

# Kapitel 7

## Der Weg zur ungeordneten Überstruktur

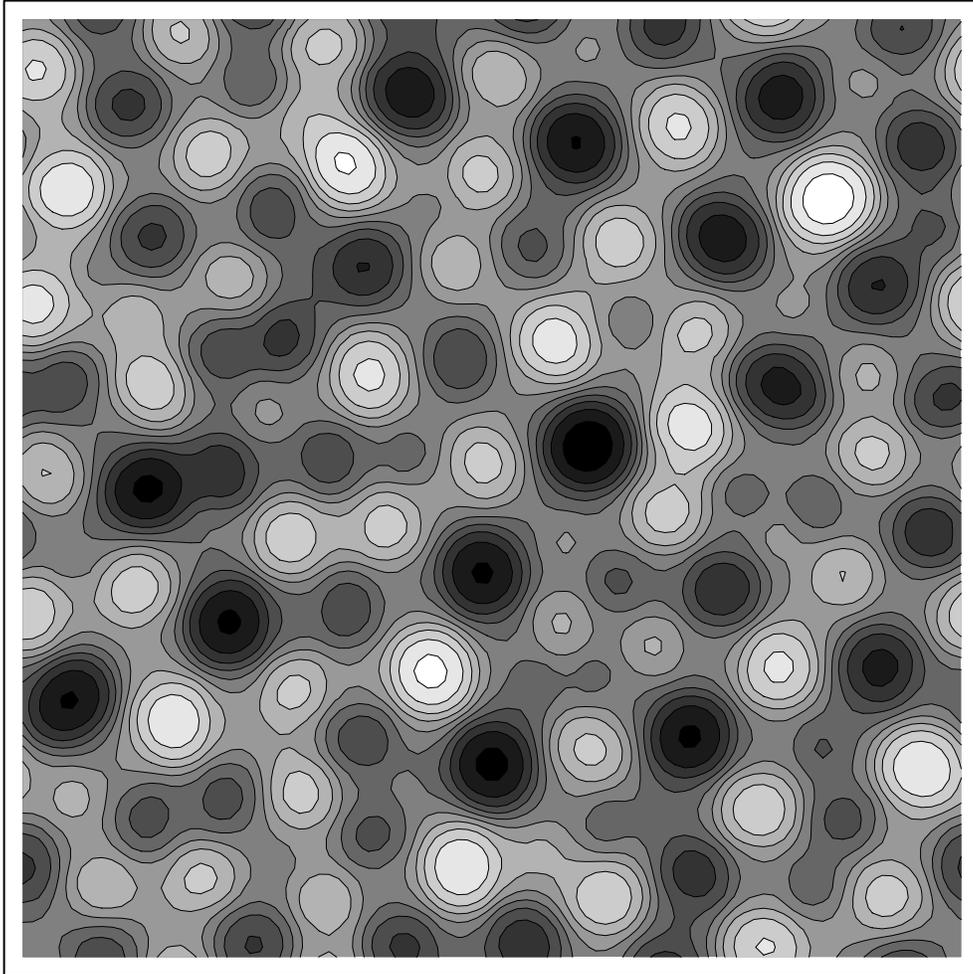
In unseren Simulationen suchen wir Übereinstimmung mit dem Experiment, welches auf ungeordnete Überstruktur hinweist. Der Frage nach der Erzeugung der ungeordneten Überstruktur widmen wir uns in diesem Kapitel voll und ganz.

Worin der Grund dafür liegt, dass wir in Kapitel 6 nur geordnete Überstruktur sehen, können wir erahnen, wenn wir uns Simulationen auf einer Kreisfläche anschauen. Damit wollen wir beginnen. Im Zuge unserer Überlegungen werden wir auf Probleme der Simulation aufmerksam, die wir erst eingehender untersuchen müssen, um danach Wege zu ihrer Beseitigung zu sehen. Dadurch gelingt es uns, die bisherigen Simulationen in einem klareren Licht zu sehen. Zum Schluss erreichen wir unser Ziel, ungeordnete Überstruktur zu erzeugen.

### 7.1 Simulationen auf der Kreisfläche

Ausgangssituation dieses Kapitels ist Abbildung 7.1. Die dort abgebildete Membran zeigt zum ersten Mal in dieser Arbeit Überstruktur, die wir „ungeordnet“ nennen und mittels Simulation erzeugt ist. Die Packungsordnung der Hoch- und Tiefpunkte ist nicht, wie in den bisherigen Bildern, tetragonal, sondern die Extrempunkte sind mit grosser Unregelmässigkeit dicht über die Simulationsfläche verteilt. Sättel verlaufen dabei nicht, wie in den bisher gesehenen Eierkartons, parallel zu den Flächenrändern, sondern sind in beliebigen Winkeln zu diesen angeordnet. Einen wichtigen Punkt müssen wir zum Verständnis der Simulation dieser Abbildung nennen. Auffällig an ihr ist die hohe Stützstellendichte. Mit 96 Stützstellen auf einer Kantenlänge von  $L = 36.0\text{nm}$  beträgt der Stützstellenabstand  $\Delta h = 0.375\text{nm}$ . Vergleichen wir diesen Wert mit den Abständen der bisherigen Simulationen (Vgl. Kapitel 5), so erkennen wir, dass wir es mit einem äusserst kleinen Wert für  $\Delta h$  zu tun haben.

Wie wir im Kapitel über die Einheitszelle sehen können, ist es schwierig, den Stützstellenabstand beliebig absinken zu lassen. Grund hierfür ist der in Kapitel 4 hergeleitete Korrekturterm der Kippung (4.13). Unser Ausgangsbild mit der ungeordneten Überstruktur (Abb. 7.1) folgt aus einer Simulation ohne diesen Korrekturterm. Die aus diesem Umstand folgende Möglichkeit eines sehr kleinen  $\Delta h$  ist der auffälligste technische Unterschied zu den bisherigen Simulationen. Dagegen halten wir die spezielle Berechnung der Determinante des



**Abbildung 7.1:** Endstruktur einer Simulation, gerechnet mit einem Hamiltonian ohne den Korrekturterm der Kippung (4.13), mit den Parametern  $\kappa_0 = 0.03 \cdot 10^{-18} \text{J}$ ,  $\kappa_1 = 0.011 \cdot 10^{-36} \text{Jm}^2$ ,  $\kappa_2 = -0.7 \cdot 10^{-36} \text{Jm}^2$  und  $\kappa_4 = 10 \cdot 10^{-72} \text{Jm}^6$  auf einer Simulationsfläche von  $96 \times 96$  Stützstellen bei einer Kantenlänge von  $L = 36.0 \text{nm}$  (Stützstellenabstand  $\Delta h = 0.375 \text{nm}$ ). Die Starttemperatur des Laufs beträgt  $T_s = 304 \text{K}$ , seine Endtemperatur  $T_f = 0.7 \text{K}$  und der Erniedrigungsfaktor  $f_d = 0.75$  bei einer Sweepzahl von 5'000 Stück pro Temperaturschritt. Die Überschussfläche bei Laufende ist  $A_{\text{real}}/A_{\text{proj}} = 1.12$ , und die Energiedichte wird mit  $u = -0.002 \text{J/m}^2$  angegeben.

metrischen Tensors mittels (Vgl. Anhang A)

$$\gamma = 1 + \frac{1}{2} \left[ (\partial_u z|_+)^2 + (\partial_u z|_-)^2 + (\partial_v z|_+)^2 + (\partial_v z|_-)^2 \right],$$

und auch das äusserst schwach gewählte  $\kappa_0$  für nebensächlich.

Unser Ziel ist es, ungeordnete Überstruktur mit dem Hamiltonian der bekannten Form

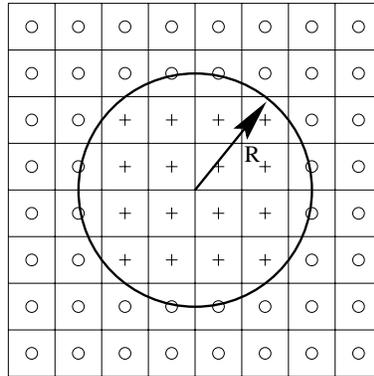
$$g = \frac{1}{2} \kappa_0 J^2 + \kappa_1 (\vec{\nabla} J)^2 + \kappa_2 K^2 + \kappa_4 K^4 - \Delta g(\gamma), \quad (7.1)$$

zu erhalten, wobei der letzte Summand wie üblich für den Korrekturterm der Kippung

$$\Delta g(\gamma) = \frac{kT}{2\Delta h^2} \cdot \pi \ln \left\{ \frac{1 + \frac{1}{\gamma}}{2\sqrt[4]{\gamma}} \right\} \quad (7.2)$$

steht (Vgl. Kapitel 2 und Kapitel 4). Alle Simulationen dieses Kapitels (mit Ausnahme der Simulation von Abbildung 7.1) werden daher mit der Energiedichte (7.1) durchgeführt.

Ein Verdacht, den man bei der Betrachtung der Bilder des vorhergehenden Kapitels nicht los wird, ist, dass der Einfluss der periodischen Randbedingungen für die hohe Ordnung der Überstruktur verantwortlich sein könnte. Um uns davon zu überzeugen, dass dies nicht der Fall ist, simulieren wir in diesem Kapitel auf einer Kreisfläche ohne periodische Randbedingungen (Abb. 7.2).



**Abbildung 7.2:** Simulationen auf der Kreisfläche. Stützstellenpunkte mit dem Zeichen ‚o‘ kennzeichnen Stützstellen ausserhalb, während mit ‚+‘ eingezeichnete Stützstellen innerhalb der Kreisfläche liegen, auf der wir simulieren.

Wird die Membranfläche mit Hilfe von  $N$  Stützstellen dargestellt ( $z(u, v)$ ,  $u, v = 1, \dots, \sqrt{N}$ ), so gehen wir derart vor, dass wir zu Beginn der Simulation einerseits den Mittelpunkt der Membranfläche, die berechnet werden soll, durch

$$M = \left( \frac{\sqrt{N}}{2}, \frac{\sqrt{N}}{2} \right)$$

festlegen, andererseits den Radius der Kreisfläche zu

$$R = \frac{\sqrt{N} - 4}{2} \quad (7.3)$$

bestimmen. Aus dem Wert  $R$  für den Radius folgt, dass mindestens zwei Stützstellen jedes Randes ausserhalb der Kreisfläche liegen (Abb. 7.2).

Stehen diese beiden Werte fest, startet der Lauf. Während in den übrigen Kapiteln dieser Arbeit der Algorithmus derart abgearbeitet wird, dass an jeder Stützstelle der Fläche ohne Ausnahme gleich oft Änderungsvorschläge in  $z$ -Richtung gemacht werden (Vgl. Kapitel 3), also gewackelt wird, gehen wir hier anders vor. Wir lassen ausschliesslich an Stützstellen Wackeln zu, deren Distanz vom Mittelpunkt, gegeben durch

$$D(u, v) = \sqrt{(M_u - u)^2 + (M_v - v)^2}$$

kleiner ist als der Radius der Kreisscheibe, auf der wir rechnen (Abb. 7.2)

$$D(u, v) < R .$$

Gilt für eine Stützstelle  $D(u, v) \geq R$ , so gehen wir über sie hinweg, wir lassen ihre  $z$ -Auslenkung unverändert auf dem Wert

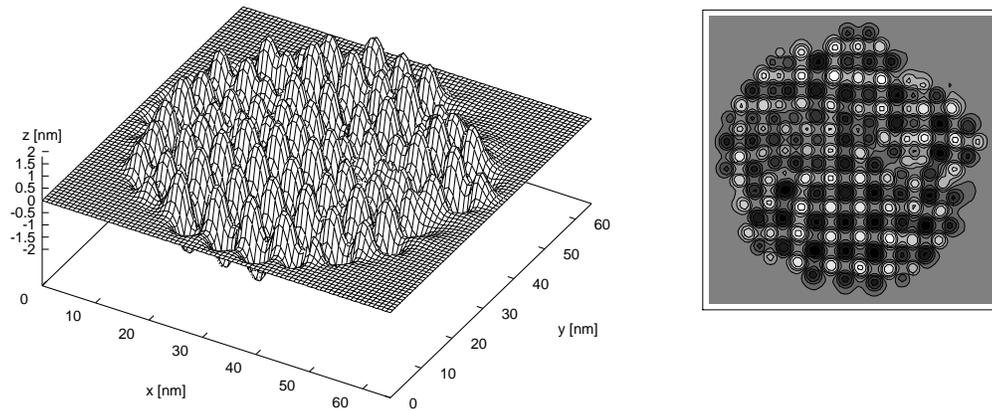
$$z(u, v) = 0 , \quad \forall u, v , \quad \text{für die } D(u, v) \geq R .$$

Dies ist für den hiesigen Abschnitt der einzige Unterschied, wenn wir den Algorithmus der bisherigen Kapitel mit dem Algorithmus dieses Kapitels miteinander vergleichen. Insbesondere weisen wir explizit darauf hin, dass wir keinerlei Stetigkeitsbedingung an die Membranfläche beim Übergang des frei fluktuierenden Flächenbereichs zum festgehaltenen Flächenbereich stellen. Ein stetiger Übergang am Rand von der freien Fläche in den festgehaltenen Bereich stellt sich von alleine ein (Vgl. Abb. 7.3, links). Dies ist verständlich, wenn wir den Energieausdruck (7.1) beachten. Für diesen ist unstetiges Übergehen von der Simulationsfläche in die flache Membran mit hohen Krümmungen verbunden. Hohe Krümmungen wiederum führen zu einem starken Anstieg des Krümmungsausdrucks der ersten Entwicklungsordnung  $J^2$ .

Betrachten wir eine typische Endstruktur, wie sie aus Simulationen mit Hilfe des Parametersatzes von Tabelle 7.1 resultieren (Abb. 7.3). In der Höhenliniendarstellung (Abb. 7.3, rechts) erkennen wir - bis auf die Tatsache, dass wir auf einem Kreis simulieren - eine Membranfläche mit geordneter Überstruktur, wie wir sie im Kapitel über die Phasentübergänge (Kapitel 6) zeigen. Dabei fällt die Anordnung der Hoch- und Tiefpunkte der Fläche auf. Sie

Kantenlänge	66.0nm
Stützstellenzahl pro Kantenlänge	80 Stück
Flächenform	Kreisfläche
Module	$\kappa_0 = 0.05 \cdot 10^{-18} \text{ J}$ $\kappa_1 = 0.01 \cdot 10^{-36} \text{ Jm}^2$ $\kappa_2 = -0.9 \cdot 10^{-36} \text{ Jm}^2$ $\kappa_4 = 9 \cdot 10^{-72} \text{ Jm}^6$
Temperaturintervall	Endtemperatur: $T_f = 0.7\text{K}$ Erniedrigungsfaktor: $f_d = 0.75$
Sweepzahl	100'000 Stück
Ausgangssituation	Flache Membran

**Tabelle 7.1:** *Simulationsparameter, die zur Simulation auf einer Kreisfläche dienen.*



**Abbildung 7.3:** Darstellung der Endstruktur eines Laufs mit dem Parametersatz der Tabelle 7.1. Die Starttemperatur der abgebildeten Simulation liegt bei  $T_s = 434K$ .

ist wie gewohnt tetragonal, wobei die Ausrichtung der Extremalpunkte parallel zum Rand der quadratischen Membranfläche ist.

Da wir auf einer Kreisfläche simulieren, ohne den Einfluss periodischer Randbedingungen also, gibt es keinen triftigen Grund für eine Ausrichtung der Hoch- und Tiefpunkte auf Geraden, die parallel zu den Rändern der Membran verlaufen. Die periodischen Randbedingungen sind daher nicht für die geordnete Überstruktur verantwortlich. Als Grund für die Ausrichtung der Extremalpunkte kann eine Anbindung der Überstruktur an das Gitter der Simulation zumindest nicht mehr ausgeschlossen werden. Der Frage nach der Stärke einer solchen Anbindung gehen wir im Folgenden nach.

## 7.2 Die Gitteranbindung der Simulation

Als Test zur Bestimmung der Gitteranbindung der Sattelstruktur wählen wir zwei Vorgehensweisen. Einerseits verschieben wir die Gitterpunkte einer errechneten Einheitszelle mittels reiner Translation durch die Membranfläche. Andererseits verschieben wir die Gitterpunkte durch eine reine Rotationsbewegung des Gitters um den Mittelpunkt der Membranfläche. Die folgenden Unterabschnitte enthalten die Resultate dieser beiden Vorgehensweisen.

### 7.2.1 Translation des Gitters

Wenden wir uns der ersten Variante zu, wobei wir der Einfachheit halber eine Translationsbewegung entlang der  $x$ -Achse betrachten wollen. Eine Translation entlang der  $y$ -Achse ist vollkommen analog. Wir erinnern uns daran, dass die Form der Membranfläche in Monge-Darstellung beschrieben wird (Vgl. Anhang A). Ein Punkt auf der Fläche hat somit die Parameterbeschreibung  $(u, v, z(u, v))$ , wobei für die Parameter  $u, v = 1, \dots, \sqrt{N}$  gilt, mit einer Stützstellenzahl von  $N$ . Weiter gibt  $z$  die Auslenkung der Fläche an diesem Punkt an.

Aus den Parameterwerten folgen die tatsächlichen  $x$ - und  $y$ -Werte der Membranfläche. Es gelten die Beziehungen

$$x(u) = \left(u - \frac{1}{2}\right) \Delta h \quad \text{und} \quad y(v) = \left(v - \frac{1}{2}\right) \Delta h, \quad (7.4)$$

und wir können die Flächenauslenkung schreiben als

$$z(x, y) = z(x(u), y(v)).$$

Dabei ist  $\Delta h$  der Abstand zwischen zwei Stützstellen, den wir in  $\mu$  Intervalle gleicher Grösse zerlegen  $\Delta h_\mu = \Delta h/\mu$ . Die Translation unseres Gitters gestalten wir so, dass wir die errechnete Form der Fläche festhalten und ausgehend von den ursprünglichen Gitterplätzen die neuen, realen  $x$ -Komponenten der Fläche durch Addition eines ganzzahligen Vielfachen von  $\Delta h_\mu$  berechnen

$$x_{\text{neu}}(u) = (x(u) + j\Delta h_\mu) \bmod L, \quad j = 0, \dots, \mu.$$

In obiger Beziehung ist  $L$  die Kantenlänge der Membran und durch den Modulo-Operator ( $\bmod$ ) wird ein periodisches Fortsetzen der Fläche bewirkt. Dem neuen Wert für die  $x$ -Komponente der Stützstelle muss bei gleichbleibender  $y$ -Komponente und räumlich festgehaltener Fläche ein neuer Auslenkungswert, also ein neuer  $z$ -Wert, zugeordnet werden. Es gilt der Übergang

$$z(x(u), y(v)) \rightarrow z(x_{\text{neu}}(u), y(v)).$$

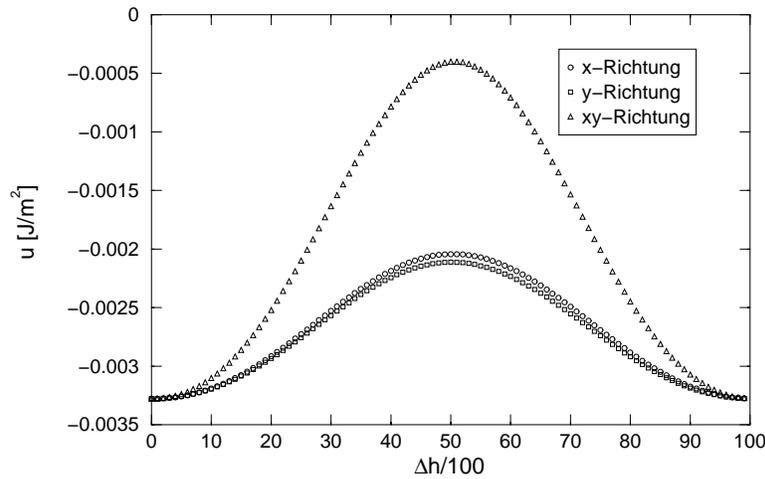
Da wir mit den neuen Werten für die  $x$ -Komponente in der Regel (ausser in den beiden Fällen  $j = 0$  und  $j = \mu$ ) zwischen zwei Stützstellen des ursprünglichen Gitters liegen, muss die  $z$ -Auslenkung dort mittels Interpolation bestimmt werden.

Im Rahmen dieser Arbeit verwenden wir zur Stützstelleninterpolation die Bikubische Interpolation [69]. Diese hat den Vorteil, dass mittels Ableitungen höherer Ordnung die Glätte der zu interpolierenden Fläche gewährleistet bleibt. Für eine ausführlichere Besprechung der Bikubischen Interpolationsmethode verweisen wir auf [69].

Bewegen wir alle  $x$ -Komponenten des Gitters in  $\mu + 1$  Schritten von ihren ursprünglichen Werten zu den Werten ihrer Nachbarn ( $x(u) \rightarrow x((u + 1) \bmod \sqrt{N})$ ,  $\forall u = 1, \dots, \sqrt{N}$ ) und bestimmen in jeder neuen Konfiguration die Energie der Membran, so können wir anhand des Verlaufs der entstehenden Energiekurve bestimmen, wie gross die Anbindung der Form der Membranfläche an die einzelnen Gitterpunkte ist. Die so entstehenden Werte vergleichen wir mit Werten für die Verschiebung der  $y$ -Komponenten des Gitters ( $y(v) \rightarrow y((v + 1) \bmod \sqrt{N})$ ,  $\forall v = 1, \dots, \sqrt{N}$ ). Schlussendlich lässt sich noch Diagonalverschiebung ( $x(u) \rightarrow x((u + 1) \bmod \sqrt{N})$ ) und gleichzeitig  $y(v) \rightarrow y((v + 1) \bmod \sqrt{N})$ ,  $\forall u, v = 1, \dots, \sqrt{N}$ ) untersuchen.

Als Untersuchungsobjekt wählen wir die Einheitszelle der Überstruktur, wie wir sie in Kapitel 5 für die Parameter der Tabelle 5.3 besprechen (Abb. 5.3). Dabei gehen wir so vor, dass wir  $\mu = 100$  wählen, jeden Stützstellenpunkt des Gitters somit in Hundertstelschritten zu seinem Nachbarn erst in  $x$ -, dann in  $y$ -Richtung und zum Schluss diagonal in  $x$ - und  $y$ -Richtung bewegen und dabei bei jeder entstehenden Stützstellenverteilung die innere Energie und die Energiedichte der Membran bestimmen. Dabei verwenden wir zur Energieberechnung den Hamiltonian (7.1) ohne den Entropieterm (7.2).

Die Auswertung unseres Beispiels (Abb. 7.4) zeigt bei Translation des Stützstellengitters einen symmetrischen Verlauf um den Verschiebungswert  $\Delta h/2$ . Die Energiedichte nimmt bei



**Abbildung 7.4:** Dargestellt ist der Verlauf der Energiedichte in Abhängigkeit einer Verschiebung des Stützstellengitters um die Distanz des Stützstellenabstands  $\Delta h$ . Die beiden Kurven mit den kleineren Amplituden stammen von der Verschiebung des Stützstellengitters in  $x$ - bzw. in  $y$ -Richtung, während die Kurve mit der grösseren Amplitude von der Diagonalverschiebung stammt.

Erreichen einer Verschiebungsdistanz, die einem halben Stützstellenabstand entspricht, einen deutlich höheren Wert an im Vergleich zum Wert des unverschobenen Gitters. Wir schliessen daraus, dass die Struktur der Membranfläche an die Gitterpunkte des Stützstellengitters angebunden ist.

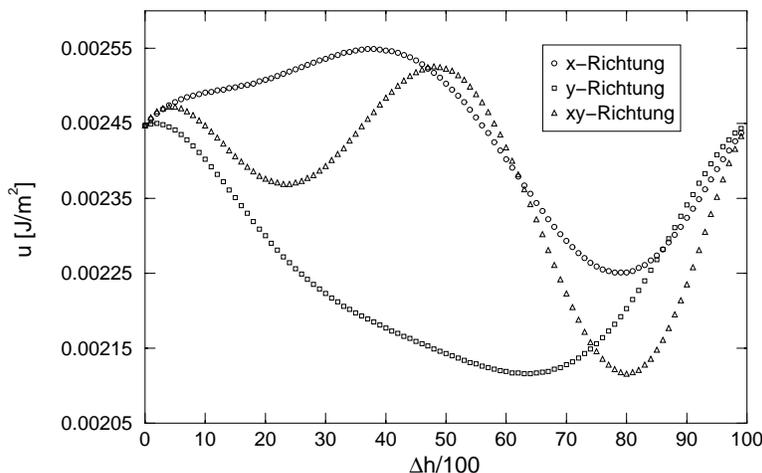
### 7.2.2 Fazit aus der Gitterpunktanbindung

Was unsere Beobachtungen bezüglich ungeordneter Überstruktur betrifft, so erwarten wir von Simulationen mit Gitterpunktanbindung der Membranfläche keine gravierenden Unterschiede zu Simulationen ohne Gitterpunktanbindung. Auf der Suche nach der ungeordneten Überstruktur schenken wir dem Effekt der Gitterpunktanbindung daher keine weitere Beachtung.

Die gefundene Gitterpunktanbindung wirft jedoch ein neues Licht auf den ersten Phasenübergang, wie wir ihn in Kapitel 6 besprechen. Vergleichen wir für  $32 \times 32$ -Stützstellengitter den Energiedichteverlauf in Abhängigkeit einer Stützstellengitterverschiebung von Simulationsbildern oberhalb, inmitten und unterhalb des ersten Phasenübergangs miteinander, so fällt ein Unterschied zwischen den einzelnen Phasenbereichen auf. Bei Bildern von Läufen unterhalb des ersten Phasenübergangs errechnen wir typischerweise Energiedichteverläufe, wie wir sie für die  $8 \times 8$ -Stützstelleneinheit erhalten (Abb. 7.4). Der einfache, symmetrische Kurvenverlauf dort besteht aus einem Hochpunkt bei einer Verschiebungsdistanz von  $\Delta h/2$  und einem Tiefpunkt bei der nichtverschobenen Gitteranordnung. Dieses Bild beginnt sich zu ändern, je mehr wir uns dem ersten Phasenübergang nähern. Analysieren wir Bilder von Läufen mit Temperaturen aus dem Phasenübergangsbereich selber, so können wir in zunehmendem Masse Energieverlaufskurven erkennen, die ihre Symmetrie verlieren. Bei Temperaturen oberhalb des ersten Phasenübergangs sind die meisten errechneten Energieverlaufskurven asymmetrisch, wobei sich meist mehr als ein Hochpunkt ausbildet. Auch ein Absinken der Energie zu einem globalen Minimum bei  $\Delta h/2$  kann beobachtet werden, wobei

der Hochpunkt in diesen Fällen bei der Verschiebung  $j = 0$  zu liegen kommt.

Betrachten wir als typisches Beispiel die Auswertung eines Zwischenbildes des Laufs bei  $T = 492\text{K}$ , wobei sich dieser Lauf mit seiner Temperatur deutlich im Bereich der zweiten Phase befindet (Abb. 7.5). Dieser Lauf wird in Kapitel 6 besprochen.



**Abbildung 7.5:** Dargestellt ist der Verlauf der Energiedichte in Abhängigkeit einer Verschiebung in  $x$ -Richtung, in  $y$ -Richtung und in diagonaler Richtung des Stützstellengitters um die Distanz des Stützstellenabstands  $\Delta h$  für das erste Bild von Abbildung 6.12.

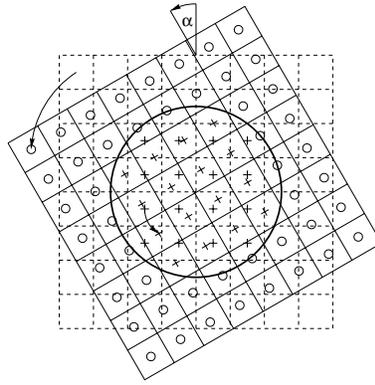
In Kapitel 6 stellen wir uns die Hoch- und Tiefpunkte als Atome vor, die sich in einem Lennard–Jones–Potential bewegen. Den abstossenden Anteil dieses Potentials nehmen wir dabei ab einer gewissen Höhe als abgeknickt an. Dadurch können sich die Teilchen bei Temperaturen oberhalb des ersten Phasenübergangs gegenseitig durchdringen. Den ersten Phasenübergang interpretieren wir als Temperaturbereich, wo zum ersten Mal ein gegenseitiges Durchdringen der Teilchen möglich wird, die abstossende Kraft der Teilchen untereinander also aufgehoben ist. Unsere Untersuchungen der Gittertranslation, nach der am ersten Phasenübergang die Gitterpunktanbindung aufgehoben wird, werten wir als Bestätigung dieser Interpretation.

### 7.2.3 Rotation des Gitters

Wenden wir uns jetzt dem zweiten Verfahren zur Abschätzung der Anbindung der Membranform an das Gitter zu und betrachten die Rotation des Gitters um den Mittelpunkt der Fläche. Damit wir uns nicht um die periodischen Randbedingungen kümmern müssen, beschränken wir die Membranfläche, die durch das zu drehende Gitter dargestellt wird, auf eine Kreisscheibe (Abb. 7.6). Ausserhalb dieser Kreisscheibe nehmen wir die Membranauslenkung überall  $z(u, v) = 0$  ( $\forall u, v$ , mit  $D(u, v) \geq R$ ) an (Vgl. Abschnitt 7.1).

Ausgangspunkt sind auch hier, analog wie in Unterabschnitt 7.2.1, die realen  $x$ - und  $y$ -Koordinaten des Gitters, gegeben durch die Beziehungen (7.4). In einem ersten Schritt bestimmen wir den realen Wert für den Mittelpunkt der Membranfläche zu

$$x \left( \frac{\sqrt{N}}{2} \right) = y \left( \frac{\sqrt{N}}{2} \right) = \left( \frac{\sqrt{N} - 1}{2} \right) \Delta h .$$



**Abbildung 7.6:** Drehung des Gitterkreuzes. Die Stützstellenkennzeichnung ist analog zu der in Abbildung 7.2.

In einem zweiten Schritt legen wir den Nullpunkt des zu drehenden Koordinatensystems in den Mittelpunkt der Membranfläche. Die neuen Koordinatenwerte drücken wir mit Hilfe der Koordinaten des ursprünglichen Gitters aus zu

$$X(u) = x(u) - x\left(\frac{\sqrt{N}}{2}\right) \quad \text{und} \quad Y(v) = y(v) - y\left(\frac{\sqrt{N}}{2}\right),$$

mit  $u, v = 1, \dots, \sqrt{N}$ . Das neue Koordinatensystem drehen wir um den Winkel  $\alpha$  mit Hilfe der Drehmatrix [50]

$$\mathcal{D}(\alpha) = \begin{pmatrix} \cos(\alpha) & -\sin(\alpha) \\ \sin(\alpha) & \cos(\alpha) \end{pmatrix},$$

indem wir für alle realen  $X$ - und  $Y$ -Werte auf der Kreisscheibe der Membran neue Werte berechnen mittels

$$\begin{pmatrix} X_{\text{neu}}(u) \\ Y_{\text{neu}}(v) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos(\alpha) & -\sin(\alpha) \\ \sin(\alpha) & \cos(\alpha) \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} X(u) \\ Y(v) \end{pmatrix}.$$

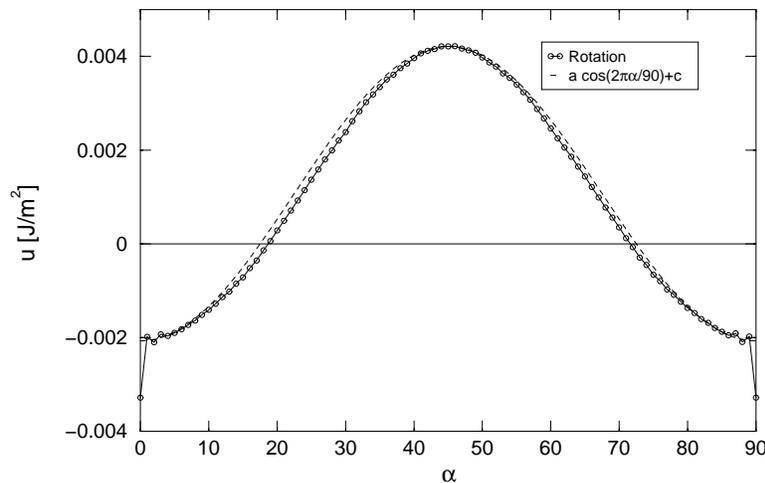
Bei räumlich festgehaltener Membranfläche liegen die neuen, realen Werte  $X_{\text{neu}}(u)$  und  $Y_{\text{neu}}(v)$  in der Regel irgendwo zwischen vier Stützstellenpunkten des ungedrehten Gitters. Für diese vier Gitterstützstellen sind je die  $z$ -Auslenkungen bekannt, und mit ihrer Hilfe lässt sich die  $z$ -Auslenkung beim Punkt  $(X_{\text{neu}}(u), Y_{\text{neu}}(v))$  interpolieren. Als Interpolationsmethode verwenden wir hierbei analog zum vorhergehenden Unterabschnitt die Bikubische Interpolation [69].

Überlegen wir uns, welcher Eindruck von der Membran entsteht, wenn wir das ursprüngliche Koordinatenkreuz drehen. Da wir die Neuberechneten  $z$ -Werte der Membran auf den durch die Parameterwerte  $(u, v)$  gegebenen Gitterplatz des ungedrehten Gitters zurückspeichern (Vgl. Anhang A), sehen die Bilder der Membran so aus, als würden wir die Membranfläche um den Winkel  $-\alpha$ , also im Uhrzeigersinn, drehen (Vgl. Abb. 7.6). Drehen des Gitterkreuzes und Drehen der Figur hinterlässt somit bis auf die Drehrichtung den gleichen Eindruck.

Mit unserem Drehalgorithmus wollen wir das Verhalten der mit den Parametern von Tabelle 5.3 errechneten Einheitszelle (Abb. 5.3) untersuchen (Vgl. Kapitel 5). Um Randeffekte

so klein wie möglich zu halten, vervielfältigen wir die Einheitszelle zehnmal pro Kantenlänge (also insgesamt  $10 \times 10 = 100$ -mal) und betrachten nur den Teil der Überstruktur, der im Innern der Kreisscheibe liegt. Am Rand der Kreisscheibe wird die Membran abgeschnitten und fällt an den Hoch- bzw. Tiefpunkten steil auf  $z(u, v) = 0$  ab. Das stört uns nicht weiter, denn wir interessieren uns im Fall des Drehens für das Flächeninnere der Kreisscheibe und rechnen die Energiedichtewerte von dort weg, bis auf zwei Stützstellenreihen vor ihrem Rand. Die Energieberechnung in der Auswertung erfolgt mit Hilfe von Hamiltonian (7.1), ohne den Entropieterm (7.2).

Drehen wir das Gitterkreuz in Winkelschritten von  $\Delta\alpha = 1^\circ$  im Intervall  $[0^\circ, 90^\circ]$  und tragen die Energiedichte in Abhängigkeit des Drehwinkels in einem Diagramm auf (Abb. 7.7). Nach einem Sprung bei der Drehung um den Winkel  $\alpha = 1^\circ$  erhalten wir einen Verlauf, den wir für die Werte bis zum Winkel  $\alpha = 89^\circ$  mit einer phasenverschobenen Cosinus-Funktion vergleichen können. Am Schluss erreicht die Energie ihren ursprünglichen Wert wieder durch einen Sprung.



**Abbildung 7.7:** Dargestellt ist der Verlauf der Energiedichte in Abhängigkeit des Drehwinkels bei Rotation des Stützstellengitters um den Winkel  $\alpha$ . Das gedrehte Stützstellengitter stellt das 100-fache der berechneten Einheitszelle der Überstruktur dar, wie sie mit den Parametern von Tabelle 5.3 gefunden wird. Die über den Verlauf der Punkte gelegte Kurve ist eine phasenverschobene Cosinus-Funktion.

Der Sprung der Energiedichte zu Beginn und am Ende der Drehung ist klar. Er entspricht dem Anstieg der Energiedichte, den wir aus der Gitterpunktanbindung kennen. Bei der Drehung des Gitters um den ersten Winkelgrad lösen wir die Hoch- und Tiefpunkte schlagartig aus ihren Gitterpunktpositionen, in denen sie verankert sind. Die Struktur ist danach frei von ihren Gitterpunkten.

Aus der deutlichen Zunahme der Energiedichte erkennen wir, dass die Energie der Überstruktur nicht invariant gegenüber einer Drehung des Gitterkreuzes ist. Wir können schließen, dass die Überstruktur eine zusätzliche Anbindung an das Simulationsgitter erfährt. Die Überstruktur ist an die Achsen ihres Gitters angebunden.

### 7.2.4 Fazit aus der Gitterachsenanbindung

Wir vermuten, dass die Gitterachsenanbindung verantwortlich dafür ist, dass wir nur geordnete und keine ungeordnete Überstruktur sehen. Wenn wir mit dieser Vermutung richtig liegen, dann muss mit zunehmender Stützstellendichte die Anbindung an die Gitterachsen verschwinden, wie das Bild mit ungeordneter Überstruktur zeigt (Abb. 7.1). Die Höhe der Energiezunahme bei Drehen des Gitters nimmt auch tatsächlich ab, testen wir Einheitszellen mit  $12 \times 12$  Stützstellen, wie wir sie in Kapitel 5 erhalten. Simulationen mit sehr kleinem  $\Delta h$  wären also erstrebenswert. Da wir aber mit Korrekturterm (7.2) rechnen, müssen wir die Gitterachsenanbindung auf andere Weise beseitigen. Bevor wir uns Gedanken darüber machen, wollen wir noch eines der bisherigen Resultate unter dem Aspekt sowohl der Gitterpunkt- als auch der Gitterachsenanbindung betrachten.

Erinnern wir uns an die Resultate von Kapitel 5 zurück. Beim Abschnitt über die Variation der Stützstellendichte sehen wir bei kleiner Stützstellenzahl pro Kantenlänge eine breite Streuung, sowohl der optimalen Kantenlänge als auch der errechneten Energie in Abhängigkeit der Stützstellenzahl (Abb. 5.10). Das Auffällige an der Breite dieser Streuung ist, dass die Gitter mit einer geraden Anzahl Stützstellen und die Gitter mit einer ungeraden Anzahl Stützstellen je getrennt auf einer Kurve verlaufen, wobei sich diese beiden Kurven mit zunehmender Stützstellenzahl aneinander annähern. Betrachten wir die errechneten Endbilder der Simulationen, die mit einer kleinen, ungeraden Anzahl Stützstellen erzeugt werden, so stellen wir fest, dass dort Membranformen entstehen können, die unsymmetrisch im Gitter liegen. Wir halten dies für eine Konsequenz der Tatsache, dass die beiden Gitteranbindungen, also sowohl Gitterpunkt- als auch Gitterachsenanbindung, die Membranstruktur am Simulationsgitter festhalten und ihr dadurch eine Asymmetrie aufzwingen. Da wir eine Doppelschichtmembran, bestehend aus zwei gleichen Monoschichten betrachten, dürfen sich aus Symmetriegründen die Hoch- und Tiefpunkte der Membranfläche nicht voneinander unterscheiden. Wir gehen daher von einer höheren Verlässlichkeit bei Simulationen mit einer geraden Anzahl Stützstellen pro Kantenlänge aus.

Überlegen wir uns, wie wir die Gitterachsenanbindung in unseren Simulationen beseitigen können. Die einfachste Möglichkeit ist, während der Simulation das Gitter zu drehen. Der Grundgedanke dabei ist, während der Simulation in regelmässigen Schritten das Simulationsgitter um solche Winkel zu drehen, dass sich die Differenz der Energiedichte  $\Delta u$  zwischen dem tiefsten und dem höchsten Punkt ihres Verlaufs bei Drehung wegmittelt. Dazu müssen wir uns überlegen, welche Drehwinkel geeignet sind.

Betrachten wir die Kurve der Energiedichte (Abb. 7.7) etwas genauer. Dabei interessiert uns weniger die Grösse von  $\Delta u$  bei Drehung des Gitters (bei Zimmertemperatur können wir aus dem Verlauf der Energie  $E$  bei Drehung diesen Anstieg zu  $\Delta E \geq 10kT$  für eine Einheitszelle abschätzen), sondern vielmehr ihr Verlauf. Versuchen wir nämlich, eine Cosinus-Funktion mittels geeigneter Amplitude  $a = \Delta u/2$  und einer Nullpunktverschiebung an den Energiedichteverlauf anzulegen, so erkennen wir gute Übereinstimmung bis auf einen Bereich in den ansteigenden und abfallenden Flanken des Verlaufs (Abb. 7.7). Die Abweichung dort bekommen wir durch die nächsthöhere Fourierentwicklungsmode gut in den Griff. Mit der Amplitude  $b < a'$  ( $a \rightarrow a' \leq a$ ) setzen wir für den Verlauf der Energiedichte an

$$\Delta u(\alpha) = -a' \cos\left(\frac{2\pi}{90}\alpha\right) + b \cos\left(\frac{2\pi}{90}2\alpha\right) + \text{konst.} . \quad (7.5)$$

Betrachten wir vorerst nur die erste Fouriermode. Rotieren wir während der Simulation

das Stützstellengitter nach gleichen Zeitschritten um  $\Delta\alpha = 45^\circ$ , so simulieren wir abwechselungsweise im Tiefpunkt des Energieverlaufs

$$-\cos\left(\frac{2\pi}{90}\alpha\right) = -1 \quad \text{bei } \alpha = 0^\circ, 90^\circ, 180^\circ, 270^\circ$$

und in seinem Hochpunkt

$$-\cos\left(\frac{2\pi}{90}\alpha\right) = +1 \quad \text{bei } \alpha = 45^\circ, 135^\circ, 225^\circ, 315^\circ .$$

Die Gitterachsenanbindungsenergie  $\Delta u$  sollte sich dadurch nach einigen Drehschritten wegmitteln.

Drehung um  $\Delta\alpha = 45^\circ$  ist nicht die einzige Möglichkeit, die zu einem Wegmitteln der Anbindungsenergie führen muss. Es gilt

$$-\cos\left(\frac{2\pi}{90}\alpha\right) = +\frac{1}{2} \quad \text{bei } \alpha = 30^\circ, 60^\circ, 120^\circ, 150^\circ, 210^\circ, 240^\circ, 300^\circ, 330^\circ .$$

Durch Drehen in Winkelschritten von  $\Delta\alpha = 30^\circ$  simulieren wir erst für die Länge eines Zeitschritts im Tiefpunkt  $-1$  des Energieverlaufs (bei  $\alpha = 0^\circ$ ), danach für die Länge zweier Zeitschritte auf dem Wert  $+1/2$  (bei  $\alpha = 30^\circ$  und bei  $\alpha = 60^\circ$ ), anschliessend wieder im Tiefpunkt  $-1$  (bei  $\alpha = 90^\circ$ ) usf.. Ausschlag für die Verwendung von  $\Delta\alpha = 30^\circ$ -Drehschritten gibt die zweite Fouriermode von Ansatz (7.5). Für diese gilt, ähnlich dem Verhalten der ersten Mode,

$$\cos\left(\frac{2\pi}{90}2\alpha\right) = -\frac{1}{2} \quad \text{bei } \alpha = 30^\circ, 60^\circ, 120^\circ, 150^\circ, 210^\circ, 240^\circ, 300^\circ, 330^\circ$$

und

$$\cos\left(\frac{2\pi}{90}2\alpha\right) = +1 \quad \text{bei } \alpha = 0^\circ, 90^\circ, 180^\circ, 270^\circ .$$

Daraus können wir erkennen, dass Drehungen um  $\Delta\alpha = 30^\circ$  den Energieanstieg auch dieser Mode gut rausmitteln müssen.

Diese Erkenntnis machen wir uns zunutze, indem wir Simulationen auf einer Kreisscheibe starten und nach Abarbeiten einer festen Anzahl Sweeps das Gitter, durch das die Membran dargestellt wird, um den Winkel  $\Delta\alpha = 30^\circ$  drehen.

### 7.3 Simulationen mit Drehung des Gitters

In diesem Abschnitt drehen wir das Stützstellengitter der Membran in regelmässigen Abständen während der Simulation in festen Winkelschritten von  $\Delta\alpha = 30^\circ$ . Die periodischen Randbedingungen eines ungedrehten Gitters sind nach dessen Drehung nur mittels komplizierter Algorithmen einzuhalten. Daher simulieren wir hier der Einfachheit halber ausschliesslich auf der Kreisfläche.

Die Simulationen dieses Abschnitts teilen sich auf in zwei Gruppen. In der ersten Gruppe starten wir bei Membranflächen, die eine Überstruktur der vervielfältigten Einheitszelle als Startsituation besitzen, während die zweite Gruppe die flache Membran als Ausgangssituation hat.

### 7.3.1 Phasenverhalten

In diesem Unterabschnitt betrachten wir Simulationen mit Moduln, wie sie in Tabelle 7.2 wiedergegeben sind. Von einer Membran mit diesen Moduln kennen wir die Einheitszelle der Sattelstruktur aus Kapitel 5 (Abb. 5.3). Dies hat den Vorteil, dass wir durch Vervielfältigung der berechneten Einheitszelle eine quadratische Fläche mit geordneter Überstruktur gewinnen können. Nach der Vervielfältigung schneiden wir aus dieser Fläche mit Sattelstruktur eine Kreisfläche aus, die den Radius  $R$  besitzt, gegeben durch Beziehung (7.3). Alle Punkte ausserhalb der Kreisfläche setzen wir zu  $z(u, v) = 0$  ( $\forall u, v$  mit dem Abstand  $D(u, v) \geq R$ ). Die entstandene Struktur wird zu Beginn jedes Laufs eingelesen und ist Ausgangssituation der Simulationen dieses Unterabschnitts.

Kantenlänge	33.0nm
Stützstellenzahl pro Kantenlänge	40 Stück
Flächenform	Kreisfläche
Module	$\kappa_0 = 0.05 \cdot 10^{-18} \text{J}$ $\kappa_1 = 0.01 \cdot 10^{-36} \text{Jm}^2$ $\kappa_2 = -0.9 \cdot 10^{-36} \text{Jm}^2$ $\kappa_4 = 9 \cdot 10^{-72} \text{Jm}^6$
Temperaturintervall	Feste Lauftemperatur
Rotationswinkel	30°
Anzahl Rotationen	50 Stück
Sweepzahl pro Rotation	5'000 Stück
Ausgangssituation	Eingelesene $5 \times 5$ -fache Einheitszelle

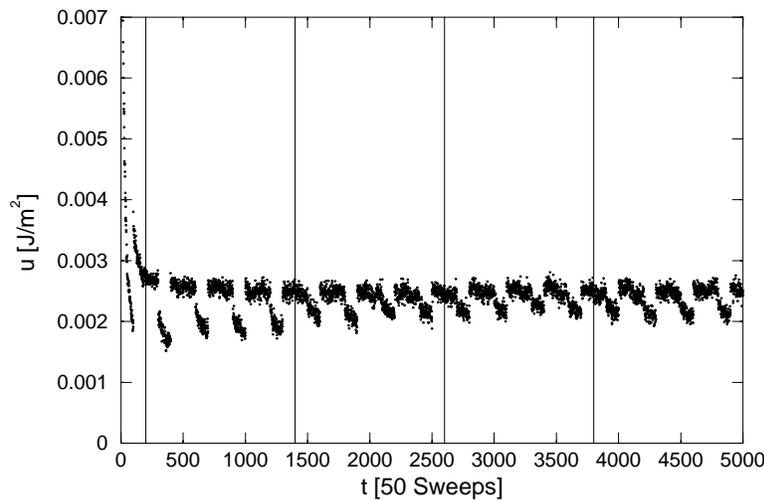
**Tabelle 7.2:** *Simulationsparameter, die zur Simulation auf einer Kreisfläche dienen, die während der Simulation um  $\Delta\alpha = 30^\circ$  gedreht wird.*

Zu beachten ist, dass durch das Abschneiden der Membran Unstetigkeiten am Rand des Kreises entstehen. Dies ist beispielsweise dort der Fall, wo eine Stützstelle  $(u_i, v_j)$  mit  $D(u_i, v_j) < R$  auf einem Hochpunkt der Membranfläche liegt, während ihre benachbarte Stützstelle  $(u_{i+1}, v_{j+1})$  mit  $D(u_{i+1}, v_{j+1}) \geq R$  auf  $z(u_{i+1}, v_{j+1}) = 0$  abfällt. Dadurch kann lokal starke Krümmung entstehen. Dies ist aber nicht weiter schlimm, denn sobald wir die Simulation starten, stellt sich in wenigen Simulationsschritten von alleine ein stetiger Übergang von der Kreisfläche mit Überstruktur zum flachen Rand bei  $D(u, v) \geq R$  ein.

Nach ersten Testmessungen auf drehenden Gittern setzen wir eine Anzahl von 5'000 Sweeps fest, nach deren Ablauf das Stützstellengitter der Membran um  $\Delta\alpha = 30^\circ$  gedreht wird. Durch wiederholtes Drehen des Stützstellengitters der Membran bei dieser Sweepzahl wollen wir ihr keine Möglichkeit geben, sich festzusetzen und anzubinden.

Betrachten wir Simulationen der Gruppe, festgelegt durch die Parameter von Tabelle 7.2. Bei den Simulationen dieser Gruppe führen wir insgesamt 50 Rotationen des Gitterkreuzes durch. Wir betrachten drei verschiedene Temperaturbereiche.

Als Beispiel für einen Lauf bei tiefen Temperaturen zeigen wir eine Simulation bei  $T = 289\text{K}$ . Der Verlauf der Energiedichte zeigt bei dieser Temperatur zu Beginn einen grossen Sprung von einem hohen zu einem tieferen Wert (Abb. 7.8). Die entsprechenden Bilder zeigen in diesem Bereich, dass die steilen Kanten am Rand der Kreisfläche mit Überstruktur, die durch das Abschneiden der Membran zustande kommen, abgeschwächt werden, bis sich ein stetiger Übergang von der Fläche mit Sattelstruktur in den flachen Rand einstellt. Nach



**Abbildung 7.8:** Verlauf der Energiedichte des Laufs mit den Parametern von Tabelle 7.2 bei einer Temperatur  $T = 289\text{K}$ .

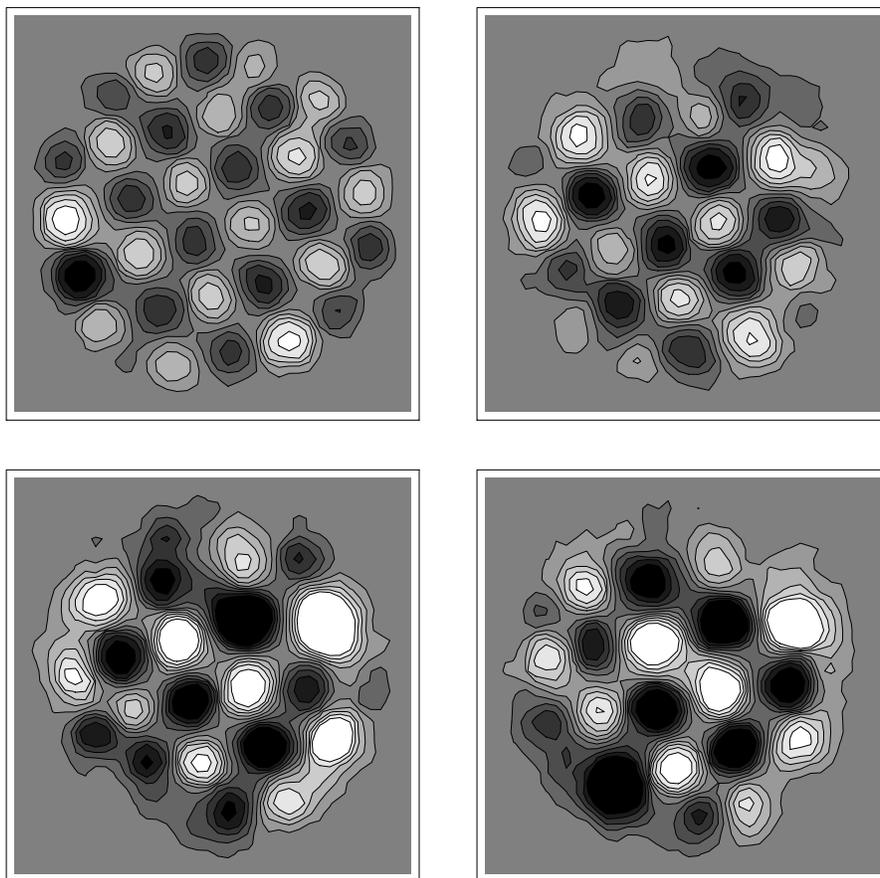
dem anfänglichen Sprung der Energiedichte sehen wir einen Verlauf, bei dem sie auf zwei verschiedenen Niveaus fluktuiert. Ein höheres Niveau, welches Winkelstellungen von  $\alpha = 30^\circ$ ,  $\alpha = 60^\circ$ ,  $\alpha = 120^\circ$ , ... und ein tieferes, welches Winkelstellungen von  $\alpha = 90^\circ$ ,  $\alpha = 180^\circ$ , ... zugeordnet werden kann. Mit zunehmender Sweepzahl nimmt der Unterschied zwischen diesen beiden Niveaus erst ab, stellt sich gegen Ende jedoch auf einen konstanten Wert ein.

Betrachten wir Simulationsbilder zu diesem Lauf, wobei wir uns aus Gründen der Vergleichbarkeit auf Bilder gleicher Winkelstellungen, nämlich um  $\alpha = 30^\circ$  gedreht zur eingelesenen Membranstruktur, beschränken (Abb. 7.9). Wir erkennen bei allen Bildern geordnete Überstruktur, wobei das Auffälligste an den Bildern darin besteht, dass sich die Hoch- und Tiefpunkte der Membran in ihrer Größe leicht ausdehnen und gleichzeitig die Extrempunkte deutlicher hervortreten. Bei einer genaueren Untersuchung stellen wir fest, dass die auf dem Höhenlinienbild flach erscheinenden Extrempunkte eine nichtflache Struktur besitzen.

Messen wir nach, ob es möglich ist, während der Simulation bei festem Winkel ein Rotieren der Überstruktur selbst zu beobachten, so stellen wir fest, dass ein solches Rotieren - falls überhaupt - nur schwer erkennbar ist. Wir schliessen, dass in diesem Temperaturbereich die geordnete Überstruktur stabil ist.

Begeben wir uns zu einem Lauf der Temperatur  $T = 470\text{K}$ . Der Verlauf der Energiedichte zeigt zu Beginn das für den Lauf bei  $T = 289\text{K}$  beschriebene Verhalten. Nach kurzer Zeit jedoch pendelt sie sich auf einem Niveau ein, um dessen Mittelwert sie schwankt. Die einzelnen Winkelstellungen sind dann nicht mehr voneinander unterscheidbar (Abb. 7.10).

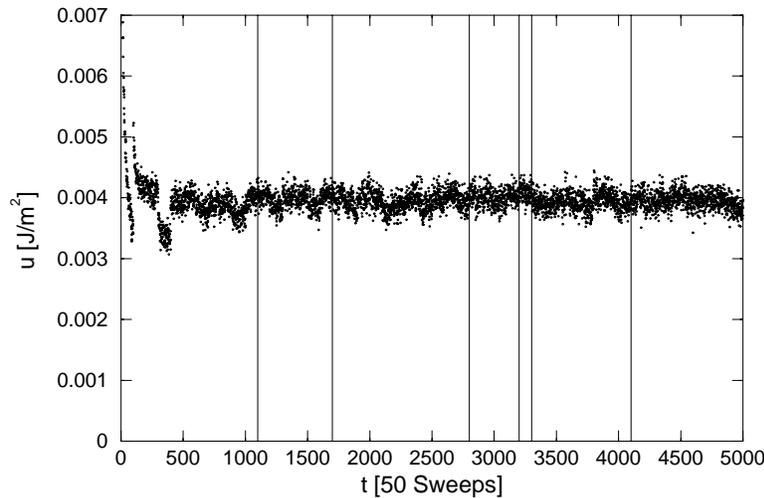
Vergleichen wir den Verlauf der Energiedichte mit den Bildern der entstehenden Überstrukturen (Abb. 7.11). Zu Beginn der Simulation ist die eingelesene Sattelstruktur sichtbar. Deren Ordnung beginnt immer mehr zu verschwinden, der Eierkarton beginnt zu schmelzen. Nach 55'000 anfänglichen Sweeps und somit nach 10 Drehungen (Abb. 7.11, erstes Bild) sehen wir noch Reste der eingelesenen Überstruktur, die wenig später ebenfalls zu einem ungeordneten Zustand geschmolzen sind. Danach ist nur noch ungeordnete Überstruktur vorhanden.



**Abbildung 7.9:** Zeitlich geordnete Folge ausgewählter Bilder errechneter Strukturen für einen Simulationslauf bei  $T = 289\text{K}$ . (Vgl. senkrechte Markierungen im Energieverlauf der Abb. 7.8.)

Die entstehenden Überstrukturen stimmen recht gut mit unseren Erwartungen aus dem Experiment überein. Die geschmolzene Überstruktur bildet Hoch- und Tiefpunkte aus, die sich vereinzelt zu gewundenen Hoch- und Tiefzügen zusammenschliessen. Dabei sind diese Züge nicht strukturlos, sondern sattelförmig eingeschnitten. Die Hoch- und Tiefzüge entsprechen den experimentell gefundenen Linienstrukturen auf der Lipidmembran (Vgl. Kapitel 1). Dort ist die unregelmässige Anordnung von gewundenen Extremalstrukturen sehr gut sichtbar. Bei unseren Bildern ist es wichtig zu sehen, dass die entstehenden Membranflächen tatsächlich aus einer ungeordneten Ansammlung von Sattelpunkten besteht. Die von Stützstellenfluktationen befreite Energie fluktuiert um einen deutlich negativen Wert. Es sind die Sattelpunkte, die sich durch diese negativen Energiewerte bemerkbar machen.

Betrachten wir Folgen von Bildern, wie sie während der Simulation entstehen, so können wir erkennen, dass die Hoch- und Tiefpunkte leicht in Bewegung sind (im Gegensatz zu den Simulationsbildern bei  $T = 289\text{K}$ ). Sie können sich innerhalb der Membranebene frei bewegen, sie entstehen, schliessen sich zusammen, verschwinden zum Teil auch wieder. Dabei sind diese Bewegungen sehr langsam fliessend und können klar von Fluktuationen unterschieden werden, wie wir sie mittels Hüthen und Superhüthen bei der Diskussion in Kapitel 6 beschreiben.



**Abbildung 7.10:** Verlauf der Energiedichte des Laufs mit den Parametern von Tabelle 7.2 bei einer Temperatur  $T = 470\text{K}$ .

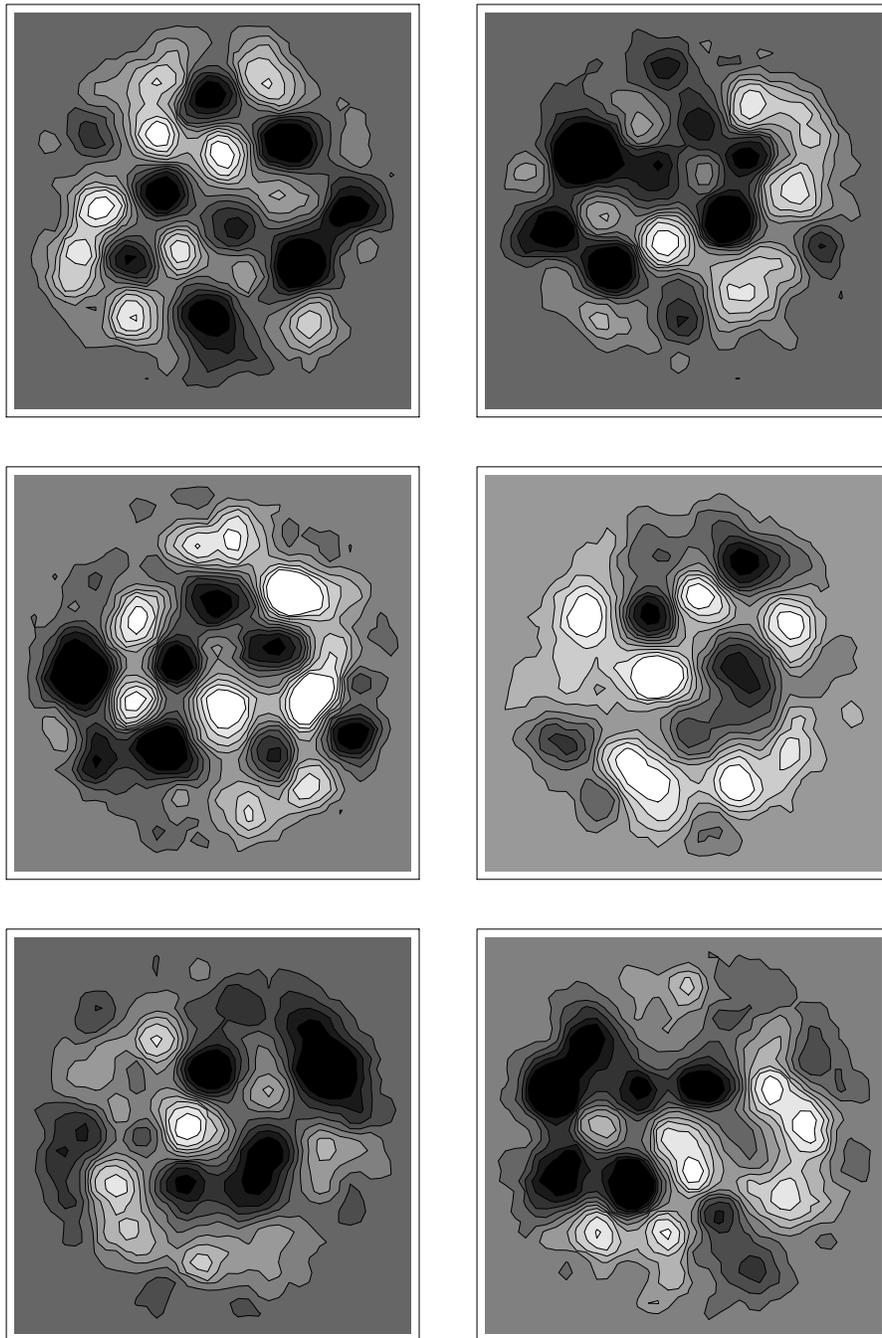
Die Überschussfläche stellt sich während der Simulation auf Werte von  $A_{\text{real}}/A_{\text{proj}} \approx 1.12$  ein. Wir erkennen aus diesem geringen Flächenüberschuss, dass mit dem Schmelzen des Eierkartons ebenfalls ein grosser Teil der in ihm gespeicherten Überschussfläche verloren geht (Vgl. Abb. 7.1).

Bei Simulationen mit höheren Temperaturen wird die Überstruktur vollständig zerstört. Als Beispiel erwähnen wir einen Lauf der Temperatur  $T = 630\text{K}$ . Bei diesem Lauf sehen wir noch vereinzelte Fluktuationen, Hütchen und Superhütchen, wie wir sie bei der Diskussion des Phasenverhaltens der Überstruktur einführen. Dabei treten Aggregate von Hütchen und Superhütchen auf. Superhütchen, die miteinander wechselwirken und sich für kurze Zeit zu grossen Hoch- bzw. Tiefzügen zusammenschliessen, um danach wieder zu zerfallen.

Vergleichen wir unsere Temperaturbereiche mit dem Phasendiagramm von Kapitel 6 (Abb. 6.4 und 6.5). Bei der ersten von uns hier besprochenen Simulation handelt es sich um den Lauf bei einer Temperatur, die sich im ersten Phasenbereich der Sattelstruktur befindet. Bei der zweiten Simulation befinden wir uns bei einer Temperatur oberhalb des ersten Phasenübergangs und somit in der zweiten Phase der Überstruktur. Wir vermuten, dass die ungeordnete Überstruktur somit dem zweiten Phasenbereich zugeordnet werden kann. Die Ermöglichung eines Durchdringens der Hoch- und Tiefpunkten kann mit dem Schmelzen des Eierkartons verbunden sein.

Unsere Formulierung diesbezüglich bleibt vorsichtig. Einen direkten Beweis für die Existenz eines Phasenübergangs zwischen geordneter und ungeordneter Überstruktur haben wir nicht. Aufgrund des Verlaufs der Energiedichte während der Simulation ist es nicht möglich, Phasendiagramme aus unseren Läufen zu erstellen, so wie wir dies in Kapitel 6 zeigen. Dennoch sind die Überlegungen, die wir anstellen, klar. Gehen wir bei tiefer Temperatur von der Stabilität der geordneten Überstruktur auf dem drehenden Stützstellengitter aus, so erwarten wir zwischen dieser und der hier gefundenen ungeordneten Sattelstruktur einen Phasenübergang. Der Übergang von geordneter zu ungeordneter Phase entspricht dann einem Schmelzen des Eierkartons.

Nützlich für unsere Interpretation des ersten Phasenübergangs als Schmelzübergang von



**Abbildung 7.11:** Zeitlich geordnete Folge ausgewählter Bilder errechneter Strukturen für den Simulationslauf bei  $T = 470\text{K}$ . (Vgl. senkrechte Markierungen im Energieverlauf der Abb. 7.10.)

Kantenlänge	66.0nm
Stützstellenzahl pro Kantenlänge	80 Stück
Flächenform	Kreisfläche
Module	$\kappa_0 = 0.05 \cdot 10^{-18} \text{ J}$ $\kappa_1 = 0.01 \cdot 10^{-36} \text{ Jm}^2$ $\kappa_2 = -0.9 \cdot 10^{-36} \text{ Jm}^2$ $\kappa_4 = 9 \cdot 10^{-72} \text{ Jm}^6$
Temperaturintervall	Feste Lauftemperatur
Rotationswinkel	30°
Anzahl Rotationen	100 Stück
Sweepzahl pro Rotation	5'000 Stück
Ausgangssituation	Flache Membran

**Tabelle 7.3:** *Simulationsparameter, die zur Simulation auf einer Kreisfläche dienen, die während der Simulation um  $\Delta\alpha = 30^\circ$  gedreht wird.*

einer geordneten, tetragonalen zu einer ungeordneten Phase könnte die Bestimmung der Temperatur des hier beobachteten Übergangs sein. Eine exakte Übergangstemperatur festzulegen, ist jedoch schwierig. Bei den Simulationen dieses Unterabschnitts, also mit den Parametern der Tabelle 7.2 können bei einem Lauf der Temperatur  $T = 434\text{K}$  zum ersten Mal Anzeichen eines beginnenden Schmelzens der Überstruktur erkannt werden. Der Vergleich mit dem Phasendiagramm (Abb. 6.4 und 6.5) von Kapitel 6 zeigt, dass wir mit dieser Temperatur gut im Bereich des ersten Übergangs liegen. Dies bestätigt unsere Argumentationsweise.

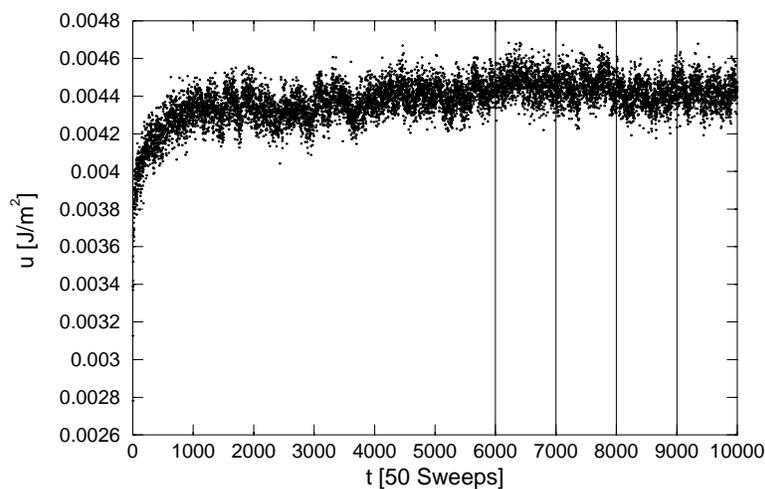
Die dritte Phase, die durch Undulationen zerstörte Sattelstruktur wird auch hier von unseren Simulationen bestätigt. Wir nehmen diesen Phasenbereich daher als gesichert an, zumal auch hier die Übergangstemperatur gut mit dem Wertebereich aus Kapitel 6 übereinstimmt.

### 7.3.2 Anknüpfung an das Experiment

Die bisherigen Bilder stammen von Simulationen, die mit einer eingelesenen Überstruktur gestartet werden. Untersuchen wir zum Abschluss eine Simulation, die von der flachen Membran als Ausgangssituation startet. Dazu betrachten wir einen Lauf mit Parametern, wie sie durch Tabelle 7.3 gegeben sind.

Wir interessieren uns für das Aussehen der ungeordneten Überstruktur. Wir betrachten einen Lauf bei der Temperatur  $T = 470\text{K}$ , die im Bereich der zweiten Phase liegt. Der Energieverlauf zeigt nach einem Anstieg, der das Überwinden der Energiebarriere zwischen flacher und sattelförmig gekrümmter Membran anzeigt, Fluktuationen um ein Energieniveau (Abb. 7.12). Aufgrund dieses Verlaufs gehen wir davon aus, dass wir es in dieser Simulation - analog zu der Simulation des vorhergehenden Unterabschnitts - wieder mit der geschmolzenen Überstruktur zu tun haben.

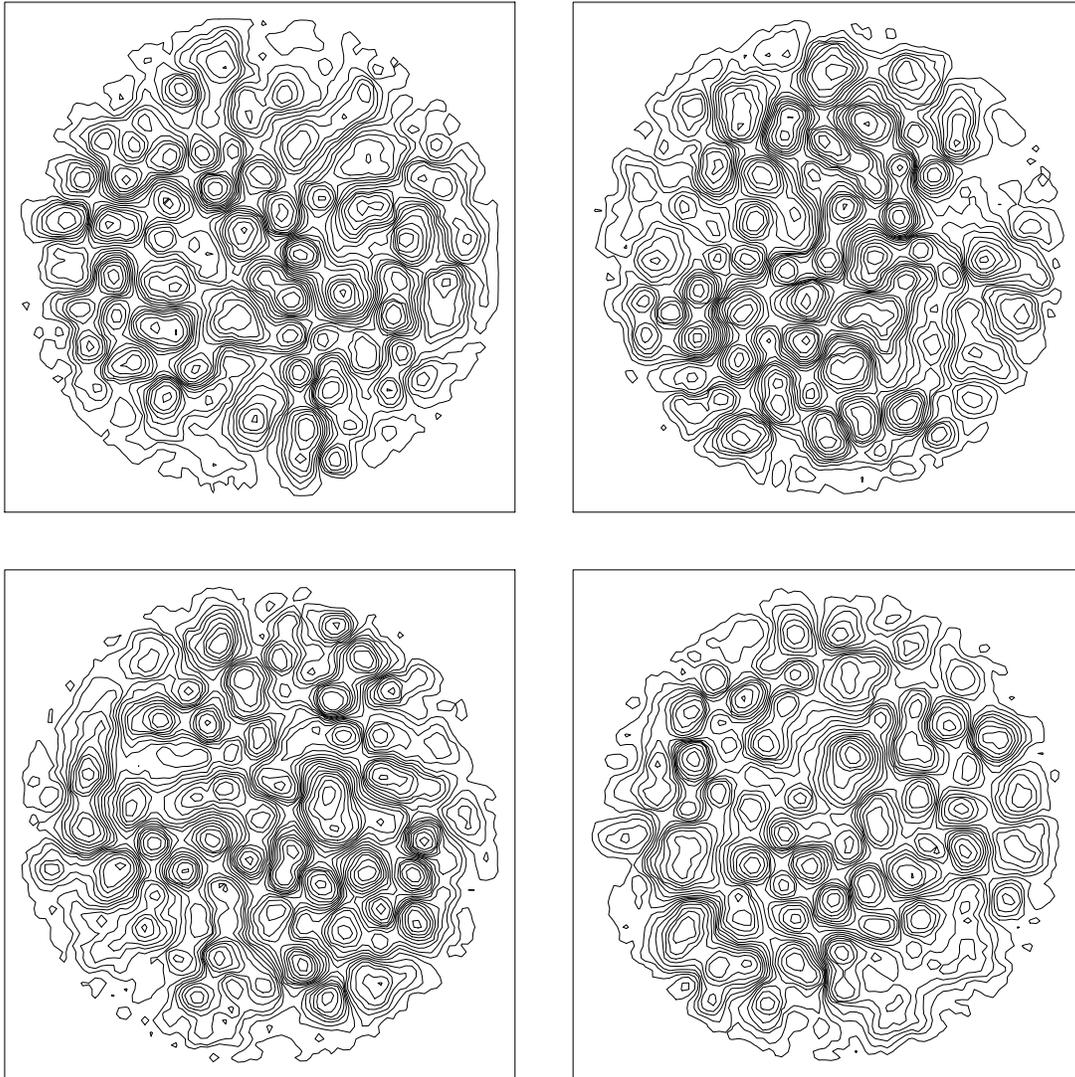
Die Bilder bestätigen unsere Vermutung (Abb. 7.13). Es bildet sich keine geordnete Sattelstruktur, diese ist vollständig geschmolzen. Die Extrempunkte schliessen sich zu Hoch- und Tiefzügen zusammen, was sich in Höhenlinienbildern durch gewundene Linienstrukturen bemerkbar macht. Die Höhenliniendarstellung ohne Graufärbung einzelner Höhenbereiche bietet geeignete, einfache Vergleichsmöglichkeiten zu den Bildern des Experiments (Abb. 1.4 und 1.5). Dort erwähnen wir, dass die Elektronen des Mikroskops in den steilen Flanken der Hoch- und Tiefpunkte einen längeren Weg durch das Lipidmaterial zurücklegen müssen



**Abbildung 7.12:** Verlauf der Energiedichte des Laufs mit den Parametern von Tabelle 7.3 bei einer Temperatur  $T = 470\text{K}$ .

als bei Membranstücken parallel zur Projektionsebene. Dies führt zu den dunklen Linien auf den Bildern des Elektronenmikroskops. Bei der Darstellung unserer mit dem Computer erzeugten Bilder zeigen dichtliegende Höhenlinien steil ansteigende Flanken an. Dichtliegende Höhenlinien führen optisch zu schwarzen Linienstrukturen.

Mit diesen Bildern, die erstmals die direkte Vergleichsmöglichkeit mit dem Experiment eröffnen, wollen wir schliessen.



**Abbildung 7.13:** Zeitlich geordnete Folge ausgewählter Bilder errechneter Strukturen für den Simulationslauf bei  $T = 470\text{K}$ . (Vgl. senkrechte Markierungen im Energieverlauf der Abb. 7.12.) Dargestellt sind berechnete Strukturbilder, die nur mittels Höhenlinien, ohne Graufärbung abgebildet sind. Diese Darstellungsweise ermöglicht den direkten Vergleich mit den Bildern des Experiments (Vgl. Kapitel 1 (Abb. 1.4 und 1.5) und [17, 20]). Die bei der Simulation entstehenden Membranflächen zeigen den geschmolzenen Eierkarton. Die Membran weist die Körnigkeit der CryoTEM-Bilder auf.