

ISSN 0073-8417

# PUBLIKATIONEN ZU WISSENSCHAFTLICHEN FILMEN

SEKTION

**BIOLOGIE**

SERIE 16 · NUMMER 12 · 1983

FILM C 1473

**Die Zhabotinsky-Reaktion  
als Modell einer Musterbildung**



INSTITUT FÜR DEN WISSENSCHAFTLICHEN FILM . GÖTTINGEN

*Angaben zum Film:*

Tonfilm (Komm., deutsch oder engl.), 16 mm, farbig, 99 m, 9 min (24 B/s). Hergestellt 1980, veröffentlicht 1983.

Der Film ist für die Verwendung im Hochschulunterricht bestimmt. Veröffentlichung aus dem Institut für Landespflege und Botanik der Technischen Universität München, Prof. Dr. B. HOCK, Dr. A. BOLZE, und dem Institut für den Wissenschaftlichen Film, Göttingen, Dr. T. HARD; Kamera und Schnitt: H. WITTMANN.

*Zitierform:*

HOCK, B., A. BOLZE und INST. WISS. FILM: Die Zhabotinsky-Reaktion als Modell einer Musterbildung. Film C 1473 des IWF, Göttingen 1983. Publikation von B. HOCK, Publ. Wiss. Film., Sekt. Biol., Ser. 16, Nr. 12/C 1473 (1983), 14 S.

*Anschrift des Verfassers der Publikation:*

Prof. Dr. B. HOCK, Techn. Universität München, Lehrstuhl für Botanik, D-8050 Freising-Weihenstephan.

---

PUBLIKATIONEN ZU WISSENSCHAFTLICHEN FILMEN

Sektion BIOLOGIE

Sektion PSYCHOLOGIE . PÄDAGOGIK

Sektion ETHNOLOGIE

Sektion TECHNISCHE WISSENSCHAFTEN

Sektion MEDIZIN

NATURWISSENSCHAFTEN

Sektion GESCHICHTE . PUBLIZISTIK

Herausgeber: H.-K. GALLE . Schriftleitung: E. BEIZ

PUBLIKATIONEN ZU WISSENSCHAFTLICHEN FILMEN sind die schriftliche Ergänzung zu den Filmen des Instituts für den Wissenschaftlichen Film und der *Encyclopaedia Cinematographica*. Sie enthalten jeweils eine **Einführung** in das im Film behandelte Thema und die Begleitumstände des Films sowie eine genaue Beschreibung des **Filmhalts**. Film und Publikation zusammen stellen die wissenschaftliche Veröffentlichung dar.

PUBLIKATIONEN ZU WISSENSCHAFTLICHEN FILMEN werden in deutscher, englischer oder französischer Sprache herausgegeben. Sie erscheinen als Einzelhefte, die in den fachlichen Sektionen zu Serien **zusammengefaßt** und im Abonnement bezogen werden können. Jede Serie besteht aus mehreren Lieferungen.

Bestellungen und Anfragen an: Institut für den Wissenschaftlichen Film  
Nonnenstieg 72 . D-3400 Göttingen  
Tel. (05 51) 20 22 02

## FILME FÜR FORSCHUNG UND HOCHSCHULUNTERRICHT

BERTOLD HOCK, ALFRED BOLZE, München, und INSTITUT FÜR DEN WISSENSCHAFTLICHEN FILM, Göttingen:

Film C 1473

## Die Zhabotinsky-Reaktion als Modell einer Musterbildung'

Verfasser der Publikation: BERTOLD HOCK

Mit 1 Abbildung

### *Inhalt des Films:*

Die Zhabotinsky-Reaktion als Modell einer Musterbildung. Als Beispiel für die Bildung dissipativer Muster wird die Zhabotinsky-Reaktion vorgestellt, bei der Eisen-Phenanthrolin gleichzeitig als Redox-Katalysator und Farbindikator dient. In der homogen rotgefärbten Lösung (Katalysator im reduzierten Zustand) bilden sich an zufälligen Stellen blaue Punkte (Katalysator im oxidierten Zustand), von denen als Schrittmacherzentren sich blaue Ringe ausbreiten. Analoge Musterbildungen werden am Beispiel der Aggregationsphase des Schleimpilzes *Dictyostelium* beschrieben.

Voraussetzung für die Entstehung der dissipativen Muster ist die laufende Umsetzung von Energie: Das System muß sich weit entfernt vom Gleichgewicht befinden. Charakteristisch sind das Auftreten von oszillierenden Reaktionen, die Beteiligung autokatalytischer Vorgänge sowie das Vorliegen einer Bistabilität.

### *Summary of the Film:*

The Zhabotinski Reaction, a Model of Pattern Formation. The Zhabotinski reaction is presented as an example of the formation of dissipative patterns. Fe (1,10-phenanthroline)<sub>3</sub> serves as the redox catalyst as well as a colour indicator. In the homogeneous reddish-orange liquid (catalyst in the reduced state), blue dots (catalyst in the oxidized state) randomly appear, sending out blue ring-shaped waves like pacemakers. Analogous pattern formations are described for the aggregation stage of the slime mold *Dictyostelium*.

A continuous energy conversion is a necessary condition for the formation of dissipative patterns: The system must be far away from the thermodynamic equilibrium. Characteristic elements are the occurrence of oscillatory reactions, autocatalytic processes and bistability, i.e. existence of two different stable steady states.

### *Résumé du Film:*

La réaction de Zhabotinsky, le modèle de **morphogénèse**. La réaction de Zhabotinsky est présentée comme un exemple de formation des voies dissipatives. La phénanthroline de fer joue le rôle de catalyseur redox aussi bien que d'indicateur coloré. Dans le liquide rouge orange homogène (catalyseur à l'état réduit) apparaissent au hasard des points bleus (catalyseur à l'état oxydé) à partir desquels s'élargissent concentriquement des anneaux bleus. Des formations analogues sont décrites dans le cas de la phase d'agrégation du *Dictyostelium*, moisissure de vase.

La transformation permanente d'énergie est une condition nécessaire à la formation des voies dissipatives: le système doit être très loin de l'équilibre thermodynamique. Il est caractérisé par l'existence de réactions oscillatoires, de phénomènes autocatalytiques ainsi que d'une bistabilité deux états stables bien différents.

Herrn Prof. Dr. M. BOPP, Universität Heidelberg, zu seinem 60. Geburtstag gewidmet.

### Allgemeine Vorbemerkungen

Ein Grundphänomen in der biologischen Entwicklung ist die Bildung von Strukturen und Mustern in einem ursprünglichen homogenen Feld von Zellen. Als besonders eindrucksvolle Beispiele seien die Entstehung des Spaltöffnungsmusters bei der Blattepidermis, die Verteilung der Blattanlagen am Vegetationskegel, die Kopf- und Fußbildung bei *Hydra* sowie die Bildung des Aggregationsmusters bei *Dictyostelium* genannt.

Lange Zeit schienen sich diese Vorgänge der wissenschaftlichen Analyse zu entziehen. Die Entstehung von Ordnung, wie sie für lebende Systeme bekannt ist, war von physikalischer Seite her nicht auf der Basis der bekannten thermodynamischen Prozesse verständlich. So beschränkte man sich auf eine bloße Beschreibung. Auch die hypothetische Ableitung sichtbarer Muster von chemischen Vormustern ging nur wenig über einen solchen Ansatz hinaus.

Die erste mathematische Formulierung, die zugleich physikalisch einsichtig war, stammte von TURING ([20]). In seiner Arbeit „Die chemische Basis der Morphogenese“ entwickelte er das Konzept chemischer Netzwerke, wie sie im Prinzip in jeder Zelle vorliegen und über komplizierte Reaktions- und Diffusionsprozesse zur Bildung räumlicher Verteilungsmuster morphogenetisch wirksamer Substanzen (der sog. Morphogene) führen können. Die Reaktionskinetik wird durch ein System linearer Differentialgleichungen beschrieben. Essentiell ist die Konsequenz, daß bei der Diffusion der Morphogene kleine und zufällige Konzentrationschwankungen über positive Rückkopplungsmechanismen verstärkt werden und damit zu chemischen Mustern führen, die raum- und zeitinvariant sind und sogar eine gewisse Regulationsfähigkeit einschließen. Die Energie, die zur Aufrechterhaltung des Musters gegen die Diffusion (mit ihrem dissipativen Effekt) notwendig ist, stammt aus dem kontinuierlichen Flux von Vorstufen über die Morphogen-Moleküle zu Abbauprodukten. Sind die Vorstufen erschöpft, bricht das Muster zusammen. Der Name „dissipatives Muster“ spielt auf die ständige Energieumsetzung an. Ein solcher Ansatz, der von einer ständigen Stoff- und Energiezufuhr von außen abhängt, ist charakteristisch für offene Systeme, die sich in wesentlichen Eigenschaften von den bislang genauer untersuchten geschlossenen Systemen unterscheiden. Sie befinden sich insbesondere weit entfernt vom chemischen Gleichgewicht.

Eine wesentliche Erweiterung erfuhr der beschriebene Ansatz seit den Arbeiten von GIERER und MEINHARDT ([8]) sowie MEINHARDT und GIERER ([16]), die mit Hilfe nichtlinearer Differentialgleichungssysteme unter Berücksichtigung biologisch relevanter Parameter (wie Aktivatoren und Inhibitoren) die Entstehung nahezu jeder morphogenetisch wichtigen Struktur beschreiben können.

Eine wertvolle Hilfe für das Verständnis derartiger Reaktionstypen sind chemische Modellsysteme, mit denen sich – wiederum ausgehend von vollständigen homogenen Reaktionsbedingungen – die Bildung räumlicher Strukturen demonstrieren läßt, die jedoch auch hier an eine ständige Energieumsetzung gekoppelt ist. Als Vorläufer dieser Reaktionen sind homogen oszillierende Vorgänge zu sehen, wie sie bereits 1921 zum ersten Mal von BRAY ([1]) am Beispiel des iodkatalysierten  $H_2O_2$ -Zerfalls beschrieben wurden. Eine besonders intensive Erforschung erfolgte seit 1958 durch den russischen Chemiker P.B. BELOUSOV [2] am Beispiel der Cer-Ionen-katalysierten Oxidation der organischen Verbindung Malonat durch Bromat in Schwefelsäure. Die Lösung oszilliert mit einer Frequenz von zwei Farbumschlägen/min zwischen einem gelben ( $CeIV+$ ) und einem farblosen Zustand ( $CeIII+$ ). Auf ZHABOTINSKY ([24]) gehen weitere Varianten zurück, z. B. die Verwendung des Redoxkatalysators

Eisen-Phenanthrolin, der im reduzierten Zustand rot und im oxidierten Zustand blau gefärbt ist.

ZAIKIN und ZHABOTINSKY ([23]) beschrieben danach eine weitere Abwandlung, bei der in einer homogenen, nicht gerührten Lösung räumlich organisierte Muster entstehen, die sich in Form blauer Ringe (Abb. 1) und manchmal auch von Spiralen (WINFREE [22]) über einen roten Hintergrund ausbreiten. Startpunkte sind winzige Konzentrationsunterschiede, hervorgerufen durch Verunreinigungen oder auch nur durch Unebenheiten im Glas, die durch autokatalytische Prozesse, gekoppelt an Diffusionsvorgänge, zu räumlich organisierten Inhomogenitäten makroskopisch wahrnehmbarer Proportionen führen.



Abb. 1. Dissipatives Muster (Zhabotinsky-Reaktion)

Die hierbei entstehenden Muster ähneln in verblüffender Weise organischen Strukturen, wie sie z.B. in der Aggregationsphase des Schleimpilzes *Dictyostelium* auftreten. Auch hier ist das formale Prinzip das gleiche: autokatalytische Reaktionen, die in ein Netzwerk anderer Reaktionen integriert sind, sowie Diffusionsprozesse sind Grundelemente der Musterbildung vom dissipativen Typ.

#### Material und Methoden

Für die Reaktion wurde der Ansatz von WINFREE ([22]) benutzt, der auch von WALKER ([21]) empfohlen wird. Sonstige Reagenzien können als p.A.-Substanzen von der Firma Merck, Darmstadt, und Fluka bezogen werden. Zum Pipettieren sind Pipettierhilfen vorgeschrieben. Die folgenden Stammlösungen lassen sich im Kühlschrank für mehrere Wochen aufbewahren:

- A: 67 ml dest.  $H_2O$ ,  
 5 g  $NaBrO_3$   
 2 ml konz.  $H_2SO_4$  (98%ig)<sup>1</sup>,
- B: 1 g NaBr mit dest.  $H_2O$  ad 10 ml,

<sup>1</sup>Stark ätzend, nur in der vorgeschriebenen Reihenfolge (mit Pipettierhilfe!) pipettieren.

*Biol. 16/12 – C 1473*

- C: 1 g Malonsäure mit dest. H<sub>2</sub>O ad 10 ml,  
D: 3 ml dest. H<sub>2</sub>O  
1 ml 0,025 molares Phenanthrolin-Eisensulfat. Fluka  
(Ferroinlösung)

Folgende Stammlösungen werden in ein Becherglas pipeniert und gemischt:

6 ml A + 0,5 ml B + 1 ml C.

Hierbeierfolgt durch Freisetzung von Brom eine Braunfärbung. Nach wenigen Minuten entfärbt sich das Gemisch. Erst dann wird es vorsichtig in eine Petrischale (z.B. Plastikpeuschale mit 8,5 cm Durchmesser) umgefüllt, in der sich bereits 1 ml Lösung D befindet, und gut gemischt.

Für Demonstrationszwecke erfolgt die Beobachtung über ein Lichtpult, bei Vorlesungen kann eine Projektion über einen Overhead-Projektor vorgenommen werden. Eine übermäßige Erwärmung ist jedoch zu vermeiden.

Zur Dokumentation wird der Ansatz zweckmäßigerweise vor einem blauen Hintergrund im Abstand von einigen Zentimetern photographiert; hierdurch ergibt sich ein verbesserter Kontrast.

Der Gesamt Ablauf läßt sich wesentlich verlangsamen, wenn die Reaktion in einem Gel erfolgt. Ausgezeichnete Erfahrungen wurden mit einer Variante des Ansatzes von SCOTT ([18]) gemacht:

Stammlösungen (jeweils 50 ml), die im Kühlschrank mehrere Wochen haltbar sind:

- A: 0,872 molare NaBrO<sub>3</sub>-Lösung mit 0,54 molarer H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>.  
Ansatz: 6,58 g Natrium-Bromat mit dest. Wasser auf 23 ml auffüllen und mit 27 ml 1 molarer H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> mischen.
- B: 2,1%iger Agar.  
Ansatz: 1,05 g Agar auf 50 ml auffüllen. Kurz aufkochen. Vor Gebrauch nochmals aufkochen und auf ca. 50°C abkühlen lassen.
- C: 0,88 molare Malonsäure.  
Ansatz: 4,50 g Malonsäure mit dest. Wasser auf 50 ml auffüllen.
- D: 6,38 g NaBr mit dest. Wasser auf 50 ml auffüllen.
- E: 1,7 millimolare Ferroin-Lösung (Chlorid-frei, Fluka-Nr. 46270):  
Ansatz: 1,7 ml Ferroin-Lösung mit 23,3 ml dest. Wasser verdünnen.

#### Vorbereitungen:

Sämtliche Lösungen werden im Trockenschrank auf ca. 45–50°C vorgewärmt, ebenso ein 50-ml-Becherglas sowie die erforderlichen Pipetten.

#### Ablauf der Reaktion:

Plastikpetrischale (8,5 cm Durchmesser) auf 45–50°C vorwärmen. 2 ml Lösung E einpipettieren (Pipenierhilfe!). In das vorgewärmte 50-ml-Becherglas rasch nacheinander folgende Lösungen einpipettieren (Pipettierhilfe!):

- 3 ml A
- 3 ml B (Agar darf nicht erstarrt sein),
- 1 ml C
- 0,5 ml D

Nach Entfärbung des Lösungsgemischs Inhalt des Becherglases rasch in die Petrischale mit Lösung E umfüllen, vorsichtig mischen und auf weiße Unterlage bei Zimmertemperatur stellen.

Die Reaktion beginnt sofort und läuft im erstarrten Gel ca. zwei Stunden.

Daneben existieren zahlreiche weitere Varianten, bei denen andere Reaktionsgemische, z.T. mit anderen Redoxkatalysatoren, eingesetzt werden. Beschreibungen finden sich z.B. bei WALKER ([21]), JESSEN ([14]), KOROS und ORBÁN ([15]) oder GIMENEZ und MICHEAU ([9]). Eine Übersicht über die Haupttypen, die sich in drei Gruppen einteilen lassen, ist bei EPSTEIN und Mitarb. ([4]) beschrieben.

### Erläuterungen zum Film

Wortlaut des gesprochenen Kommentars<sup>1</sup>

Die Zhabotinsky-Reaktion geht aus von einfachen chemischen Verbindungen, mit denen komplexe Redoxreaktionen in Gang gesetzt werden.

Bromationen dienen als Oxidationsmittel.

Bromidionen hemmen die Oxidationsreaktion.

Nach Zugabe des Bromids bildet sich Brom, erkennbar an der braunen Farbe.

Malonsäure ist der dritte Reaktionspartner.

Die Gesamtreaktion wird durch die oxidative Decarboxylierung von Malonsäure getrieben.

Die Lösung entfärbt sich – hier leicht zeitgerafft dargestellt – innerhalb von wenigen Minuten, da Brom weiterreagiert.

Feroin kommt als Redoxkatalysator zuletzt hinzu. Es handelt sich um Eisen-II-Phenanthrolin. Diese Verbindung katalysiert die oxidative Decarboxylierung der Malonsäure.

Das homogene Gemisch wird in einer dünnen Schicht ausgegossen.

Der Katalysator ändert seine Oxidationsstufe periodisch.

Als Eisen-II-Phenanthrolin ist er orange, als Eisen-III-Phenanthrolin schwach-blau.

Er dient als Redoxindikator.

Der Reaktionsablauf ist wegen seiner zahlreichen Teilreaktionen außerordentlich kompliziert. Eine Computersimulation der verwandten Belousov-Zhabotinsky-Reaktion mit Cer-Ionen als Redoxkatalysator benötigt achtzehn Grundschritte und einundzwanzig verschiedene chemische Verbindungen (FIELD et al. [5]). Abb. 2 gibt eine vereinfachte, aber sehr anschauliche Darstellung für die Zhabotinsky-Reaktion nach WINFREE ([22]) wieder: Für die Oszillationen des Redoxkatalysators Fe-Phenanthrolin von rot nach blau und zurück sind zwei Reaktionsfolgen verantwortlich, die beide thermodynamisch begünstigt sind, aber zu verschiedenen Produkten führen. Die Bromid-Konzentration bestimmt, welcher Ablauf die Überhand gewinnt. Bei hoher Bromid-Konzentration (Abb. 2a) bilden Bromid und Bromat aus Malonat Bromomalonat. In dieser Phase befindet sich Fe-Phenanthrolin im reduzierten Zustand, erkennbar an der roten

<sup>1</sup>Die eingerückten Abschnitte im Kleindruck geben zusätzliche Informationen, die für das Verständnis des Films hilfreich sind.

Farbe. Wenn die Bromidkonzentration einen bestimmten Schwellenwert unterschreitet, kommt die zweite Reaktionsfolge ins Spiel (Abb. 2b). Bromat reagiert mit Malonat und  $\text{Fe}^{\text{II}}$ -Phenanthrolin. Hierbei wird Malonat bromiert und der Indikatorfarbstoff zum blau gefärbten  $\text{Fe}^{\text{III}}$ -Phenanthrolin oxidiert. Das sich anhäufende Bromomalonat reduziert schließlich  $\text{Fe}^{\text{III}}$  zum  $\text{Fe}^{\text{II}}$ -Phenanthrolin. Hierbei werden Bromid und  $\text{CO}_2$  freigesetzt. Hohe Bromidkonzentrationen hemmen diese zweite Reaktionsfolge (blaue Phase) und starten wieder die rote Phase. Die Beteiligung weiterer Substanzen wie z.B.  $\text{O}_2$  der Luft ist hierbei nicht berücksichtigt.

In der homogenen Lösung entstehen spontan Zentren, von denen schwach-blaue Ringe ausgehen, gefolgt von breiteren orangefarbenen Ringen – hier leicht zeitgerafft dargestellt.

Die Ausbreitung der Ringe beruht auf dem Zusammenspiel von Diffusion und Reaktion der Redoxpartner.

Gleiche Farben entsprechen gleichen Oxidations-Zuständen.

Der Anstoß zur Ringbildung beruht auf zufallsbedingten Inhomogenitäten. Nach WINFREE ([22]) entstehen sie gewöhnlich an der Grenzfläche zwischen Lösung und Luft oder der Petrischale. Bereits Staubpartikel oder Kratzer in der Petrischale können als Schrittmacherzentren fungieren. Bei sorgfältiger Filtration des Mediums und extrem sauberen und glatten Gefäßen kommt es nur zu homogenen Oszillationen, nicht jedoch zur Bildung und Ausbreitung von Ringen. – Übrigens kann durch leichtes Schwenken der Petrischale eine Spiralenbildung ausgelöst werden.

Der Ring- und Spiralenbildung liegen dieselben chemischen Vorgänge wie bei den Oszillationen zugrunde. Wird das Gleichgewicht der homogen rot gefärbten Mischung ( $\text{Fe}^{\text{II}}$ -Phenanthrolin) z.B. durch ein Staubpartikel gestört, wird an dieser Stelle Bromid verbraucht, und die zweite Reaktionsfolge kommt in Gang, die das blau gefärbte  $\text{Fe}^{\text{III}}$ -Phenanthrolin produziert. Diese Umwandlung schreitet wellenförmig nach außen fort. Denn aus der angrenzenden roten Region diffundiert Bromid in den blauen Grenzbereich; es wird verbraucht, und die ursprünglich rote Farbe schlägt nach blau um. Wenn der blaue Ring über eine bestimmte Stelle hinweggewandert ist, schlägt dort die Farbe wieder nach rot um, da Bromomalonat  $\text{Fe}^{\text{III}}$ -Phenanthrolin reduziert und dabei mehr Bromid freisetzt.

Somit handelt es sich hier um echte chemische und nicht um hydrodynamische Wellen, denn in der Lösung herrscht keine Bewegung.

In der Mitte liegen zwei Zentren dicht nebeneinander. Die von ihnen ausgehenden Ringe wandern aufeinander zu, gleichfarbige Ringe verschmelzen miteinander.

Die chemischen Wellen unterscheiden sich von anderen Wellen dadurch, daß sie nicht an Hindernissen reflektiert werden und daß keine Überlagerung (Interferenz) erfolgt.

Die Ringe der verschiedenen Zentren sind unterschiedlich breit, bedingt durch unterschiedliche Reaktions- und Diffusionsgeschwindigkeiten.

Die entstehenden Blasen zeigen die Bildung von  $\text{CO}_2$  an.

Bei den beiden Zentren im oberen Bildteil entstehen in kürzeren zeitlichen Abständen schmalere Ringe.

Im Verlauf des Versuchs zwingen die Zentren mit den schmalsten Ringen auch den übrigen Zentren ihre Reaktionsgeschwindigkeit auf – sie fungieren als Schrittmacherzentren.

Zu Versuchsbeginn befindet sich die gesamte Flüssigkeitsschicht im selben Oxidationszustand. Deshalb erfaßt der Farbumschlag gleichzeitig die gesamte Fläche.

Allmählich entstehen aufgrund autokatalytischer Reaktionen zwischen den Nachbarbereichen zeitliche Verschiebungen der Reaktion, die zur Musterbildung führen.



Wir betrachten nun ein einzelnes Schrittmacherzentrum, hier markiert durch den schwarzen Kreis. Die etwas stärkere Zeitraffung zeigt deutlich die periodischen Farbumschläge: das Schrittmacherzentrum oszilliert. Oszillationen sind auch an jeder anderen Stelle des Bildfeldes zu beobachten.

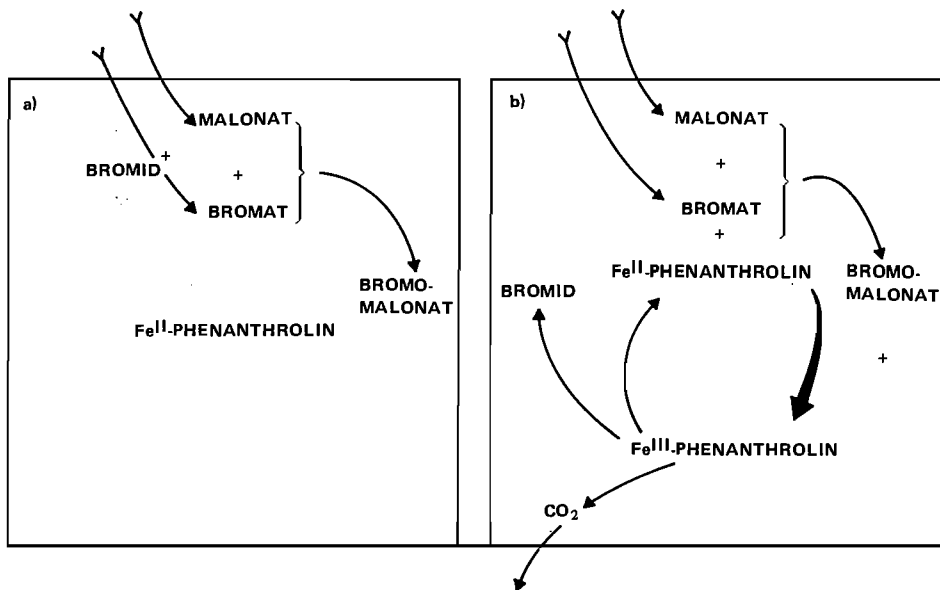


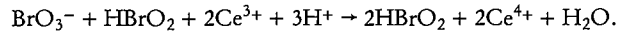
Abb. 2. Vereinfachte Darstellung der Reaktionsabfolge bei der Zhabotinski-Reaktion, die sich bei der Oszillation des Redoxkatalysators (und zugleich Farbindikators) Eisen-Phenanthrolin abspielt.  
 a: Rote Phase (Fe<sup>II</sup>-Phenanthrolin); b: Blaue Phase (Fe<sup>III</sup>-Phenanthrolin)

Ein besonders anschauliches Bild für den Zusammenhang zwischen Oszillationen und Musterbildung gibt HAKEN ([12]), der die Entstehung der konzentrischen Ringe mit einem Steppenbrand vergleicht. „Der rote Untergrund stellt eine Fläche ausgetrockneten Grases dar. Legen wir an einer Stelle Feuer und ist es windstill, so wird sich das Feuer gleichmäßig nach allen Seiten, d.h. kreisförmig ausdehnen. Sehen wir den verbrannten Untergrund als blau an, so entsteht also ein blauer Fleck, der nach außen immer mehr anwächst. Im Innern kann das Gras nachwachsen und wieder trocknen, sodaß ein roter Fleck entsteht. Da das Gras hinter der sich ausbreitenden Front nachwächst, aber noch nicht brennbar ist, wird sich der rote Fleck weiter nach außen ausbreiten, bis schließlich das Gras im Innern so getrocknet ist, daß es wieder brennbar geworden ist. So dann beginnt der gesamte Vorgang von neuem“.

Charakteristisch für Systeme des Zhabotinsky-Typs ist die Entstehung von Schrittmacherzentren sowie die wellenförmige Ausbreitung chemischer Reaktionen. Diese sind vernetzt und gekoppelt und autokatalytisch gesteuert.

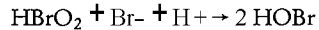
Der so einfach erscheinende Vorgang der Musterbildung beruht auf einem sehr komplizierten Wechselspiel von chemischen Reaktionen und Diffusionsvorgängen, das sich durch Reaktions-Diffusions-Gleichungen beschreiben läßt. Die autokatalytischen Vorgänge spielen eine entscheidende Rolle: Es handelt sich hier um einen Spezialfall eines Rückkopplungsmechanismus,

bei dem die Produktionsrate einer Substanz mit ihrer Konzentration ansteigt. FIELD et al. ([5]) zeigten, daß auf der Basis eines einzigen **autokatalytischen** Prozesses ein **Oszillationsmechanismus** aufrecht erhalten werden kann: In ihrem Bromat-Cer-Malonsäure-System handelt es sich dabei um die autokatalytische Produktion von Bromit nach der Gleichung



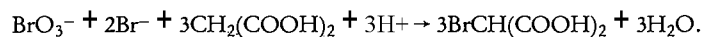
(Ohne Zweifel übernimmt beim Zhabotinsky-System Fe-Phenanthrolin die Rolle der Cer-Ionen).

Im ersten Reaktionsprozeß wird dieser Schritt durch Bromid verhindert, da nach der Gleichung



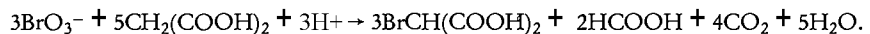
HBrO<sub>2</sub> verbraucht wird.

Die Senkung der Bromid-Konzentration erfolgt nach der Gleichung



Die Oszillationsreaktion kann nur so lange ablaufen, wie chemische Energie umgesetzt wird. Hierbei wird Malonsäure verbraucht und CO<sub>2</sub> gebildet.

Die Gesamtreaktion entspricht der Umsetzung



Die Änderung der freien Enthalpie bei dieser Reaktion hält die Oszillationen in Gang.

Wird das chemische Gleichgewicht erreicht, so hört die Musterbildung auf. Wegen des notwendigen Energieflusses spricht man von einem dissipativen Muster.

Auch biologische Systeme zeigen insbesondere bei morphogenetischen Prozessen analoge Vorgänge, die an Aufnahmen aus dem Jahre 1963 gezeigt werden.

In der Aggregationsphase des Schleimpilzes *Dictyostelium* entstehen Schrittmacherzentren, von denen konzentrische Wellen ausgehen. Hier eine mehrfache Wiederholung des zeitgeirten Vorgangs.

Aggregationsbereite Amöben, die in Richtung auf die Zentren wandern, erzeugen das Wellenmuster durch rhythmische Veränderungen ihrer Zellform.

Bei starker Vergrößerung erkennt man die rhythmische Streckung und Kontraktion der Einzelamöbe zum Schrittmacherzentrum hin – hier nach rechts unten.

Die Streckung wird durch cyclisches AMP induziert, das vom Schrittmacherzentrum periodisch abgegeben wird.

Die wellenförmige Verteilung des cyclischen AMP, die auf autokatalytischen Prozessen beruht, ist chemische Grundlage für die Aggregation der Amöben.

Bei diesem System beruht die Musterbildung somit auf einem zwar nicht sichtbaren, jedoch mit Radioisotopen nachweisbaren chemischen Vormuster (TOMCHICK und DEVREOTES [19]), das durch die cAMP-Verteilung gegeben ist und das chemotaktische Verhalten der Amöben bestimmt. In zufällig entstehenden Schrittmacherzentren in einer hungrigen Amöbenkultur, den künftigen Aggregationszentren, erfolgen periodisch cAMP-Ausschüttungen, die sich wellenartig von den Zentren wegbewegen. Eine Amöbenzelle reagiert in zweifacher Weise auf einen cAMP-Impuls: Sie verstärkt das Signal, indem sie zusätzliches cAMP abgibt, und sie bewegt sich entgegen der Richtung des Diffusionsgefälles. Wandernde Zellen sind verlängert und erscheinen in der Dunkelfeld-Photographie heller als die stationären, runden Zellen. Die aus wandernden Zellen bestehenden hellen Bänder bilden konzentrische Ringe um die Aggregationszentren, in anderen Ansätzen auch Spiralen.

Analog zur Bildung chemischer Muster vom Zhabotinsky-Typ lassen sich auch hier Reaktions-Diffusions-Modelle aufstellen, die auf der Basis von Oszillationen und Diffusionsprozessen das Zeilmuster beschreiben (z.B. HAGAN und COHEN [10], FUTRELLE [6]). Auch hier sind im Prinzip zwei Reaktionssequenzen erforderlich, die zur periodischen Bildung und Entfernung von cAMP führen und autokatalytische sowie Hemmreaktionen einschließen.

Im Gegensatz zu den rein chemischen Modellreaktionen beteiligen sich am Zustandekommen des cAMP-Musters biochemische Reaktionen der Zelle. Über die Einzelabläufe einschließlich der Transportprozesse ist bereits sehr viel bekannt, wie G. GERISCH (z.B. Übersichtsartikel [7]) gezeigt hat, dem wir auch die Filmaufnahmen zur Aggregation von *Dictyostelium* verdanken. Diese sind 1963 in Zusammenarbeit mit H.-H. HEUNERT (IWF) entstanden.

### English Version of the Spoken Commentary

The Zhabotinski-reaction depends on simple chemical compounds triggering off a complex redox reaction.

Bromate ions serve as oxidants.

Bromide ions inhibit the oxidation reaction.

On adding bromide, the brown colour indicates release of bromine.

Malonic acid is the third reactant.

The entire reaction is sustained by the decarboxylation of malonic acid. The solution decolorizes – as shown in slight time lapse – within a matter of minutes, as bromine continues to react.

Finally, ferroin is added as redox catalyst. Its chemical name is phenanthrolineferrous sulphate. This compound catalyses the oxidative decarboxylation of malonic acid.

The homogeneous mixture is poured out into a thin layer.

The catalyst changes its stage of oxidation periodically.

As phenanthrolineferrous sulphate it is orange coloured; as phenanthrolineferric sulphate it is pale blue. It serves as a redox indicator.

Throughout the homogeneous solution, points of origin arise and produce pale blue rings, which are succeeded by broader orange-coloured rings – shown here in slight time lapse. The propagation of the rings depends on the interplay of diffusion and reaction between the redox reactants. Like colours correspond to like states of oxidation.

In the middle, two centres lie close together. The rings emanating from them approach one another, and rings of the same colour merge.

The rings produced by different centres are of various breadths, depending on the various reaction and diffusion velocities.

The bubbles result from the CO<sub>2</sub> produced during the reaction.

The two centres in the upper part of the picture are producing narrower rings at shorter intervals.

During the course of the experiment, the centres with the narrowest rings impart their reaction velocity to the other centres. They function as pacemakers.

At the outset of the experiment, the entire fluid layer is in the same state of oxidation. Therefore the colour change affects the whole area at once.

Due to autocatalytic reactions, differences in reaction velocity between neighbouring regions gradually occur, giving rise to the Patterns.

Let us now observe a single pacemaker centre, marked with a black ring. Lower time-lapse frequency clearly shows the periodic colour changes: the pacemaker oscillates. Oscillations can also be observed at every other part of the picture.

Systems of the Zhabotinski type are characterized by the occurrence of pacemaker centres as well as by the wavelike propagation of chemical reactions. They are crosslinked, coupled and autocatalytically regulated.

The oscillations persist only as long as chemical energy is available. In producing it, malonic acid is used up and CO<sub>2</sub> released.

Once a chemical equilibrium has been achieved, the patterns disappear. On account of the necessary energy flux we refer to them as dissipative patterns. –

Biological systems also exhibit analogous processes, particularly during morphogenesis, as these film sequences produced in 1963 show.

During the aggregation stage of the slime mould *Dictyostelium* pacemaker centres are formed and give rise to concentric waves. –

This process is shown repeatedly in time lapse. –

Amoeboid cells migrating to a number of aggregation centres produce the wave pattern by rhythmical changes in their cell form.

At higher magnification, the rhythmical extension and contraction of the individual amoebae towards the pacemaker centre at bottom right is clearly recognizable.

Extension is induced by cyclical AMP being produced periodically at the pacemaker centre. The wavelike distribution of cyclic AMP, which is due to autocatalytic processes, is the chemical basis of this amoeboid aggregation.

### Zusammenfassung und Ausblick

Die Zhabotinsky-Reaktion ist ein leicht realisierbares Beispiel eines dissipativen Musters. Im Gegensatz zu stabilen und statischen Mustern, zu denen Liesegang'sche Ringe, Klangfiguren oder Moiré-Muster zählen, erfordern dissipative Strukturen eine laufende Umsetzung von Energie; das System befindet sich weit entfernt vom chemischen Gleichgewicht – entweder weil ein früher Reaktionszustand vorliegt oder weil das System offen ist, d.h. einen Zustrom von Energie und Stoffen von außen erhält. Charakteristisch für diesen Typ ist das oszillierende Verhalten von Intermediarkonzentrationen, bei der Zhabotinsky-Reaktion z.B. des Eisen-Phenanthrolins, das hier als Redoxkatalysator und gleichzeitig als Farbindikator dient. Dies gilt jedoch nicht für die Ausgangssubstrate und Endprodukte, deren Konzentrationen sich monoton verändern. Ein weiteres Merkmal sind Rückkopplungsmechanismen, bei denen ein Reaktionsprodukt die eigene Synthesegeschwindigkeit beeinflusst, nämlich durch Autokatalyse und/oder Hemmung. Ein einfaches Reaktionsschema für periodische Prozesse auf der Basis von zwei autokatalytischen Reaktionen wurde von LOTKA und VOLTERRA Anfang dieses Jahrhunderts aufgestellt. Ein sehr instruktives und einfach nachzuvollziehendes Beispiel findet sich bei EIGEN und WINKLER ([3]) auf S. 110 ff. Schließlich muß ein oszillierendes System eine Bistabilität aufweisen, d.h. es muß in zwei verschiedenen stationären Zuständen existieren können.

Der Übergang von der homogenen oszillierenden Lösung zur Ausbildung räumlicher Strukturen erklärt sich durch zufallsbedingte Phasenverschiebungen innerhalb der Flüssigkeit.

Einflüsse wie Staubpartikel, Unebenheiten im Gefäß etc. führen zu winzigen Konzentrationsunterschieden innerhalb der Flüssigkeit. Wie PRIGOGINE gezeigt hat, führt in Gegenwart dieser Inhomogenitäten eine Kopplung autokatalytischer Prozesse mit Diffusionsvorgängen zu räumlich organisierten Strukturen makroskopischer Dimensionen (vgl. z.B. PRIGOGINE [17]), die sich grundlegend von statischen Mustern unterscheiden.

Das große Interesse an den dissipativen Strukturen im chemischen Modellversuch beruht auf der Vermutung, daß analoge Prozesse in der belebten Natur wirksam sind und Zugang zu den bislang rätselhaften Prozessen der biologischen Musterbildung und Morphogenese ermöglichen. In der Tat zeigt das Beispiel der Aggregationsmuster von Dictyostelium-Amöben, daß die bekannten biochemischen Abläufe sich zwanglos in die oben beschriebenen Vorgänge einordnen lassen.

Der biologische Vorteil solcher Mechanismen ist unübersehbar. Ein Reaktions-Diffusions-Modell vereinfacht nach HAGAN und COHEN ([10]) wesentlich die Umsetzung genetischer Information in einen morphogenetischen Ablauf. Denn es müssen nicht mehr für jeden einzelnen Teilschritt neue Gene exprimiert werden, sondern es ist nur noch an einer Minimalzahl von Schlüsselpunkten eine Genexpression notwendig. Wie HESS ([13]) betont, lassen sich viele komplexe dynamische Phänomene der Zellbiologie durchaus auf einfache biochemische Prinzipien reduzieren. Denn physikalische Vorgängen wie z.B. Zeitgeberfunktionen, Signalübertragung oder Ortsinformation bei der Morphogenese können aus den Grundeigenschaften von Enzymen abgeleitet werden.

Das notwendige wissenschaftliche Rüstzeug liefert die Synergetik, eine interdisziplinäre Wissenschaft, welche die allgemeingültigen Prinzipien untersucht, die der Entstehung makroskopischer Ordnungszustände zugrunde liegen (HAKEN [11]). Die augenfälligen Parallelen zwischen unbelebten und lebendigen Systemen, die sich auch in dem Titel „Modellreaktionen der Morphogenese“ widerspiegeln, sollten allerdings nicht über den enormen Komplexitätsunterschied hinwegtäuschen, der auch weiterhin die Frage „Was ist Leben?“ aktuell erscheinen läßt.

#### Danksagung

Wir danken Herrn Prof. Dr. G. GERISCH, Max-Planck-Institut für Biochemie (Martinsried) für seine Zustimmung zur Veröffentlichung der Szene „Aggregation von Dictyostelium“, die in Zusammenarbeit mit dem Institut für den Wissenschaftlichen Film in Göttingen unter Förderung der DFG 1963 aufgenommen wurde.

#### Literatur

- [1] BRAY, W.C.: J. Amer. Chem. Soc. 43 (1921), 1262.
- [2] BELOUSOV, B.P.: Ref. Radiats. Med., Medgiz, Moscow, 145 (1959).
- [3] EIGEN, M., u. R. WINKLER: Das Spiel. R. Piper & Co. Verlag, München, Zürich 1975.
- [4] EPSTEIN, I.R., K. KUSTIN, P. DE KEPPER, and M. ORBÁN: Sci. Am. 248, 3 (1983), 96.
- [5] FIELD, R.J., E. KÖRÖS, and R.M. NOYES: J. Am. Chem. Soc. 94 (1972), 8649.
- [6] FUTRELLE, R.P.: J. Cell Biochemistry 18 (1982), 197.
- [7] GERISCH, G.: Ann. Rev. Physiol. 44 (1982), 535.
- [8] GIERER, A., and H. MEINHARDT: Kybernetik 12 (1972), 30.
- [9] GIMENEZ, M., and J.-C. MICHEAU: Naturwissenschaften 70 (1983), 90.

- [10] HAGAN, P.S., and M.S. COHEN: J. theor. Biol. **93** (1981), 881.
- [11] HAKEN, H.: Synergetics. An introduction. Non-equilibrium phase transitions and self-organization in physics, chemistry and biology. Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York 1977.
- [12] HAKEN, H.: Erfolgsgeheimnisse der Natur. Synergetik: Die Lehre vom Zusammenwirken. 2. Auflage. Deutsche Verlags-Anstalt, Stuttgart 1981.
- [13] HESS, B.: Hoppe-Seyler's Z. Physiol. Chem. 364 (1983), 1.
- [14] JESSEN, W.: Naturwissenschaften 65 (1970), 449.
- [15] KÖRÖS, E., and M. ORBÁN: Nature 273 (1978), 371.
- [16] MEINHARDT, H., and A. GIERER: J. theor. Biol. 85 (1980), 429.
- [17] PRIGOGINE, I.: Vom Sein zum Werden. Zeit und Komplexität in den Naturwissenschaften. 2. Auflage. R. Piper & Co. Verlag, München, Zürich 1980.
- [18] SCOTT, G.P.: Naturwissenschaften 6P (1981), 203.
- [19] TOMCHIK, K.S., and P.N. DEVREOTES: Science 212 (1981), 443.
- [20] TURING, A.M.: Phil. Transact. Roy. Soc. Lond. Ser. B 237 (1952), 37.
- [21] WALKER, J.: Sci. Am 239, 1 (1978), 120.
- [22] WINFREE, A.T.: Sci. Am. 230, 6 (1974), 82.
- [23] ZEIKIN, A.N., and A.M. ZHABOTINSKI: Nature (London) 225 (1970), 535.
- [24] ZHABOTINSKI, A.M.: Dokl. Acad. Nauk SSSR 157 (1964), 392.

#### Abbildungsnachweis

Abb. 1: Aufnahme aus dem Film C 1473 (Die Zhabotinsky-Reaktion als Modell einer Musterbildung);  
Abb. 2: Nach einer Trickvorlage aus dem vorliegenden Film.