verformung werden, die die Axialsymmetrie bricht. Genauso werden die oblaten Formen instabil mit zunehmendem m . Ob jedoch die dazwischen liegenden Ellipsoide mit drei verschiedenen Trägheitsmomenten stabil oder aber Sattelpunkte für einen diskontinuierlichen Prolat-Oblatübergang sind, hängt wiederum vom Wert von α ab. Einen gewissen Einblick in die Stabilität von Formen bei kleinerem reduzierten Volumen erhält man auch von Variationsansätzen [36].

3.4 Phasendiagramm für $\alpha = 0$

Die lokal stabilen Formen werden in einem sogenannten Phasendiagramm – das man vermutlich besser als Formendiagramm bezeichnen würde – angeordnet. Das einfachste Phasendiagramm erhält man für $\alpha = 0$, also wenn man den nichtlokalen Term in der Energie vernachlässigt [33]. Für Vesikel, bei denen die beiden Monoschichten schnell

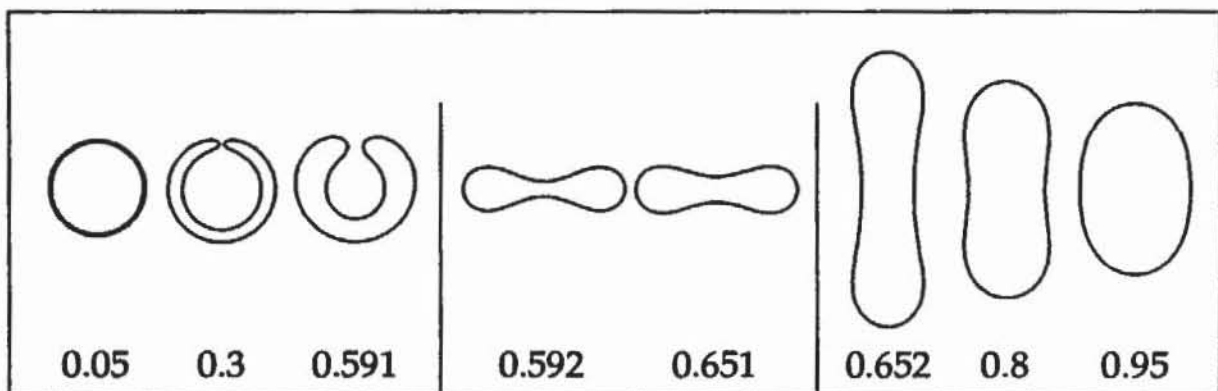


Abbildung 7: Phasendiagramm und stabile Formen für $\alpha = 0$ als Funktion des reduzierten Volumens [33]. Mit abnehmenden Volumen findet man bei $v \simeq 0.65$ einen diskontinuierlichen Übergang von Prolaten zu Oblaten und bei $v \simeq 0.59$ einen weiteren diskontinuierlichen Übergang zu Stomatozyten. Die Spinodalen für den Prolat-Oblatübergang sind nicht bekannt. Diejenigen für den Oblat-Stomatozytübergang liegen bei $v \simeq 0.51$ und $v \simeq 0.66$.

Moleküle austauschen, wäre das ein vernünftiges Modell. Nach der Skalierung bleibt dann überhaupt nur noch ein Parameter, das reduzierte Volumen v . In Abb.7 sind die Formen minimaler Energie als Funktion des reduzierten Volumens dargestellt. Bemerkenswert an diesem Modell ist, daß es keine Birnen und damit auch nicht den in Abb.2 gezeigten Knospungsübergang gibt. Dieses theoretische Ergebnis war die Basis für die in Abschnitt 2.3 erwähnte Behauptung, das klassische Modell (6) reiche nicht zur Erklärung der Vielfalt der Vesikelformen.

4 Knospungsübergang

In diesem Abschnitt untersuchen wir, was sich zu dem in Abb.2 gezeigten Knospungsübergang theoretisch sagen läßt. Dabei müssen wir zunächst diskutieren, wie die theoretischen Parameter v , m_0 und α mit experimentell zugänglichen Größen verbunden werden können.

Im Experiment, das in Abb.2 gezeigt wurde, wurde die Temperatur geändert. Dies führt zu thermischer Ausdehnung der beiden Monoschichten sowie einer Abnahme der effektiven Dicke der Membran, weil die mittlere Kettenlänge durch die thermische Bewegung verkürzt wird. Quantitativ wird dies mit thermischen Ausdehnungskoeffizienten beschrieben, die durch

$$\beta_A \equiv \frac{1}{A^{in}} \frac{dA^{in}}{dT} \equiv \frac{1}{A^{ex}} \frac{dA^{ex}}{dT} \quad (46)$$

und

$$\beta_d \equiv \frac{1}{d} \frac{dd}{dT}, \quad (47)$$

definiert sind. A^{in} und A^{ex} bezeichnen die Flächen der beiden Monoschichten. Man kann die Ausdehnung der eingeschlossenen wässrigen Lösung, also des Volumens, vernachlässigen, weil sie etwa eine Größenordnung kleiner als die Flächenausdehnung der Membran ist. Experimentell findet man auch, daß sich das Membranzvolumen kaum ändert, also $\beta_d \approx -\beta_A$ gilt. Wenn wir vereinfachend annehmen, daß die Ausdehnungskoeffizienten selbst temperaturunabhängig sind, findet man leicht die Temperaturabhängigkeit der Größen v und m_0 als

$$v(T) = v(T_0)e^{-3\beta_A(T-T_0)/2} \quad (48)$$

und

$$m_0(T) = m_0(T_0)e^{3\beta_A(T-T_0)/2}. \quad (49)$$

wobei T_0 eine Anfangstemperatur bezeichnet [33]. Eliminiert man die Temperatur, erhält man die Temperaturtrajektorie $m_0(v)$ in der Form

$$m_0(v) = m_0(T_0)v(T_0)/v. \quad (50)$$

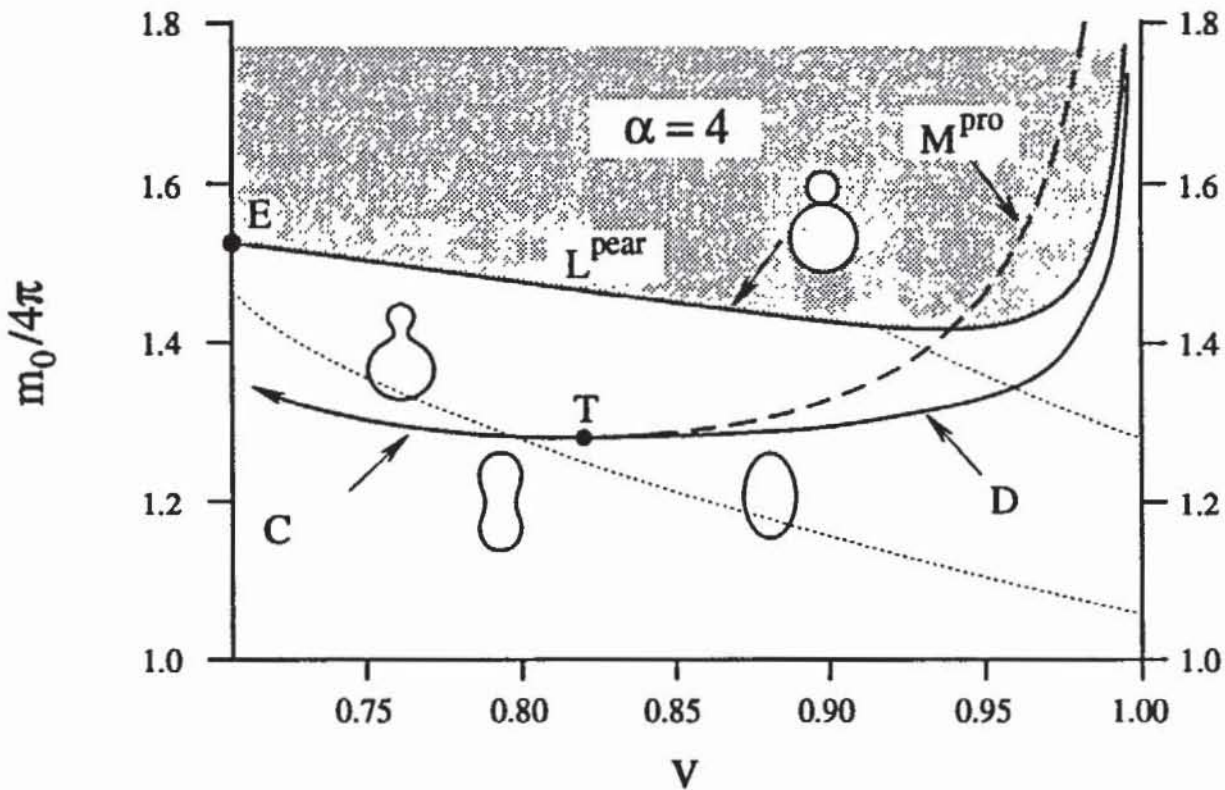


Abbildung 8: Phasendiagramm für den Knospungsübergang in der m_0, v -Ebene [24]. Der trikritische Punkt T trennt den kontinuierlichen Übergang C vom diskontinuierlichen Übergang D . M^{pro} bezeichnet die Spinodale für die metastabilen symmetrischen Formen. Entlang der Grenzlinie L^{pear} sind zwei Kugeln unterschiedlicher Größe durch einen infinitesimalen Hals verknüpft. Im grauen Bereich darüber (und für kleineres v) sind die stabilen Formen noch nicht genau analysiert. Die zwei gepunkteten Linien sind Temperaturtrajektorien.

Schließlich wollen wir noch annehmen, daß das Verhältnis α der nichtlokalen zur lokalen Biegesteifigkeit temperaturunabhängig ist. Abb.8 zeigt für $\alpha = 4$ das zweidimensionale Phasendiagramm [24], in das zwei Temperaturtrajektorien eingezeichnet sind, die sich durch den Wert $m_0(v = 1)$, der optimalen Flächendifferenz der Anfangskugel, unterscheiden. Mit zunehmender Temperatur wird das relative Volumen kleiner und die Trajektorie schneidet die Phasengrenze zwischen den symmetrischen Prolaten und den asymmetrischen Birnen. Für relativ kleinen Startwert m_0 ist dieser Übergang kontinuierlich. Insbesondere sind also die nur schwach asymmetrischen Birnen nach dem Übergang lokal stabil. Ist die anfängliche optimale Flächendifferenz $m_0(v = 1)$ größer, schneidet die Trajektorie die Phasengrenze im diskontinuierlichen Bereich. Man erwartet dann, daß die symmetrischen Formen spätestens bei der Spinodalen M^{pro} instabil werden. Die Birnen

mit schwacher Asymmetrie sind dann nicht stabil.

Die Lage des trikritischen Punktes, T , der den kontinuierlichen vom diskontinuierlichen Übergang trennt, hängt jedoch von α ab. Für $\alpha = 3/\pi$, was man in der einfachsten Approximation erwartet, ist der Übergang diskontinuierlich für alle Startwerte m_0 . In diesem Fall dürfte es keine stabilen Birnen mit schwacher Asymmetrie geben.

Experimentell wurden jedoch auch schwach asymmetrische Birnen beobachtet [4]. Eine mögliche Erklärung wäre, daß diese Birnen keine Gleichgewichtsformen sind, sondern entweder Fluktuationen um die symmetrische Form oder aber Transienten eines diskontinuierlichen Übergangs. Zur Aufklärung dieser Frage werden zur Zeit die mittlere Kontur und deren dynamische Fluktuationen in der Nähe des Übergangs experimentell bestimmt. Aus einer Analyse dieser Daten sollte sich dann eine dieser Alternativen ausschließen lassen.

5 Vesikel nichtsphärischer Topologie

Für eine Beschreibung der in den letzten Jahren entdeckten Vesikel nichtsphärischer Topologie werden wir zunächst einen kleinen Exkurs in eher mathematische Fragen unternehmen.

5.1 Konforme Invarianz der lokalen Krümmungsenergie

Wir hatten in Abschnitt 3.3 gesehen, daß die lokale Krümmungsenergie G skaleninvariant ist, sich also bei einer Reskalierung der Form nicht ändert. Sie hat jedoch noch die überraschende Eigenschaft, auch invariant unter konformen Abbildungen in drei Dimensionen zu sein [37]. Die konformen Abbildungen in drei Dimensionen umfassen eine zehn parametrische Gruppe, die neben Translationen (3), Rotationen (3) und Skalentransformationen (1) noch Inversionen (3) an Kugeln umfassen. Die Inversion an einer Kugel im Ursprung bildet \mathbf{R} auf \mathbf{R}/R^2 ab. Insbesondere werden dabei Kreise auf Kreise und Kugeln auf Kugeln abgebildet. Für viele Zwecke ist es günstiger, statt der Inversionen die sogenannten speziellen konformen Abbildungen zu betrachten, welche aus einer Inversion am Ursprung, einer Translation um den Vektor \mathbf{a} und wiederum einer Inversion am Ursprung bestehen. In Formeln ausgedrückt, bildet diese Transformation den Vektor \mathbf{R} auf \mathbf{R}' ab, wobei

$$\mathbf{R}' = \frac{\mathbf{a} + \mathbf{R}/R^2}{|\mathbf{a} + \mathbf{R}/R^2|^2}. \quad (51)$$

Die speziellen konformen Abbildungen haben den Vorteil, daß sie für $\mathbf{a} \rightarrow 0$ zur Identität werden, sie also infinitesimal angewandt werden können.

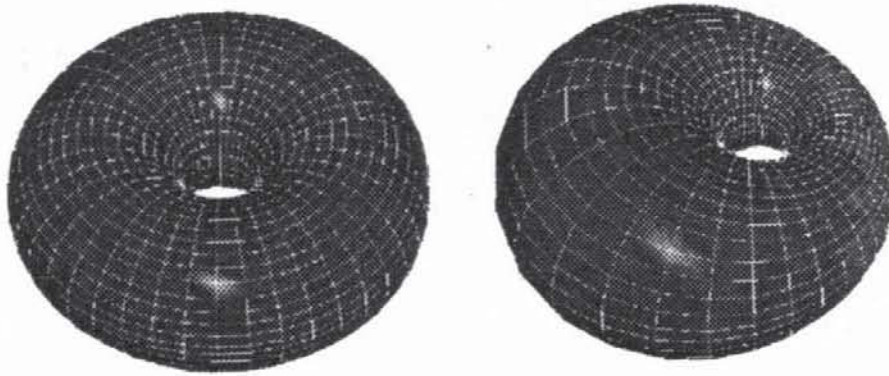


Abbildung 9: Cliffordtorus und ein konformes Abbild [39].

5.2 Willmore–Problem

Der englische Mathematiker Willmore formulierte folgendes Problem [37]: Was ist die Form minimaler lokaler Krümmungsenergie G für gegebene Topologie ohne weitere Nebenbedingungen?⁸ Die Topologie einer Form wird durch ihren Genus g charakterisiert, das heißt die Anzahl der Henkel oder Löcher. Für sphärische Topologie gilt $g = 0$. Wegen der konformen Invarianz ist klar, daß mit einer Form auch deren konforme Transformationen das Problem lösen.

Für sphärische Topologie läßt sich relativ einfach beweisen, daß die Kugel die Form minimaler Krümmungsenergie ist mit $G = G_0 \equiv 8\pi$ [37]. Weil konforme Abbildungen aus der Kugel keine neuen Formen erzeugen, ist für $g = 0$ das Willmore–Problem eindeutig gelöst.

Weit interessanter ist das Problem für $g = 1$, also für Tori. Hier hat Willmore die Vermutung publiziert, der in Abb.9 gezeigte Cliffordtorus sei die Form minimaler Krümmungsenergie. Der Cliffordtorus ist ein axialsymmetrischer Torus mit kreisförmigem Querschnitt, wobei die beiden erzeugenden Radien das Verhältnis $\sqrt{2}$ haben. Er kann durch

$$\mathbf{R}(\theta, \phi) = \begin{pmatrix} (\sqrt{2} + \sin \theta) \cos \phi \\ (\sqrt{2} + \sin \theta) \sin \phi \\ \cos \theta \end{pmatrix} \quad (52)$$

parametrisiert werden, wobei $0 \leq \theta, \phi \leq 2\pi$ die inneren Koordinaten sind. Die Krümmungsenergie eines Cliffordtorus beträgt $G = G_1 \equiv (\pi/2)8\pi$ und sein reduziertes Volumen $v^* \equiv 3/(2^{5/4}\pi^{1/2}) \simeq 0.71$. Bis heute steht ein Beweis der Willmoreschen Vermutung aus, auch wenn es es gute Indizien für ihre Richtigkeit gibt. Wir werden jetzt die Konsequenzen analysieren, die sich aus der Annahme ergeben, sie stimme.

Wendet man eine spezielle konforme Transformation mit $\mathbf{a} = (0, 0, a_z)$ auf den Clifford-

⁸Einen schönen Überblick über das Willmore–Problem gibt [38].

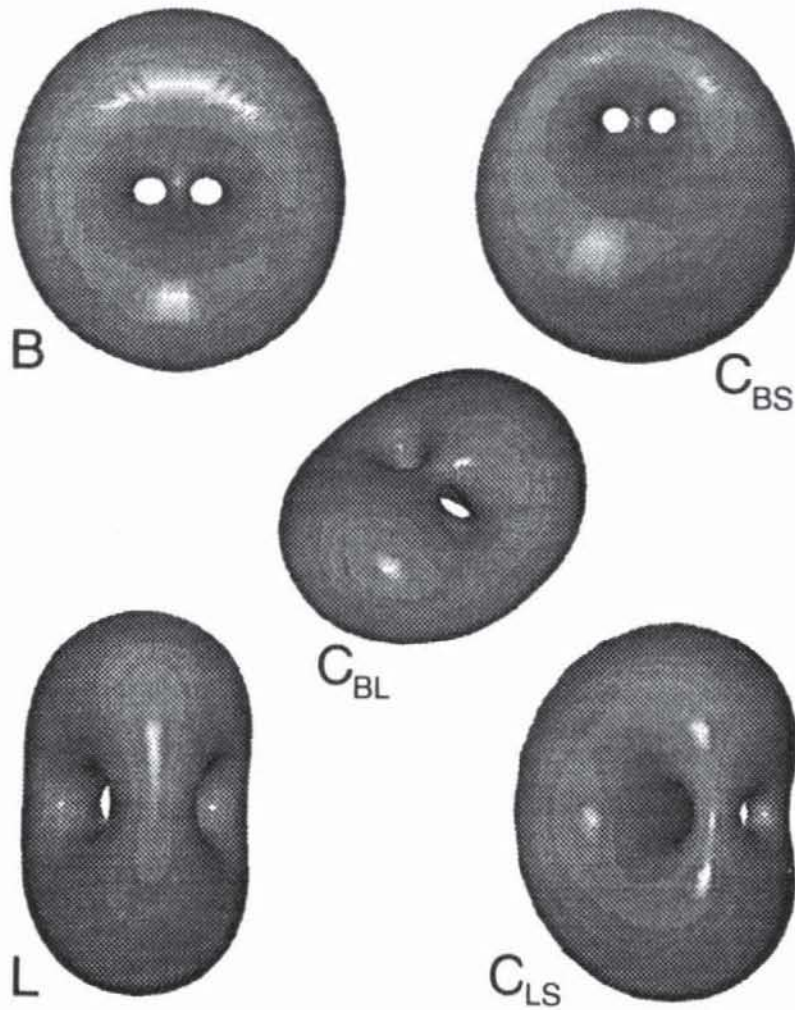


Abbildung 10: Lawsonfläche (L) und einige ihrer konformen Abbilder [40]. Die Bezeichnungen beziehen sich auf das Phasendiagramm Abb.12.

torus an, ist die transformierte Form wieder ein Cliffordtorus (unterschiedlicher Größe, was aber hier irrelevant ist). Liegt jedoch der Vektor \mathbf{a} in der (x, y) -Ebene, ist die transformierte Form nicht mehr axialsymmetrisch, hat aber noch zwei Spiegelebenen. Ein Beispiel für eine solche nicht-axialsymmetrische Form findet man auch in Abb.9. Ohne Beschränkung der Allgemeinheit genügt es, $\mathbf{a}=(a_x, 0, 0)$ zu betrachten. Für a_x sind dann alle Werte zwischen 0 und $\sqrt{2} - 1$ zulässig, wobei für $a_x \rightarrow \sqrt{2} - 1$ die Transformation singular wird. In diesem Limes entspricht die transformierte Form einer Kugel mit einem infinitesimalen Henkel, woraus man als minimale Krümmungsenergie eines Henkels den Wert $(\pi/2 - 1)8\pi$ erhält. Das reduzierte Volumen der so gefundenen Formen liegt zwischen $v = v^*$ und $v = 1$. Die konformen Abbildungen des Cliffordtorus umfassen also eine einparametrische Schar nichtaxialsymmetrischer Formen, die alle das Willmore-Problem lösen (falls Willmores Vermutung stimmt). Für $g = 1$ ist das Willmore-Problem demnach einfach entartet.

Für $g = 2$ ist das Willmore–Problem noch etwas subtiler, da Formen mit zwei Henkeln zwangsläufig nichtaxialsymmetrisch sind. In Abb.10 ist die Lawsonfläche [41] abgebildet, die nach Kusners Vermutung [42] das Willmore–Problem löst.⁹ In dieser Abbildung werden auch verschiedenen Formen gezeigt, die sich alle aus der Lawsonfläche durch konforme Abbildungen gewinnen lassen. Weil die Lawsonfläche nicht mehr axialsymmetrisch ist, spannen die speziellen konformen Abbildungen der Lawsonfläche eine dreidimensionale Mannigfaltigkeit im Formenraum auf, die durch den Vektor \mathbf{a} parametrisiert werden kann. Das Willmore–Problem ist also dreifach entartet für $g = 2$. Der selbe Entartungsgrad gilt dann auch für Formen mit noch höherem Genus.

5.3 Phasendiagramm für Tori

Nachdem wir jetzt genügend mathematischen Hintergrund haben, können wir das physikalische Problem angehen. Für eine realistische Beschreibung der Vesikel müssen wir noch die Nebenbedingung an Fläche und Volumen sowie den nichtlokalen Term in der Krümmungsenergie (33) berücksichtigen.

Für $g = 1$ hatten wir eine einfache Entartung des Willmore–Problems festgestellt. Sobald noch die Nebenbedingung an ein festes reduziertes Volumen gestellt wird, ist die Entartung des Grundzustandes aufgehoben. In [39] haben wir zur Bestimmung des Phasendiagramms eine zweistufiges Verfahren angewandt. Zunächst wurden wie für sphärische Topologie die axialsymmetrischen stationären Formen toroidaler Topologie bestimmt und die Bifurkationen nach ihrer Ordnung charakterisiert. Dann haben wir in einem zweiten Schritt alle axialsymmetrischen Formen niedrigster Energie auf ihre lokale Stabilität bezüglich spezieller konformer Transformationen untersucht. Wann immer die axialsymmetrische Form minimaler Krümmungsenergie W instabil bezüglich einer konformen Transformation ist, weiß man mit Sicherheit, daß der Zustand niedrigster Energie für diese Parameter nichtaxialsymmetrisch sein muß. Auf diese Weise erhält man also eine untere Schranke an die Ausdehnung des Gebietes mit nichtaxialsymmetrischem Grundzustand. Weil diese Schranke in der Umgebung des Cliffordtorus exakt ist, sollte sie auch sonst keine allzu schlechte Näherung darstellen.

Das in Abb.11 gezeigte Phasendiagramm enthält einen großen nichtaxialsymmetrischen Bereich. Bei kleinem relativen Volumen v sind die Formen axialsymmetrisch. Es gibt zwei Klassen von axialsymmetrischen Formen mit Spiegelsymmetrie, die diskoiden und die sichelförmigen Tori, sowie Formen mit gebrochener Spiegelsymmetrie, die toroi-

⁹Zwar gibt es keine analytische Darstellung für die Lawsonfläche aber es gibt eine explizite Form für eine „benachbarte“ Fläche [41], die wir in [40] als Startform für eine direkte numerische Minimierung der lokalen Krümmungsenergie G gewählt haben. Das so gefundene Minimum mit der Energie $G = G_2 \simeq 1.74 \times 8\pi$ sollte dann der Lawsonfläche entsprechen.

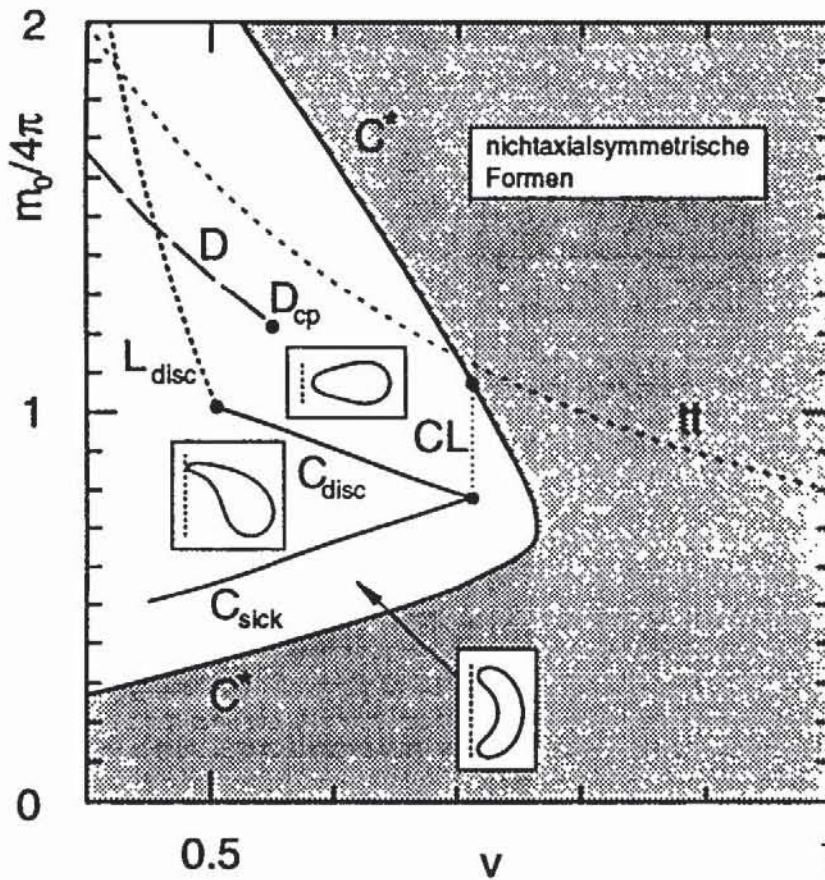


Abbildung 11: Phasendiagramm für Genus 1 und $\alpha = 1$ [39]. Das graue Gebiet mit nichtaxialsymmetrischem Grundzustand ist durch einen kontinuierlichen Übergang C^* vom weißen axialsymmetrischen Gebiet getrennt. Innerhalb dieses Gebiets bezeichnen C_{sick} und C_{disc} kontinuierliche Übergänge, D einen diskontinuierlichen Übergang innerhalb der diskoiden Tori, sowie L_{disc} eine Grenzform in diesem Bereich. Entlang der gepunkteten Linie CL ist der Cliffordtorus Form minimaler Energie.

dalen Stomatozyten. Alle bisher experimentell gefundenen Tori, von denen in Abb.3a und 3b zwei gezeigt sind, lassen sich in dieses Phasendiagramm einordnen. Dagegen sind die theoretisch vorhergesagten toroidalen Stomatozyten bisher noch nicht beobachtet worden.

5.4 Konforme Diffusion für höheren Genus

Für $g = 2$ ist es günstig, zunächst das Phasendiagramm für $\alpha = \infty$ zu diskutieren. Physikalisch entspricht dies einer Zwangsbedingung an das reduzierte Volumen v sowie die integrierte mittlere Krümmung m . Die dreifach entarteten Lösungen minimaler Krümmungsenergie sind in Abb.12 auf die zweidimensionale (v, m) -Ebenen projiziert. Innerhalb der grau schraffierten Fläche W gibt es also zu jedem (v, m) -Wert, eine einparametrische

Schar von Formen mit derselben Krümmungsenergie. Diese Schar läßt sich für jeden Wert durch eine geschlossene Kurve $a(s)$ mit beliebigem Parameter s parametrisieren, wobei \mathbf{a} der Vektor der speziellen konformen Transformation ist, welche man auf die Lawsonfläche anwenden muß, um die entsprechende Form zu erhalten. Eine Differentialgleichung für $a(s)$ findet man, indem man zunächst das reduzierte Volumen und die reduzierte mittlere Krümmung einer Form in \mathbf{a} entwickelt, wobei die Ausgangsform $v = v_1$ und $m = m_1$ habe. Es ergibt sich

$$v(\mathbf{a}) = v_1(1 + 6(\mathbf{R}^A - \mathbf{R}^V)) \cdot \mathbf{a} + O(\mathbf{a}^2) \quad (53)$$

und

$$m(\mathbf{a}) = m_1(1 + 2(\mathbf{R}^A - \mathbf{R}^M)) \cdot \mathbf{a} + O(\mathbf{a}^2) \quad (54)$$

mit dem Schwerpunkt der Fläche $\mathbf{R}^A \equiv (\int dA \mathbf{R})/A$, des Volumens $\mathbf{R}^V \equiv (\int dV \mathbf{R})/V$ und der mittleren Krümmung $\mathbf{R}^M \equiv (\int dA H \mathbf{R})/M$ [43].

Die Differentialgleichung für die „konforme Trajektorie“ $a(s)$, welche die entarteten

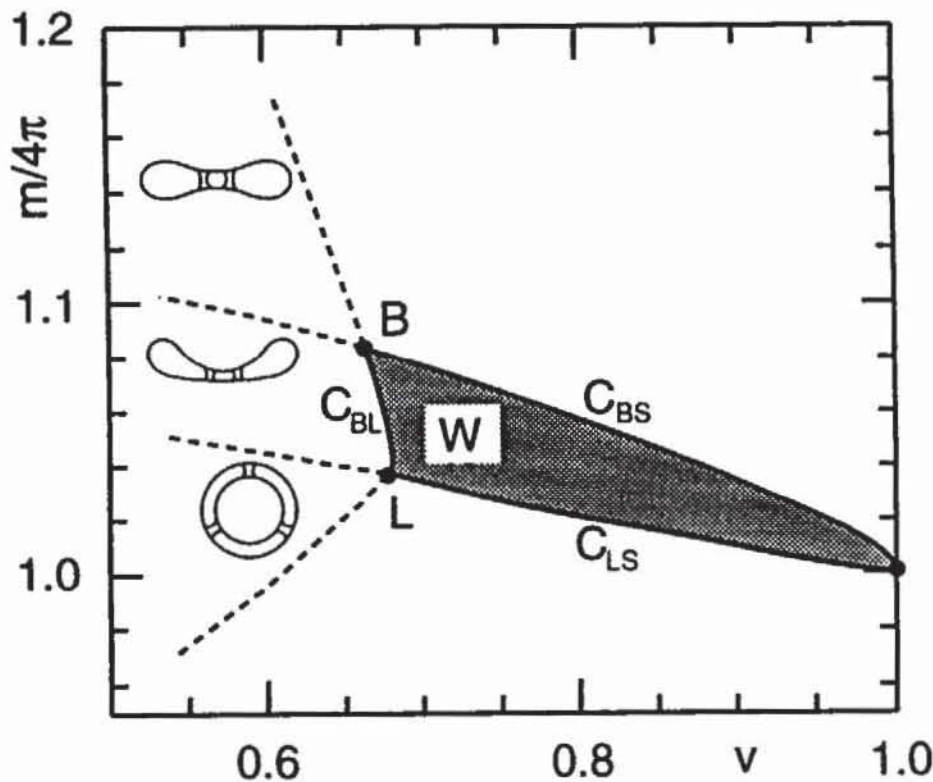


Abbildung 12: Phasendiagramm für Genus 2 und $\alpha = \infty$ [40]. Die Bezeichnungen entlang des Randes des konform entarteten Gebietes W beziehen sich auf die in Abb.10 gezeigten Formen.

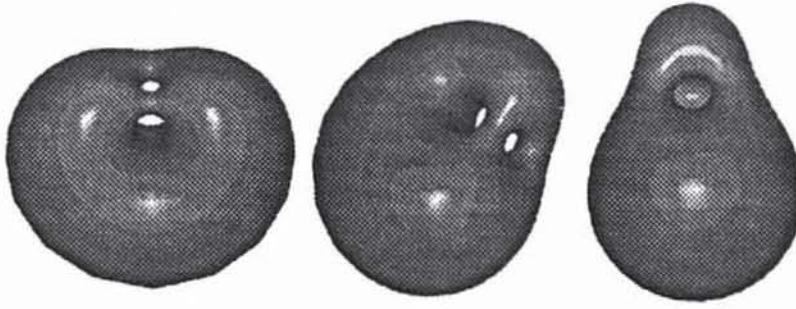


Abbildung 13: Drei Formen entlang einer konformen Trajektorie [40]. Alle Formen haben dieselbe Fläche, dasselbe Volumen und dieselbe integrierte mittlere Krümmung.

Formen bei festem v und m beschreibt, lautet also [40]

$$d\mathbf{a}/ds = (\mathbf{R}^A - \mathbf{R}^V) \times (\mathbf{R}^A - \mathbf{R}^M). \quad (55)$$

Drei Formen entlang einer konformen Trajektorie sind in Abb.13 für $(v, m) = (0.78, 1.027 \times 4\pi)$ gezeigt. Da es für ein Vesikel in diesem Gebiet entlang der konformen Trajektorie keine rücktreibende Kraft gibt, wird sich das Vesikel in einem Diffusionsprozeß entlang dieser konformen Trajektorie bewegen. Wir haben diese theoretische Vorhersage konformer Diffusion in Analogie zur Translations- und Rotationsdiffusion genannt.

Außerhalb des Gebietes W hat die Form minimaler Krümmungsenergie G für festes v und m eine höhere Energie als die Lawsonfläche. Sie ist dann auch nicht mehr entartet. Konkrete Formen wurden hier noch nicht berechnet, aber die Symmetrie des Grundzustandes kann man aus der Symmetrie der entsprechenden Form am Rand des Gebietes W erschließen. Cartoons dieser Formen sind auch in Abb.12 eingezeichnet. Man findet sowohl ein Gebiet mit den experimentell beobachteten Knöpfen (Abb.3c) wie auch ein Gebiet, in dem zwei Kugeln durch drei Hälse miteinander verbunden sind. Eine ähnliche Form wurde, wie in Abb.3d dargestellt, bereits experimentell gefunden. Das theoretische Resultat zeigt jedoch, daß diese Formen nicht im Gebiet W liegen. Die experimentell beobachteten starken Fluktuationen der Halspositionen sind daher keine konformen Moden sondern niederenergetische Anregungen.

Die Existenz des Gebietes W und das Phänomen der konformen Diffusion gelten genauso für $\alpha < \infty$, wenn im Phasendiagramm m durch m_0 ersetzt wird. Denn wann immer $m_0 = m$ gilt, verschwindet der nichtlokale Beitrag ohnehin.

Die Vorhersage der konformen Diffusion ist eine starke Aussage, deren experimenteller Nachweis die Energie (33) als korrekte Beschreibung für Vesikel bestätigen würde. Bisher wurde dieses Phänomen experimentell noch nicht zweifelsfrei nachgewiesen, ob-

wohl Formen, die den in Abb.10 gezeigten Formen entlang des Randes von W gleichen, schon beobachtet wurden. Eine grundlegende experimentelle Schwierigkeit ist, die konforme Diffusion von Rotationen zu unterscheiden. Experimentell sieht man immer nur einen Querschnitt der Form. Wenn eine Form geringer Symmetrie rotiert, kann sich ein Querschnitt durchaus stark ändern.

6 Dynamik

6.1 Navier–Stokes–Gleichungen

Die Dynamik von Membranen wird wesentlich durch ihre Einbettung in eine viskose wässrige Lösung bestimmt, in der Energie dissipiert wird. Diese Lösung wird durch die Navier–Stokes–Gleichungen beschrieben, die für das Geschwindigkeitsfeld $\mathbf{v}(\mathbf{r})$ einer Flüssigkeit der Dichte ρ_f und Viskosität η

$$\rho_f(\partial_t \mathbf{v} + (\mathbf{v} \cdot \nabla) \mathbf{v}) + \nabla p - \eta \nabla^2 \mathbf{v} = \mathbf{K}^{ex}(\mathbf{r}) \quad (56)$$

lauten, wobei $p(\mathbf{r})$ der Druck und $\mathbf{K}^{ex}(\mathbf{r})$ die äußere Kraft ist, die von der Membran auf die Flüssigkeit ausgeübt wird. In guter Näherung kann die Flüssigkeit als inkompressibel durch

$$\nabla \cdot \mathbf{v} = 0 \quad (57)$$

beschrieben werden. Diese Gleichungen müssen nun noch durch dynamische Gleichungen für die Membran selbst, sowie durch geeignete Randbedingungen zwischen Membran und Flüssigkeit ergänzt werden. Im allgemeinen wird die Ausformulierung dieser Gleichungen recht aufwendig.

In diesem Abschnitt wollen wir daher nur ein einfaches Beispiel diskutieren, nämlich die Relaxationsmoden einer fast planaren Membran, deren Statik in Abschnitt 2.3 behandelt wurde. Die Fragestellung lautet, die Zeitentwicklung der Auslenkung und der Dichten, also von $h(x, y, t)$ und $\rho^\pm(x, y, t)$, zu bestimmen, wenn Anfangsdaten $h(x, y, t = 0)$ und $\rho^\pm(x, y, t = 0)$ gegeben sind. Für die kleinen Längenskalen und Geschwindigkeiten, wie sie bei diesen Phänomenen auftreten, kann der Trägheitsterm ($\sim \rho_f$) in der sogenannten Stokesnäherung vernachlässigt werden. Diese Näherung werden wir zum Schluß rechtfertigen. Es müssen also nur der Druckgradient, die Reibungskräfte innerhalb der Flüssigkeit sowie die von der Membran ausgehenden Kräfte balanciert werden.

Für kleine Auslenkungen $h(x, y)$ und Dichteabweichungen ist auch die von der Membran auf die Flüssigkeit ausgeübte Kraft klein. Daher können alle Gleichungen linearisiert werden, was das Problem lösbar macht. Insbesondere dürfen wir dann annehmen, dass die Kraft $\mathbf{K}^{ex}(\mathbf{r})$ nur in der ($z = 0$)–Ebene lokalisiert ist, weil der Unterschied zwischen

$z = 0$ und der tatsächlichen Lage der Membran, $z = h(x, y)$, zu Korrekturen höherer Ordnung führen würde. Für $z \neq 0$ gilt dann

$$\nabla p = \eta \nabla^2 \mathbf{v}, \quad (58)$$

woraus man mit der Inkompressibilitätsbedingung (57) sofort die Laplacegleichung

$$\nabla^2 p = 0 \quad (59)$$

für den Druck gewinnt. Diese ist mit dem Fourieransatz

$$p = p_q(z) e^{iqx} \quad (60)$$

und der Forderung, daß p für $z \rightarrow \pm\infty$ verschwindet, schnell gelöst

$$p_q(z) = 2\eta q A_{\pm} e^{\mp qz}. \quad (61)$$

Aus den noch freien Amplituden A_{\pm} haben wir den Faktor $2\eta q$ ausgeklammert, was für später günstig ist. Die oberen Vorzeichen gehören zu $z > 0$ und die untere zu $z < 0$. Setzt man dieses Resultat und die Fourierzerlegung¹⁰,

$$\mathbf{v} \equiv \begin{pmatrix} v_x \\ v_y \\ v_z \end{pmatrix} \equiv \begin{pmatrix} w_q(z) \\ 0 \\ u_q(z) \end{pmatrix} e^{iqx}, \quad (62)$$

in (58) ein, findet man für die Geschwindigkeit die Lösung

$$w_q(z) = [\mp i A_{\pm} qz + i(A_{\pm} \mp B)] e^{\mp qz}, \quad (63)$$

und

$$u_q(z) = [A_{\pm} qz + B] e^{\mp qz}, \quad (64)$$

mit der Konstanten B . Hierbei haben wir auch schon die Stetigkeit $v_x(z = +0) = v_x(z = -0)$ verwendet.

Nun müssen wir noch die Kräfte an der Membran balancieren. Da die träge Masse der Membran für die hier interessierenden Moden vernachlässigbar ist, überträgt sich die in der Membran gespeicherte Energie direkt als Kraft auf die Flüssigkeit. Die Normalkomponente K_z^{ex} dieser Kraft ergibt sich aus der Energie (22) über

$$K_z^{ex}(x, y, z) = -\delta(z) \frac{\delta F}{\delta h(x, y)} = -\delta(z) \frac{\partial F}{\partial h_q^*} e^{iqx} = -\delta(z) (\tilde{\kappa} q^4 h_q - 2kdq^2 \rho_q) e^{iqx}. \quad (65)$$

Diese Normalkraft muß durch die viskosen Kräfte in der Flüssigkeit sowie den Druck kompensiert werden. Dieses Kräftegleichgewicht führt zu einer „Sprungbedingung“ bei $z = 0$,

¹⁰Die transversale Geschwindigkeitskomponente v_y kann gleich 0 gesetzt werden, da transversale Wellen nicht an die Auslenkung h koppeln.

die man – analog zum in der Elektrodynamik üblichen Verfahren – aus Integration der Navier–Stokes–Gleichungen (56) über einen Quader, der die Membran enthält, gewinnt. Unter Berücksichtigung der Inkompressibilität (57) findet man so

$$-T_{zz}(z = +0) + T_{zz}(z = -0) = -\frac{\delta F}{\delta h(x, y)}, \quad (66)$$

wobei T_{zz} die (z, z) -Komponente des Spannungstensors

$$T_{ij} \equiv -p\delta_{ij} + \eta(\partial_i v_j + \partial_j v_i) \quad (67)$$

ist, der für $z = \pm 0$ ausgewertet werden muß. Weil die Membran impermeabel ist, sind Auslenkung und Normalgeschwindigkeit der Flüssigkeit an der Membran über

$$\partial_t h_q = u_q(z = 0) = B \quad (68)$$

verknüpft. Setzt man diese Bedingung sowie (63-65) in (66) ein, hat man mit

$$4\eta q \partial_t h_q = -\kappa q^4 h_q + 2kdq^2 \rho_q \quad (69)$$

die Bewegungsgleichung für die Auslenkung h gefunden [21]. Die Amplituden A_{\pm} tauchen hier nicht auf, da wir noch keine Bedingungen an Tangentialkräfte gestellt haben.

6.2 Dynamik im klassischen Modell

Bevor wir die Bewegungsgleichung für die Dichtedifferenz ρ_q herleiten, wollen wir die Konsequenzen einer vereinfachenden Annahme analysieren. Wenn wir annehmen, daß die Dichtedifferenz ρ_q viel schneller als die Auslenkung h_q ist, können wir zu jedem Zeitpunkt die optimale Dichte (24) in (69) einsetzen. Wir finden dann die effektive Bewegungsgleichung

$$4\eta q \partial_t h_q = -\kappa q^4 h_q, \quad (70)$$

die wir auch erhalten hätten, wenn wir die Dynamik von vornherein nur mit der Energie (9) des klassischen Modells bestimmt hätten [3].

Die Bewegungsgleichung (70) läßt sich leicht als überdämpfte Bewegung eines harmonischen Oszillators mit der „Federkonstanten“ κq^4 und dem „Reibungskoeffizienten“ $4\eta q$ interpretieren. Die q -Abhängigkeit des Reibungskoeffizienten reflektiert die langreichweitige Natur der hydrodynamischen Wechselwirkung. Die Lösung von (70) lautet

$$h_q(t) = h_q(0)e^{-\gamma(q)t}, \quad (71)$$

mit der Dämpfungskonstanten

$$\gamma(q) \equiv \kappa q^3 / 4\eta. \quad (72)$$

Die dynamischen Korrelationsfunktion im klassischen Modell erhält man aus (71) indem man beide Seiten mit $h_q^*(0)$ multipliziert und mit dem Boltzmanngewicht $\exp(-F_0/T)$ mittelt. Es ergibt sich

$$\langle h_q(t)h_q^*(0) \rangle = \frac{T}{\kappa q^4} e^{-\gamma(q)t}. \quad (73)$$

Für eine quantitative Abschätzung dieser Resultate verwenden wir die typischen Werte $\eta = 10^{-3} \text{ Js/m}^3$ und $\kappa = 10^{-19} \text{ J}$. Dann ergibt sich für eine Wellenlänge von $10 \mu\text{m}$, also für $q = 2\pi 10^5/\text{m}$, die Rate $\gamma \simeq 6/\text{s}$, was in der experimentell gemessene Größenordnung liegt. Für eine genauere Auswertung der Experimente zum Flickern von quasisphärischen Vesikeln [9] muß die obige Rechnung in Kugelkoordinaten durchgeführt werden [30].

6.3 Gekoppelte Dynamik

Nun wollen wir noch die Modifikation dieses einfachen Bildes zur Dynamik diskutieren, die sich aus einer genaueren Behandlung der Dichten in den Monoschichten ergeben [21].

6.3.1 Kräftebalance in den Monoschichten

Die Bewegungsgleichung für ρ_q wird durch die Kräftebalance der Tangentialkräfte in den beiden Monoschichten bestimmt. Wir stellen zunächst die Navier–Stokes–Gleichungen für jede Monoschicht auf, die wir als zweidimensionale Flüssigkeit in Stokesnäherung beschreiben. Die Kräftebalance lautet dann

$$-\widetilde{\nabla}\sigma^\pm \pm T_{zz}(z = \pm 0) + \mu\widetilde{\nabla}^2\widetilde{v}^\pm \mp b(\widetilde{v}^+ - \widetilde{v}^-) = 0, \quad (74)$$

wobei die Tilde zweidimensionale Größen bezeichnet. Die vier Kraftdichten in (74) sind

(i) der Gradient des zweidimensionalen Drucks σ^\pm in jeder Monoschicht. Dieser ist durch eine Zustandsgleichung mit der Dichte verknüpft, wobei wir vereinfachend annehmen, daß der Druck proportional zur Abweichung der Dichte ϕ^\pm von der Gleichgewichtsdichte ist also

$$\sigma^\pm = k(\rho^\pm \pm d\widetilde{\nabla}^2 h); \quad (75)$$

(ii) die von der Flüssigkeit tangential auf die Membran ausgeübte Scherreibung, die durch den Spannungstensor $T_{zz}(z = \pm 0)$ ausgedrückt wird;

(iii) Scherreibung innerhalb der zweidimensionalen Lipidflüssigkeit einer jeden Monoschicht, wobei μ deren Viskosität ist;

(iv) eine Reibungskraft zwischen den beiden Monoschichten, die wir als proportional zur Geschwindigkeitsdifferenz annehmen, wobei b der entsprechende Reibungskoeffizient ist.

Die Dichten in den beiden Monoschichten sind mit dem Geschwindigkeitsfeld in den beiden Monoschichten über zwei Kontinuitätsgleichungen verknüpft, die in den kleinen Größen ρ^\pm und \tilde{v}^\pm

$$\partial_t \rho^\pm = -\tilde{\nabla} \cdot \tilde{v}^\pm, \quad (76)$$

lauten. Hierbei nehmen wir an, daß die zweidimensionalen Geschwindigkeiten \tilde{v}^\pm in der Mittelebene der Doppelschicht definiert sind, weil sie dann direkt dem materiellen Fluß der Lipide entsprechen. Diese Geschwindigkeit koppeln wir mit einer „no-slip“-Randbedingung

$$\tilde{v}^\pm = v_x(z = \pm 0)\mathbf{e}_x \quad (77)$$

an die Tangentialkomponente der dreidimensionalen Flüssigkeit. Wertet man die Kräftebalance (74) und die Kontinuitätsgleichungen mit (61-64) aus, lassen sich die Konstanten A_\pm zugunsten von $\partial_t \rho_q$ und $\partial_t \bar{\rho}_q$ eliminieren. Damit hat man für ρ_q eine Bewegungsgleichung gefunden, die sich mit der für h_q (69) zu dem gekoppelten System

$$\frac{\partial}{\partial t} \begin{pmatrix} h_q \\ \rho_q \end{pmatrix} = -\mathbf{A} \begin{pmatrix} h_q \\ \rho_q \end{pmatrix} \equiv - \begin{pmatrix} \tilde{\kappa} q^3 / 4\eta & -qkd/2\eta \\ -kdq^4 & kq^2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} h_q \\ \rho_q \end{pmatrix} \quad (78)$$

zusammenfassen läßt. (Die Bewegungsgleichung für die mittlere Dichte $\bar{\rho}_q$, die nicht an die Auslenkung koppelt, ist in [21] diskutiert.)

6.3.2 Dispersionsrelation

Die dynamische Matrix \mathbf{A} hat zwei Eigenwerte $\gamma_{1,2}(q)$, deren q -Abhängigkeit in Abb.14 gezeigt ist. Es gibt drei charakteristische q -Bereiche, die durch zwei Übergangswellenvektoren $q_1 \equiv 2\eta k / b\tilde{\kappa}$ und $q_2 \equiv \sqrt{2b/\mu}$ getrennt sind:

$$\gamma_1 \approx \begin{cases} \frac{\tilde{\kappa}}{4\eta} q^3, & q \ll q_1 \\ \frac{k}{2b} \frac{\tilde{\kappa}}{\tilde{\kappa}} q^2, & q_1 \ll q \ll q_2 \\ \frac{k}{\mu} \frac{\tilde{\kappa}}{\tilde{\kappa}}, & q_2 \ll q \end{cases} \quad \gamma_2 \approx \begin{cases} \frac{k}{2b} q^2, & q \ll q_1 \\ \frac{\tilde{\kappa}}{4\eta} q^3, & q_1 \ll q. \end{cases} \quad (79)$$

Die Physik hinter diesen Relationen läßt sich leicht verstehen. Für kleine q finden wir das Resultat (72) des klassischen Modells wieder, das einer Biegemode bei relaxierter Dichte entspricht. In diesem Bereich sind die Biegemoden in der Tat so langsam, daß die Dichte sich an die momentane Konformation anpassen kann.

Die zweite Relaxationsfrequenz γ_2 läßt sich für kleine q als Zeitskala für den Ausgleich einer Dichtedifferenz zwischen den beiden Moden verstehen. Prägt man einer planaren Membran eine Dichtedifferenzmode ρ_q auf, kann diese zerfallen, indem die Monoschichten sich lokal übereinanderschieben. Die treibende Kraft für diesen Prozeß ist proportional zu

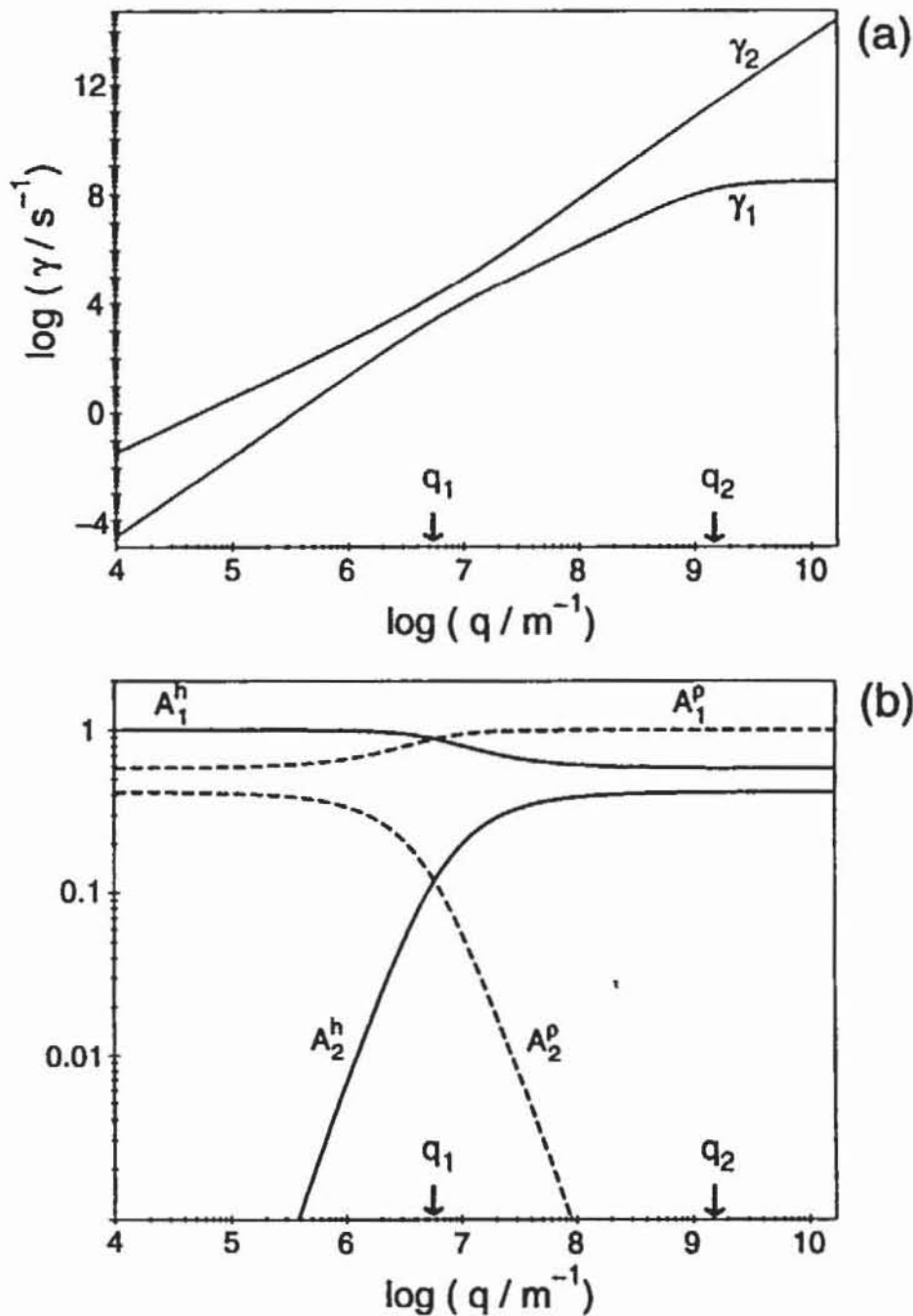


Abbildung 14: Dispersionsrelation (a) und Amplituden der Korrelationsfunktionen (80) (b) für die gekoppelte Dynamik [21, 44]. Die Parameter sind $\kappa = 10^{-19}$ J, $k = .07$ J/m², $d = 1$ nm, $\eta = 10^{-3}$ J s/m³, $\mu = 10^{-10}$ J s/m² und $b = 10^8$ J s/m⁴.

k , die Dämpfung geht wie b und die q^2 -Abhängigkeit rührt von der Tatsache her, daß ρ eine Erhaltungsgröße ist. Der Übergangswellenvektor q_1 liegt gerade da, wo die Zeitskalen für die Dichterelaxation und für den Zerfall einer Biegemode übereinstimmen. In diesem q -Bereich lassen sich Dichte- und Biegemode nicht trennen. Für $q \gg q_1$ dagegen, läßt sich γ_2 in der Form $\gamma_2 = \tilde{\kappa}q^4/4\eta q$ schreiben. Diese Form zeigt, daß für eine Biegemode nun die Dichte nicht mehr schnell genug relaxieren kann; die Biegung findet jetzt bei eingefrorener Dichte statt, wie sie durch (26) beschrieben wird.

Der zweite Übergangswellenvektor q_2 gibt den Wellenvektor an, ab dem die Reibung in der Membran nicht mehr primär zwischen den beiden Monoschichten sondern innerhalb einer Monoschicht durch Scherreibung stattfindet.

Für eine Abschätzung der Wellenlänge bei der die Kopplung zwischen Dichtedifferenz und Biegemode relevant wird, brauchen wir einen Wert für den Reibungskoeffizienten b , für den in der Literatur Werte in der Größenordnung von $b \simeq 10^8 \text{ Js/m}^4$ angegeben werden [45]. Mit $k = 10^{-1} \text{ J/m}^2$, $\eta = 10^{-3} \text{ Js/m}^3$ und $d = 1 \text{ nm}$ erhält man dann $q_1 \simeq 10^7/\text{m}$, was einer Wellenlänge im Mikrometerbereich entspricht. Für dynamische Phänomene, die sich auf größerer Längenskala abspielen, wird sich die Dichte immer an die lokale Form anpassen. Für die Dynamik auf kürzerer Längenskala reicht die Zeit für diese Dichteanpassung nicht mehr; die Membran wird effektiv steifer.

6.3.3 Dynamische Korrelationsfunktionen

Wegen der Kopplung zwischen Dichte und Auslenkung sind die dynamischen Korrelationsfunktionen durch biexponentiellen Zerfall gekennzeichnet. Man findet ähnlich wie im vorigen Abschnitt

$$\langle h_q(t)h_q^*(0) \rangle = \langle h_q h_q^* \rangle (A_1^h e^{-\gamma(q)t} + A_2^h e^{-\gamma_2(q)t}) \quad (80)$$

mit $A_1^h + A_2^h = 1$. Eine entsprechende Gleichung gilt für die Dichtekorrelationen (und für die im folgenden nicht weiter betrachteten Kreuzkorrelationen zwischen Dichte und Auslenkung). Die Koeffizienten A_1^h, A_2^h, A_1^p und A_2^p sind auch in Abb.14 angegeben. Interessant ist, daß für alle $q > q_1$ die Höhen-Höhen-Korrelationsfunktion einen nicht verschwindenden Beitrag in der langsamen q^2 -Relaxation enthält [44].

Experimentell ist dieser Effekt bei unilamellaren Membranen bis jetzt noch nicht nachgewiesen. Einerseits ist die gekoppelte Dynamik in der Kugelgeometrie noch nicht gerechnet, andererseits zeigt die Abschätzung für q_1 , daß diese Kopplung vermutlich erst an der unteren Grenze des optisch zugänglichen relevant wird. An multilamellaren Schichten wurde mit Neutronenbeugung bei kleinen Wellenlängen jedoch eine langsame Mode gemessen [46], die durch die Kopplung zwischen Auslenkung und Dichtedifferenz interpretiert werden kann [21].

6.3.4 Rechtfertigung der Stokesapproximation

Zum Schluß soll noch die Stokesapproximation gerechtfertigt werden. Das Verhältnis Re des vernachlässigten Trägheitsterm in (56) zum Scherterm beträgt

$$Re(q) \equiv (\rho_f/\eta)(\gamma(q)/q^2), \quad (81)$$

wenn $\partial_t = \gamma(q)$ und $\nabla^2 = q^2$ gesetzt wird. Setzt man die angegebenen Werte (79) ein, sieht man, daß die Reynoldszahl $Re(q)$, die vom Wellenvektor abhängt, für alle sinnvollen Wellenvektoren klein gegen 1 ist. Hätten wir jedoch auch die Dispersionsrelation für die nicht an die Form koppelnde mittlere Dichteabweichung $\bar{\rho}_q$ in der Stokesnäherung diskutiert, wäre diese Konsistenzüberprüfung negativ ausgefallen. Für eine Beschreibung der propagierenden Schallwellen in der Membran muß der Trägheitsterm in der Membran mitgenommen werden [21].

7 Wechselwirkung und Adhäsion

Bisher haben wir immer nur eine isolierte Membran oder ein einzelnes Vesikel betrachtet. In vielen Situationen sind Membranen aber so dicht beisammen, daß sie sich gegenseitig beeinflussen. Beispiele sind einerseits multilamellare Phasen [13, 14, 16], in denen die Doppelschichten Abstände im Nanometerbereich haben, oder – passender zu den hier diskutierten Themen – Vesikel, die aneinander oder an einem Substrat adhäreren [47]. Im letzten Fall erlaubt die gut definierte Geometrie quantitative Messungen der durch die Adhäsion bestimmten Form und Formfluktuationen [11].

7.1 Kräfte zwischen Membranen

Die Kräfte zwischen Membranen oder Membranen und Substraten sind zweifachen Ursprungs. Zum einen gibt es die *direkten* Wechselwirkungen [48]. Hierzu zählen zum Beispiel elektrische Wechselwirkungen bei geladenen Membranen. In wässriger Lösung ist diese Wechselwirkung abgeschirmt, sobald die Abstände größer als die Debyelänge werden. Die langreichweitige van der Waals-Kraft rührt von fluktuierenden Dipolen in der Materie her. Bei kleinen Abständen dominiert die sogenannte Hydratationskraft, die exponentiell auf der Skala von einigen Angstrom abfällt. Sie kommt einerseits vom Entropieverlust, den das Wasser erleidet, wenn es sich im Kopfgruppenbereich ordnen muß. Eine zweite Quelle für diese Kraft stammt von lokalen Fluktuationen der Lipidmoleküle aus der Membranebene heraus [49]. Mit der letztgenannten Kraft sind auch schon die *entropischen* Wechselwirkungen angesprochen. Deren wichtigste rührt vom Entropieverlust der Biegemoden her, die durch eine zweite Membran oder ein Substrat eingeschränkt werden [50].

7.2 Fast planare Membran im Potential

In diesem Abschnitt werden wir kurz den paradigmatischen Fall einer Membran, die wir im klassischen Modell ohne Dichteveriablen beschreiben wollen, in der Umgebung eines

Substrates betrachten. Lokal hat die Membran den Abstand $l(\mathbf{x})$ von einem Substrat bei $l = 0$. Die direkten Kräfte können in einem Potential $V(l)$ zusammengefaßt werden. Die Gesamtenergie einer Membran lautet dann

$$F = \int dx dy \frac{\kappa}{2} (\nabla^2 l)^2 + V(l) \approx \frac{\kappa}{2} \int dx dy [(\nabla^2 h)^2 + \xi^{-4} h^2]. \quad (82)$$

Für die zweite Umformung haben wir das Potential um das Minimum bei $l = l_0$ entwickelt, die Relativkoordinate

$$h(\mathbf{x}) \equiv l(\mathbf{x}) - l_0 \quad (83)$$

eingeführt und die parallele Korrelationslänge

$$\xi \equiv [\kappa/d^2 V/dl^2|_{l=l_0}]^{1/4} \quad (84)$$

definiert. Ihre Bedeutung wird klar, wenn wir wieder in die Fourierdarstellung für eine Mode mit Amplitude $h_{\mathbf{q}}$ gehen. Die Energie lautet dann

$$F = \frac{\kappa}{2} \int \frac{d^2 q}{(2\pi)^2} (q^4 + \xi^{-4}) h_{\mathbf{q}} h_{\mathbf{q}}^*, \quad (85)$$

woraus sich die Korrelationsfunktion als

$$\langle h_{\mathbf{q}} h_{\mathbf{q}}^* \rangle = \frac{T}{\kappa(q^4 + \xi^{-4})} \quad (86)$$

ergibt. Wenn wir zurück in den Ortsraum gehen, erhalten wir für das mittlere Auslenkungsquadrat

$$\langle h^2 \rangle = \int \frac{d^2 q}{(2\pi)^2} \langle h_{\mathbf{q}} h_{\mathbf{q}}^* \rangle = \frac{T}{2\pi\kappa} \int_0^\infty dq \frac{q}{q^4 + \xi^{-4}} = \frac{T}{8\kappa} \xi^2. \quad (87)$$

Fluktuationen auf Skalen größer als ξ werden also vom Potentialterm ξ^{-4} abgeschnitten.

Das Ignorieren der Bedingung $h(\mathbf{x}) > -l_0$, die einer undurchdringlichen Wand entspricht, ist nur zulässig, wenn $\langle h^2 \rangle \ll l_0^2$ gilt. Denn falls diese Ungleichung nicht erfüllt ist, sind die mittleren Auslenkungen größer als die Separation von der Wand, was für eine undurchdringliche Wand nicht sein darf. Setzt man konkrete Ausdrücke für das Potential $V(l)$ ein, sieht man jedoch, daß diese Ungleichung oft verletzt ist. In diesem Fall muß die Präsenz der Wand folgendermaßen berücksichtigt werden.

7.3 Sterische Abstoßung

Die Gegenwart der Wand schränkt die Fluktuationen der Membran ein. Diese Reduktion der Entropie läßt sich durch ein abstoßenden Potential $V_{fl}(l)$ beschreiben, das wir jetzt durch eine Selbstkonsistenzbetrachtung herleiten. Wir nehmen ein direktes lineares Potential $V(l) = pl$ an, welches die Membran gegen die Wand drückt. Für den fiktiven

Fall von $T = 0$ wäre die Membran bei $l_0 = 0$ an der Wand im Minimum. Bei endlicher Temperatur werden die Fluktuationen die Membran im Mittel von der Wand wegtreiben, was wir durch ein zusätzliches Potential $V_{fl}(l) = A/l^\tau$ mit noch unbekannter Amplitude A und Exponenten τ beschreiben wollen. Das Gesamtpotential lautet also

$$V(l) = A/l^\tau + pl. \quad (88)$$

Für die Korrelationslänge ξ ergibt sich aus (84) $\xi = (\kappa l_0^{\tau+2}/A\tau(\tau+1))^{1/4}$. Mit diesem Ausdruck erhält man mit (87) für die mittlere Auslenkungen

$$\langle h^2 \rangle = \frac{T}{8\kappa} \left(\frac{\kappa l_0^{\tau+2}}{A\tau(\tau+1)} \right)^{1/2} \quad (89)$$

Die Selbstkonsistenzforderung lautet nun, daß dieser Wert (bis auf einen numerischen Faktor) gerade l_0^2 entspricht. Wäre $\langle h^2 \rangle$ kleiner, hätte das Potential $V_{fl}(l)$ den Einfluß der Wand überschätzt; wäre er größer, würden die Fluktuationen die Membran immer noch durch die Wand treiben. Aus der Bedingung $\langle h^2 \rangle \sim l_0^2$ erhält man also

$$V_{fl}(l) \sim \frac{T^2}{\kappa l^2} \quad (90)$$

als Potential der sterischen Abstoßung, die nach ihrem Entdecker auch Helfrich-Wechselwirkung heißt [50]. Diese Wechselwirkung ist in der Tat langreichweitig, sie steigt mit der Temperatur und sinkt mit der Biegesteifigkeit.

Die obige Herleitung des Einflusses der Fluktuationen auf die Wechselwirkung hängt nicht daran, daß wir ein lineares Potential als direkte Wechselwirkung angenommen haben. Jedes andere langreichweitige Potential $\sim l^\tau$ mit $\tau > -2$ hätte zum selben Ergebnis geführt, wie sich leicht nachprüfen läßt. Für kürzerreichweitige direkte Wechselwirkungen jedoch ist es nicht mehr möglich, den Effekt der harten Wand einfach durch ein zusätzliches Potential, das den direkten Wechselwirkungen überlagert wird, zu beschreiben. In diesem Fall müssen dann Renormierungsgruppenmethoden angewendet werden, deren Beschreibung hier zu weit führen würde [51].

8 Ausblick

Um die Physik der Membranen einigermaßen erschöpfend zu behandeln, sollte ihnen eine ganze Ferienschule gewidmet werden. In diesem Beitrag konnten nach dem grundlegenden Konzept der Krümmungsenergie nur ein paar aktuelle Aspekte etwas tiefer beleuchtet werden. Dies sollte einen Einblick in die Vielfalt der Methoden, die in diesem aktuellen Forschungsgebiet zur Anwendung kommen, vermitteln.

Diese Methoden lassen sich nun auch auf verwandte Systeme anwenden. So haben wir nur einkomponentige symmetrische Membranen betrachtet. Alle biologischen Membranen bestehen jedoch aus mehreren Komponenten [1, 52]. Bereits bei zweikomponentigen Systemen treten interessante Phänomene auf, die von einer Kopplung der lokalen Zusammensetzung der Membran (einem „inneren“ Freiheitsgrad) an die lokale Krümmung (einem „äußeren“ Freiheitsgrad) herrühren. Der vermutlich spektakulärste Effekt ist die Möglichkeit einer planaren Membran bei Entmischung die Linienenergie einer Domäne dadurch herunterzusetzen, daß die Domäne in die dritte Dimension ausweicht und eine Knospe bildet [53, 54]. Dies vermindert die Länge der Domänenwand auf Kosten der Krümmungsenergie. Wegen der unterschiedlichen Skalenabhängigkeit beider Energien, gewinnt für große Domänen immer die Knospung. Aber selbst wenn sich die beiden Komponenten in einer planaren Membran mischen, induzieren Formumwandlungen Phase-segregation, wenn zum Beispiel eine Komponente sich vorzugsweise im Bereich hoher Krümmung anlagert [55]. Wie weit diese theoretisch vorhergesagten Phänomene mit der kürzlich beobachteten starken Knospung von Vesikeln einer natürlichen Lipidmischung [56] und mit biologischen „Sortiervorgängen“ im allgemeinen zu tun haben, ist noch unklar.

Neben den in diesem Beitrag besprochenen fluiden Membranen gibt es eine zweite Klasse von Membranen, bei denen die Moleküle nicht mehr frei diffundieren. Diese Klasse umfaßt einerseits die Gelphasen, die man aus den hier besprochenen Membranen durch Abkühlen erhält, sowie polymerisierte Membranen, bei denen die Lipidmoleküle quervernetzt sind [14]. Je nach Lipid gibt es mehrere Gelphasen, wovon eine auch eine geriffelte Textur haben kann. Diese Membranen können nun Scherkräften widerstehen. Biegt man eine solche Membran, koppelt dies an Verzerrungen in der Membranebene. Thermisch angeregte Fluktuationen der Verzerrungsmoden führen zu einer Versteifung der Membran auf großen Längenskalen. Diese theoretisch mit Renormierungsgruppenmethoden sowie Simulationen intensiv untersuchten Fragen sind vermutlich auch relevant für ein Verständnis der elastischen Eigenschaften der Blutzellenmembran, die sich wegen des Polymernetzwerk auf großen Skalen wie eine polymerisierte Membran verhalten sollte.

Literatur

- [1] B. Alberts, D. Bray, J. Lewis, M. Raff, K. Roberts, and J.D. Watson. *Molecular biology of the cell*. Garland, New York, second edition, 1989.
- [2] E. Sackmann. Molecular and global structure and dynamics of membranes and lipid bilayers. *Can. J. Phys.*, 68:999–1012, 1990.

- [3] F. Brochard and J.F. Lennon. Frequency spectrum of the flicker phenomenon in erythrocytes. *J. Physique*, 36:1035–1047, 1975.
- [4] J. Käs and E. Sackmann. Shape transitions and shape stability of giant phospholipid vesicles in pure water induced by area-to-volume changes. *Biophys. J.*, 60:825–844, 1991.
- [5] K. Berndl, J. Käs, R. Lipowsky, E. Sackmann, and U. Seifert. Shape transformations of giant vesicles: Extreme sensitivity to bilayer asymmetry. *Europhys. Lett.*, 13:659–664, 1990.
- [6] U. Seifert. Vesicles of toroidal topology. *Phys. Rev. Lett.*, 66:2404–2407, 1991.
- [7] B. Fourcade, M. Mutz, and D. Bensimon. Experimental and theoretical study of toroidal vesicles. *Phys. Rev. Lett.*, 68:2551–2554, 1992.
- [8] X. Michalet, D. Bensimon, and B. Fourcade. Fluctuating vesicles of high topological genus. *Phys. Rev. Lett.*, in press.
- [9] H.P. Duwe, J. Käs, and E. Sackmann. Bending elastic moduli of lipid bilayers: Modulation by solutes. *J. Phys. France*, 51:945–962, 1990.
- [10] E. Evans. Adhesion of surfactant-membrane covered droplets: Special features and curvature elasticity effects. *Colloids and Surfaces*, 43:327–347, 1990.
- [11] J. Rädler. PhD thesis, TU-München, 1993.
- [12] R. Lipowsky. The conformation of membranes. *Nature*, 349:475–481, 1991.
- [13] R. Lipowsky, D. Richter, and K. Kremer, editors. *The Structure and Conformation of Amphiphilic Membranes*, volume 66 of *Springer Proceedings in Physics*. Springer, Berlin, 1991.
- [14] D. Nelson, T. Piran, and S. Weinberg, editors. *Statistical Mechanics of Membranes and Surfaces*. World Scientific, Singapore, 1989.
- [15] D. Beysens, N. Boccara, and G. Forgacs, editors. *Dynamical Phenomena at Interfaces, Surfaces and Membranes*. Nova Science, New York, 1991.
- [16] G. Gompper and M. Schick. Self-assembling amphiphilic systems. In C. Domb and J. Lebowitz, editors, *Phase Transition and Critical Phenomena*. Academic, London, 1994.
- [17] A. Goetz. *Introduction to Differential Geometry*. Addison Wesley, Reading, 1970.

- [18] P.B. Canham. The minimum energy of bending as a possible explanation of the biconcave shape of the human red blood cell. *J. Theoret. Biol.*, 26:61–81, 1970.
- [19] W. Helfrich. Elastic properties of lipid bilayers: Theory and possible experiments. *Z. Naturforsch.*, 28c:693–703, 1973.
- [20] P.G. de Gennes and C. Taupin. Microemulsions and the flexibility of oil/water interfaces. *J. Phys. Chem.*, 86:2294–2304, 1982.
- [21] U. Seifert and S.A. Langer. Viscous modes of fluid bilayer membranes. *Europhys. Lett.*, 23:71–76, 1993.
- [22] L.D. Landau and E.M. Lifshitz. *Elastizitätstheorie*. Akademie-Verlag, Berlin, 1989.
- [23] U. Seifert, L. Miao, H.-G. Döbereiner, and M. Wortis. Budding transition for bilayer fluid vesicles with area-difference elasticity. In R. Lipowsky, D. Richter, and K. Kremer, editors, *The Structure and Conformation of Amphiphilic Membranes*, volume 66 of *Springer Proceedings in Physics*, pages 93–96, 1991.
- [24] L. Miao, U. Seifert, M. Wortis, and H.-G. Döbereiner. Budding transitions of fluid-bilayer vesicles: The effect of area-difference elasticity. *Phys. Rev. E*, in press.
- [25] E.A. Evans. Bending resistance and chemically induced moments in membrane bilayers. *Biophys. J.*, 14:923–931, 1974.
- [26] S. Svetina and B. Zeks. Membrane bending energy and shape determination of phospholipid vesicles and red blood cells. *Eur. Biophys. J.*, 17:101–111, 1989.
- [27] W. Wiese, W. Harbich, and W. Helfrich. Budding of lipid bilayer vesicles and flat membranes. *J. Phys.: Cond. Matter*, 4:1647–1657, 1992.
- [28] B. Bozic, S. Svetina, B. Zeks, and R.E. Waugh. Role of lamellar membrane structure in tether formation from bilayer vesicles. *Biophys. J.*, 61:963–973, 1992.
- [29] Z.-C. Ou-Yang and W. Helfrich. Bending energy of vesicle membranes: General expressions for the first, second and third variation of the shape energy and applications to spheres and cylinders. *Phys. Rev. A*, 39:5280–5288, 1989.
- [30] S.T. Milner and S.A. Safran. Dynamical fluctuations of droplet microemulsions and vesicles. *Phys. Rev. A*, 36:4371–4379, 1987.
- [31] H.J. Deuling and W. Helfrich. The curvature elasticity of fluid membranes: A catalogue of vesicle shapes. *J. Physique*, 37:1335–1345, 1976.

- [32] L. Miao, B. Fourcade, M. Rao, M. Wortis, and R.K.P. Zia. Equilibrium budding and vesiculation in the curvature model of fluid lipid vesicles. *Phys. Rev. A*, 43:6843–6856, 1991.
- [33] U. Seifert, K. Berndl, and R. Lipowsky. Shape transformations of vesicles: Phase diagrams for spontaneous-curvature and bilayer-coupling models. *Phys. Rev. A*, 44:1182–1202, 1991.
- [34] M.A. Peterson. An instability of the red blood cell shape. *J. Appl. Phys.*, 57:1739–1742, 1985.
- [35] U. Seifert. Unpublished, 1993.
- [36] V. Heinrich, M. Brumen, R. Heinrich, S. Svetina, and B. Zeks. Nearly spherical vesicle shapes calculated by use of spherical harmonics: Axisymmetric and nonaxisymmetric shapes and their stability. *J. Phys. II France*, 2:1081–1108, 1992.
- [37] T.J. Willmore. *Total curvature in Riemannian geometry*. Ellis Horwood, Chicester, 1982.
- [38] U. Pinkall and I. Sterling. Willmore surfaces. *The Mathematical Intelligencer*, 9:38–43, 1987.
- [39] F. Jülicher, U. Seifert, and R. Lipowsky. Phase diagrams and shape transformations of toroidal vesicles. *J. Phys. II France*, 3:1681–1705, 1993.
- [40] F. Jülicher, U. Seifert, and R. Lipowsky. Conformal degeneracy and conformal diffusion of vesicles. *Phys. Rev. Lett.*, 71:452–455, 1993.
- [41] H.B. Lawson. Complete minimal surfaces in S^3 . *Ann. Math.*, 92:335–374, 1970.
- [42] R. Kusner. Comparison surfaces for the Willmore problem. *Pacific J. Math.*, 138:317–345, 1989.
- [43] U. Seifert. Conformal transformations of vesicle shapes. *J. Phys. A: Math. Gen.*, 24:L573–L578, 1991.
- [44] M. Kraus and U. Seifert. unpublished.
- [45] E. Evans, A. Yeung, R. Waugh, and J. Song. Dynamic coupling and nonlocal curvature elasticity in bilayer membranes. In R. Lipowsky, D. Richter, and K. Kremer, editors, *The Structure and Conformation of Amphiphilic Membranes*, volume 66 of *Springer Proceedings in Physics*, pages 148–153, 1991.

- [46] W. Pfeiffer, S. König, J.F. Legrand, T. Bayerl, D. Richter, and E. Sackmann. Neutron spin echo study of membrane undulations in lipid multibilayers. *Europhys. Lett.*, 23:457–462, 1993.
- [47] U. Seifert and R. Lipowsky. Adhesion and unbinding of vesicles. In D. Beysens, N. Boccara, and G. Forgacz, editors, *Dynamical phenomena at interfaces, surfaces and membranes*, pages 295–304, New York, 1991. Nova Science.
- [48] J.N. Israelachvili. *Intermolecular and Surface Forces*. Academic, London, second edition, 1991.
- [49] R. Lipowsky and S. Grotehans. Hydration vs. protrusion forces between lipid bilayers. *Europhys. Lett.*, 23:599–604, 1993.
- [50] W. Helfrich. Steric interaction of fluid membranes in multilayer systems. *Z. Naturforsch.*, 33a:305–315, 1978.
- [51] R. Lipowsky. Shape fluctuations and critical phenomena. In H. van Beijeren, editor, *Fundamental Problems in Statistical Mechanics VII*, pages 139–170. Elsevier Science, 1990.
- [52] C. Gebhardt, H. Gruler, and E. Sackmann. On domain structure and local curvature in lipid bilayers and biological membranes. *Z. Naturforsch.*, 32c:581–596, 1977.
- [53] R. Lipowsky. Budding of membranes induced by intramembrane domains. *J. Phys. II France*, 2:1825–1840, 1992.
- [54] F. Jülicher and R. Lipowsky. Domain-induced budding of vesicles. *Phys. Rev. Lett.*, 70:2964–2967, 1993.
- [55] U. Seifert. Curvature-induced lateral phase segregation in two-component vesicles. *Phys. Rev. Lett.*, 70:1335–1338, 1993.
- [56] H.-G. Döbereiner, J. Käs, D. Noppl, I. Sprenger, and E. Sackmann. Budding and fission of vesicles. *Biophys. J.*, 65:1396–1403, 1993.