

# Kapitel 6

## Zusammenfassung

Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Untersuchungen zum Quellen von PC-Vielschichtsystemen in Überschußwasser zeigen, daß es maßgeblich von der verwendeten Präparationsart abhängt, ob sich die fluiden Membranen endgültig voneinander trennen oder einen einheitlichen, für das System charakteristischen Abstand der vollen Hydratisierung dauerhaft einnehmen. Durch die Entwicklung einer neuen Präparationsart für die Röntgenbeugung konnte der Vorgang des Abbaus der lamellaren Ordnung erstmals detailliert untersucht werden.

Im Verlauf des durch Zugabe von Wasser eingeleiteten Quellprozesses kann durch Röntgenbeugung am Vielschichtsystem zwischen zwei Stadien unterschieden werden. Zunächst nimmt das System Wasser auf, bis es der vollen Hydratisierung sehr nahe ist. Daraufhin nimmt die Intensität der Beugungsordnungen systematisch ab, was einem Abbau der lamellaren Ordnung entspricht. Währenddessen ändert sich der Schichtabstand kaum noch.

Der beschriebene Prozeß wurde im System DOPC/Wasser bei konstant gehaltener Temperatur zwischen  $15^{\circ}\text{C}$  und  $65^{\circ}\text{C}$  beobachtet. Die Dauer beider Stadien ist von der Quelltemperatur abhängig. Sie werden mit steigender Temperatur in immer kürzerer Zeit durchlaufen. Der Schichtabstand im zweiten Stadium zeigt dieselbe Temperaturabhängigkeit wie aus der Literatur bekannt. Dabei nimmt er jedoch im Mittel einen um  $0.3\text{\AA}$  größeren Wert ein.

Für den während des zweiten Stadiums beobachteten Anstieg der Halbwertsbreite der Beugungsordnungen kommen in Einzelfällen als eine Ursache koexistierende, um weniger als  $0.5\text{\AA}$  abweichende Schichtabstände in Frage. Als weiterer Einfluß wird eine Zunahme der Unordnung in Betracht gezogen, wie sie durch die parakristalline Theorie für Vielschichtsysteme vorhergesagt wird. Die durch Temperaturerhöhung noch im ersten Stadium vorübergehend eingeleitete Verbreiterung kann im wesentlichen auf die Koexistenz unterschiedlicher Schichtabstände zurückgeführt werden. Mit Hilfe optischer Methoden wurde geklärt, daß der Beginn des Abbaus der Ordnung mit der Entstehung neuer Membranstrukturen einhergeht. Die Bildung der Strukturen setzt in allen Bereichen der Probe innerhalb eines kurzen Zeitraumes ein. Dies wurde auch aus den Röntgenuntersuchungen an Probenbereichen geschlossen, die sich in der Kapillare gegenüberliegen.

Alle neu entstandenen optisch homogenen Quellstrukturen, die mit polarisationsmikroskopischen Methoden untersucht wurden, weisen einen mittleren Abstand auf,

der den des voll hydratisierten Vielschichtsystems um fast zwei Größenordnungen übertrifft. Dementsprechend wurden beim Abbau der lamellaren Ordnung keine neuen Beugungsordnungen beobachtet. Das Signal verschwindet im leicht erhöhten Streuuntergrund.

Als mögliche Ursache für den Abbau der lamellaren Ordnung kommt ein Mechanismus in Frage, der durch die Berücksichtigung von Beiträgen höherer Ordnung zur Biegeelastizität beschrieben werden kann. Die Auswirkung der Beiträge höherer Ordnung auf die Undulationen einer einzelnen Membran wurde erstmals anhand der Parameter abgeschätzt, die bei Monte-Carlo-Simulationen ausgehend von einer ebenen Membran zu einer Überstruktur führen. Dazu wurde ein Modell lokaler Fluktuationsmoden verwendet. Es sagt voraus, daß das mittlere Amplitudenquadrat der Undulationen einer einzelnen Membran durch die Beiträge höherer Ordnung deutlich zunimmt. Da die Undulationen innerhalb des Vielschichtsystems unterdrückt sind, trennen sich jeweils die äußersten Membranen sukzessive vom Stapel, während er weiter innen seine Ordnung beibehält. Der beobachtete Abbau der lamellaren Ordnung ist also nach diesem Erklärungsansatz als ein Abquellprozeß der äußersten Membranen vom Vielschichtsystem zu verstehen.

Die Untersuchungen zu optisch isotropen Objekten im System DGDG/Wasser/-NaCl beruhen im wesentlichen auf lichtmikroskopischen Methoden (Phasenkontrast, Polarisation). Die sonst in diesem System unüblichen isotropen Objekte bilden sich nur, wenn eine geeignete Präparationsart eingesetzt wird.

Die Proben sind so präpariert, daß die Membranschichten nach der Zugabe der Lösung im wesentlichen parallel zum Substrat ausgerichtet sind. Im Verlauf des Quellprozesses dünnt das Vielschichtsystem aus. Es konnte gezeigt werden, daß isotrope Objekte bei einer konstant gehaltenen Quelltemperatur von  $50^{\circ}\text{C}$  spontan innerhalb des ausgedünnten Vielschichtsystems entstehen, wenn die verwendete Lösung eine Salzkonzentration größer als  $5\text{mMNaCl}$  besitzt. Für die spontane Bildung der isotropen Objekte wird das Aufkonzentrieren einer optisch nicht auflösbaren, sog. dispersen Phase in der Lösung verantwortlich gemacht. Die Beobachtungen lassen sich durch die Annahme erklären, daß die disperse Phase oberhalb einer Grenzkonzentration mit isotropen Objekten koexistiert. Neben der Bildung isotroper Objekte über eine disperse Phase wurde auch ein direkter Entstehungsmechanismus beobachtet. Dabei wird Material aus dem Vielschichtsystem über sichtbare Membranbrücken zum isotropen Objekt transportiert und dort inkorporiert.

Durch Ausnutzen der Kontrastumkehr, den isotrope Objekte zeigen, konnte eine Abschätzung ihrer Lipidkonzentration vorgenommen werden. Die Viskosität isotroper Objekte und des umgebenden Mediums wurde durch die optische Beobachtung der Brownschen Bewegung kleiner Sonden eingegrenzt. Mit Röntgenbeugung durchgeführte Untersuchungen zeigen, daß die isotropen Objekte keine geordnete Struktur bis zu Schichtabständen von  $700\text{\AA}$  aufweisen. Dies stimmt mit einem einfachen Strukturmodell für die disperse Phase überein, in welchem Beiträge höherer Krümmungsordnung zur Biegeenergie von Membranformen berücksichtigt werden. Häufig bildet sich die lamellare Phase vollständig zurück, so daß die isotropen Objekte vollständig von der Lösung umgeben sind. Bei Temperaturerhöhung findet eine Phasensegregation statt: Innerhalb des Objektes bilden sich abgegrenzte Bereiche geringerer Lipidkonzentration, während in der umgebenden Lösung neue isotrope

Objekte ausfallen. Durch eine Temperaturabsenkung lösen sich isotrope Objekte in vielen Fällen auf. Bei einer Temperatur von  $24^{\circ}\text{C}$  verschwindet die Phasengrenze zwischen dem Objekt und der Umgebung sehr langsam. Die genannten Beobachtungen deuten darauf hin, daß das Phasendiagramm des untersuchten Systems eine Entmischungszone mit einem unteren kritischen Punkt im Bereich der Raumtemperatur aufweist.

