
An Introduction to Motility-Induced Phase Separation

禰科材 PB20030874

中国科学技术大学 化学物理系

2022 年 6 月 25 日

摘要

活化物质包括自泳胶粒和微生物两类。由于能量的不断耗散，它们并不遵守热力学平衡定律，也不服从玻尔兹曼分布，并且会在移动较慢的地方积聚。并且生物化学以及空间位阻也会使得它们在密度较大的地方减速。这种正反馈将最终导致高密度相和低密度相的动力诱导相分离 (MIPS)。在一阶微分的意义下，这种活化的自推进粒子和非活化、但是相互吸引的粒子之间存在着对应关系，在计算机模拟中也被证实和平衡态的非活化物质有深层次的联系。

但在更高阶微分意义下，这种对应关系将不再适用——新的非平衡现象涌现了出来。本文将聚焦于理论模型、计算机模拟与实验验证三个方面，有选择性地概述了飞速发展中的 MIPS 领域。

关键字：自泳粒子 自泳胶体 细菌 相分离 运动性 活性布朗粒子

Abstract

Active matter, including self-phoretic synthetic colloids and micro-organisms, consume energy continuously thus allowing it self to bypass the laws of equilibrium thermodynamics and Boltzmann distribution. It is observed that self-propelled particles aggregate where they move more slowly, and may also slow down under higher density for either biochemical or steric facts, which creates positive feedback that leads to motility-induced phase separation (MIPS) between dense and dilute fluid phases. At leading order in gradients, there are some relations between the variable-speed, self-propelled particles and passive particles with attractions, which is confirmed by computational simulations.

However, as new phenomenology emerging without equilibrium counterparts, this deep link breaks down at higher order of gradients. Aiming on theory, simulation and experimental justification, this review gives a selective overview of this fast-developing field of MIPS.

Keywords: self-propelled particles, self-phoretic colloids, bacteria, phase separation, motility, active Brownian particles

目录	2
目录	
1 引言	3
2 活性粒子的运动模式	3
2.1 ABP 粒子和 RTP 粒子	3
2.2 一维群体感应模型	5
3 MIPS 的微观动力学模型	6
3.1 QSAP 模型	7
3.2 ABP 模型	7
3.3 AOUP 模型	8
4 典型结果	8
4.1 计算模拟：惯性的影响	9
4.2 实验证据：自泳胶体	12
5 总结与展望	15

1 引言

“活化物质”是一种非平衡系统，它的能量在微观尺度下不断耗散，同时系统的每一部分都在进行着不可逆的运动。这要求组成系统的每一个“粒子”具有自驱动的能力，比如自然界中的鸟群与鱼群、细胞中的肌动蛋白微丝以及细胞微管或者人工合成的自泳胶体 [3, 24] 等等。虽然这些领域都有各自独特的研究成果，但对这一类非平衡系统的普适性研究正愈发引起人们的关注——活化粒子和处于平衡态的粒子受到的作用力相似，人们自然期望这样的非平衡系统在常见的热力学理论框架下能有一套独特的表述形式。

由活化物质组成的热力学系统具有许多新的行为，比如动力学手性 (dynamic chirality) [7–10] 极化集群 (polar swarms) [11–14] 和涡旋 (collective vortex) [13–16] 等非平衡现象。又如，当某种细菌的局部浓度超过了特定上限，将会聚集在水体表面形成生物膜——这在平衡系统中是不会发生的。所以对均匀分散的系统如何演化为非均匀的系统的研究将会为人们理解细菌的群体行为提供全新的视角。此外，复合新材料以及软物质等领域的许多方面都和活性物质系统有关。

在活性物质的研究领域，最令人瞩目的是动力诱导下具有不同密度两相的分离 (MIPS)。非活性粒子的相分离来源于粒子间的吸引作用抵抗了混合熵的增加。但活性粒子的相分离则完全起源于非平衡系统内禀的动力学性质——即使粒子间存在完全的排斥作用，系统仍然会向类似气液相分离的方向演化，这对于非活性物质来说几乎是不可能的 [4, 5]。当活性粒子的速度随局部浓度的增加而下降到一定程度时，均匀分布将会愈发不稳定，从而形成稀薄相与稠密相的分离，其中稠密相的整体速度较为缓慢，使得它的运动与熔岩灯中发光蜡非常相似 [3]。

由于相关文献纷繁冗杂，本文将关注其中最重要的方面，从相分离的动力学起源出发，阐明相互作用对活化粒子的影响。我们将特别讨论活性粒子的运动模式及其微观粒子模型，并概述这一领域在分子模拟和实验验证两方面的进展。

2 活性粒子的运动模式

2.1 ABP 粒子和 RTP 粒子

活性物质系统的最小单元，可以简单看成是一个以恒定速度 v_0 向 \mathbf{n} 方向运动的自泳粒子。根据速度方向的变化情况可以将这种运动模式粗略分为方向连续变

化的转动布朗粒子模型 (Active Brownian Particles, ABP) 以及方向不连续变化的行进-转向粒子模型 (Run-and-Tumble Particles, RTP)。这种定向运动或是消耗化学燃料, 比如通过催化 H_2O_2 催化分解产生的气体推进; 或是依靠某种外部驱动, 比如使用光源照射具有趋光性或者避光性的细菌群——这两种作用都将系统脱离热力学平衡 [1, 6, 23]。

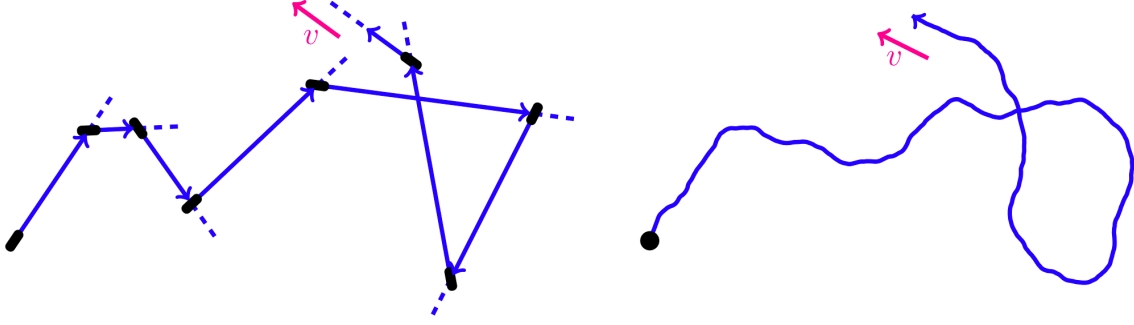


图 1: RTP 粒子和 ABP 粒子的运动模式

对于采取 RTP 模式运动的粒子, 假设其行进速度为 v 、变向频率为 α , 则在时空尺度 $l \gg \alpha^{-1}$ 且 $l \sim v/\alpha$ 时的极限即是最常见的随机游走, 易得它在 d 维空间中的扩散系数 D 为

$$D = \frac{v^2}{2d}$$

如果活化粒子采取 ABP 模式, 假设其行进速度同样为 v , 但行进方向通过取向角度的扩散作用随时间连续变化, 也称为“角向布朗运动”, 其中角度变量的扩散系数为 D_r 。它在时空尺度 $l \gg \alpha^{-1}$ 且 $l \sim v/\alpha$ 时的极限同样是随机游走, 其扩散系数 D 为

$$D = \frac{v^2}{d(d-1)D_r}$$

所以通过一块无限小面积的流量 $J(x)$ 可以写作

$$J(x) = -\frac{v^2}{\alpha} \frac{d\rho}{dx} - \frac{v\rho}{\alpha} \frac{dv}{dx}$$

如果系统达到了稳态, 也就是说 $J(x) = 0$, 求解微分方程, 不难得到

$$\rho(x) = \rho_0 \frac{v_0}{v(x)}$$

其中 ρ_0 是系统的平均浓度, v_0 是粒子运动的平均速率。如果考虑活性粒子只有两种速度可供选择(这种情况在光诱导的条件下很容易实现), 可以认为粒子在特定区域的浓度与它在此的运动速率成反比关系。实验已经证明, 感光细菌可以被一定强度分布的光照诱导为实验人员想要的形态(图 2)。

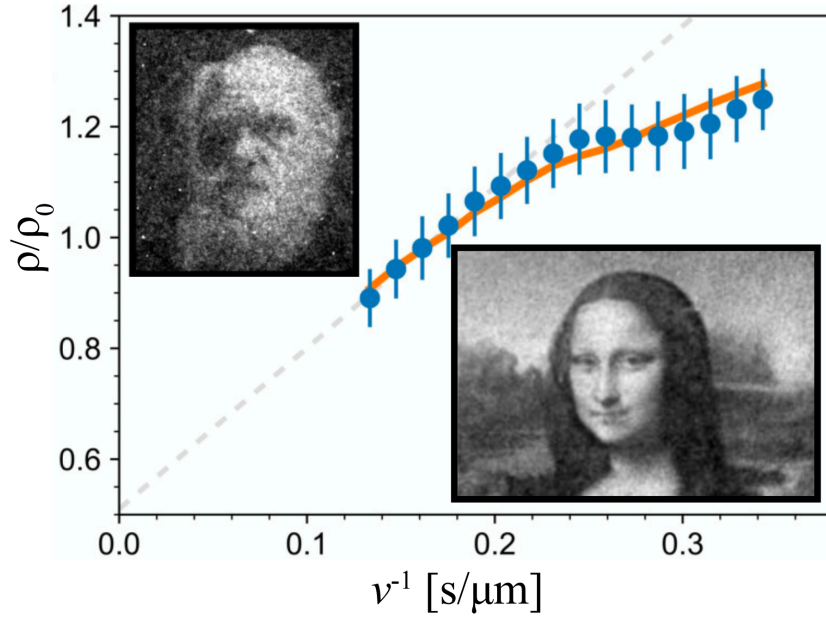


图2: 一项针对的细菌实验测得的局部密度与速度的关系, 虚线表示密度与速度的预测关系为 $\rho \sim v^{-1}$, 数据在低速区间的偏差主要与细菌之间的相互排斥导致的局部密度无法继续上升有关。在适当的外加光场照射下, 细菌群分布的密度剖面图将呈现出蒙娜丽莎和达尔文的画像。

2.2 一维群体感应模型

现在考虑一个运动速度依赖于局部浓度的活性物质系统, 即粒子的速度 $v(x) = v[\rho(x)]$ 。从微生物学的角度来看, 这是群体感应现象的简化模型 [4]: 细菌通过感应局部化学物质浓度来调整基因表达的生物表现型, 从而对局部细菌密度作出一定的响应, 比如降低行进速度。这在生物膜的形成初期较为常见。

如果对浓度 $\rho_0 \equiv c/v_0$ 的均一体系做微小扰动 $\delta\rho$, 粒子的局部速度将会变为

$$v[\rho_0 + \delta\rho(x)] = v(\rho_0) + v'(\rho_0)\delta\rho(x)$$

如果 $v' < 0$, 则当局部密度增加时运动速度将会下降。如果速度的降低超过了一定的限度, 引发的正反馈循环就会最终导致 MIPS 的形成。对于线性项

$$\rho_0 + \delta\rho' = \frac{c}{v(\rho_0) + v'(\rho_0)\delta\rho} = \rho_0 \left[1 - \frac{v'(\rho_0)}{v(\rho_0)}\delta\rho \right]$$

在 $\delta\rho' > \delta\rho$ 的情况下, 系统将会进入 MIPS 正反馈循环, 所以线性稳定区域为

$$\frac{v'(\rho_0)}{v(\rho_0)} < -\frac{1}{\rho_0}$$

由此可见，在 $\rho > \rho_0$ 的区域，密度均一的体系将会变得不稳定，从而通过旋节线分解机理 (spinodal decomposition) 而形成浓稀两相 (图 3)。

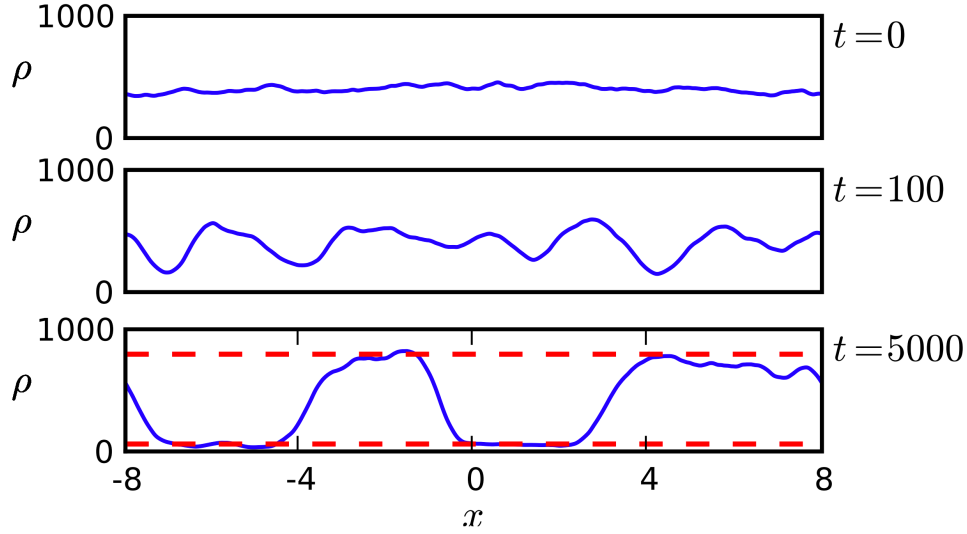


图 3: 一维群体感应粒子的密度分布随时间的变化，可以看到在 $t = 0$ 时密度均一的体系随时间的增加逐渐分离为高密度和低密度的两相。

事实上，更精细的稳定性判据需要借助局部自由能密度 $f_0(\rho)$ ，满足 $d^2 f_0/d\rho^2 < 0$ 。而自由能密度 $f_0(\rho)$ 的表达式为

$$f_0(\rho) = \rho(\ln \rho - 1) + \int^\rho \ln v(\mu) d\mu$$

等号右边第一项可以看做是理想气体状态熵，它将会引导系统向密度均一的稳定相弛豫；第二项则可以看做是局部密度的上升而带来的运动速度下降，也即 MIPS 能够发生的原因。

然而在对自由能做高阶展开的过程中，由于界面自由能项的出现，这种热力学上的对应关系此时不再适用。但即使 MIPS 微观动力学机理和非活化相平衡系统之间存在着明显的区别，它仍然表明在介观尺度下两者具有很大的相似性。

3 MIPS 的微观动力学模型

现今 MIPS 的理论与计算研究领域主要有三种粒子模型 [2, 23]，分别是群体感应粒子模型 (QSAP)、活化布朗粒子模型 (ABP) 以及活化 Ornstein-Uhlenbeck 模型 (AOUP)。虽然图 (3) 将一维的群体感应模型的相分离现象清晰地刻画了出来，我们仍然需要研究 2 维和 3 维的情况，以期获得对 MIPS 相图和它的成核动力学更多定量的理解。

2 维和 3 维的 MIPS 系统差别不大，所以接下来的讨论仅限于二维系统。

3.1 QSAP 模型

对上一节的一维 (QSAP) 模型推广至二维，不难得到

$$\frac{\partial \mathbf{r}_i}{\partial t} = v[\rho(\mathbf{r}_i)]\mathbf{n}_i + \sqrt{2D_T}\Lambda_T, \quad (\text{QSAP}) \quad (1)$$

其中 \mathbf{r}_i 是第 i 个粒子的坐标， \mathbf{n}_i 是运动方向上的单位矢量。等式右边第二项是由自发浓度扩散控制，其扩散系数为 D_T ，而 Λ_T 为高斯白噪声，它满足

$$\begin{aligned} \langle \Lambda_i(t) \rangle &= 0 \\ \langle \Lambda_{i\alpha}(t), \Lambda_{i\beta}(t') \rangle &= \delta_{ij}\delta_{\alpha\beta}\delta(t-t') \end{aligned}$$

在计算机模拟的过程中，为了计算处于 \mathbf{r} 处的瞬时粒子密度 $\rho(\mathbf{r}) = \sum_i \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i)$ ，通常需要将它和一个各向同性的核函数 K 做卷积：

$$\rho(\mathbf{r}) = \int K(\mathbf{r} - \mathbf{r}')\rho(\mathbf{r}')d\mathbf{r}'$$

在实际研究中，核函数通常取为

$$K(r) = \frac{\Theta(r_0 - r)}{Z} \exp\left(-\frac{r_0^2}{r_0^2 - r^2}\right)$$

其中 $\Theta(x)$ 表示 Heaviside 函数、 Z 为归一化因子，而 r_0 代表粒子的截断半径——如果两个粒子之间的距离超过 r_0 即可视为无相互作用。

3.2 ABP 模型

ABP 模型的优势在于计算模拟非常简单 [23]。这一模型认为粒子的运动速率恒为 v_0 ，并考虑粒子间成对相互作用 $\mathbf{F}_i(\mathbf{r}_j)$ ：

$$\frac{\partial \mathbf{r}_i}{\partial t} = v_0\mathbf{n}_i + \mathbf{F}_i(\mathbf{r}_j) + \sqrt{2D_T}\Lambda_T, \quad (\text{ABP}) \quad (2)$$

注意，这里的 v_0 包含了粒子自推进作用与环境阻尼的相互平衡，即自推动力 $F_p = v_0$ 。如前所述，ABP 模型还需要对运动方向角的变化加以修饰：

$$\frac{\partial \theta_i}{\partial t} = \sqrt{2D_R}\Lambda_R, \quad (\text{ABP}) \quad (3)$$

其中 D_R 为转动扩散系数， Λ_R 则代表高斯白噪声。

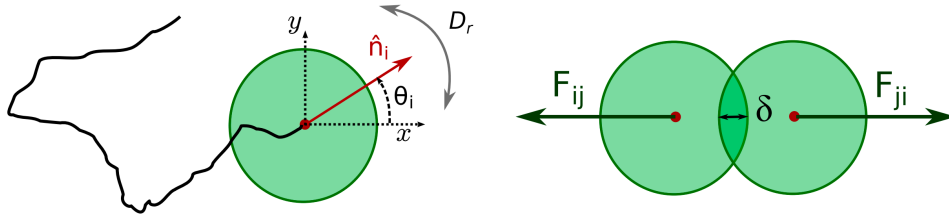


图 4: ABP 模型示意图, 左图表示 ABP 粒子以恒定速率前进, 但行进方向角 θ_i 受到白噪声的干扰; 右图则表示两个粒子的相互作用力等大反向。

3.3 AOUP 模型

相较于 ABP 模型, AOUP 模型基于 RTP 粒子模型, 略为复杂。它考虑的噪声不再是白噪声 (时间关联函数以 δ 函数的形式出现), 而是具有一定的记忆性。所以将噪声项合并进 \mathbf{v}_i :

$$\frac{\partial \mathbf{r}_i}{\partial t} = \mathbf{v}_i + \mathbf{F}_i(\mathbf{r}_j), \quad (\text{AOUP}) \quad (4)$$

其中速度 \mathbf{v}_i 为方程

$$\tau \frac{\partial \mathbf{v}_i}{\partial t} = -\mathbf{v}_i + \sqrt{2D_A \Lambda_A}, \quad (\text{AOUP}) \quad (5)$$

的解, 这里 τ 代表粒子向同一方向推进的持续时间, 其他项都与前述各式中的含义相同。

幸运的是, 求解方程 (5) 后, 速度的关联函数呈现指数衰减的形式

$$\langle v_{i\alpha}, v_{i\beta} \rangle = \delta_{ij} \delta_{\alpha\beta} \frac{D_A}{\tau} e^{-|t|/\tau}$$

所以 AOUP 模型不仅与 ABP 模型有相似的定量性质, 并且实际上简化了对 ABP 模型在理论分析上的麻烦。

4 典型结果

MIPS 研究领域可大致分为计算模拟和实验验证两个方向。得益于计算机的发展, 人们对 MIPS 的许多情况都作了深入讨论, 但很多模型尚未得到实验证实 [3, 24]; 实验方面则主要集中于对微生物和细菌的研究, 在研究微生物种群的发展与演化方面有一些应用 [4], 但很多实验现象也没有充足的理论加以解释。本文接下来将简要介绍 MIPS 在计算模拟和实验验证两方面的进展。

4.1 计算模拟：惯性的影响

目前绝大多数计算机模拟的工作都基于过阻尼的 ABP 模型。虽然过阻尼近似在许多新发现的非平衡行为中都有着广泛的应用前景，但是也在很多地方遇到了一些难以逾越的障碍，比如由惯性诱导的熵产生在粒子质量极其微弱的情况下仍然会导致整体行为较大的改变 [17–19]。所以研究粒子的惯性怎样影响 MIPS 是当前的一个热门方向，新的视角可能会在对惯性作用的研究中被发现。

在 [25] 中，研究人员分别考虑了惯性对系统两种特征的影响，一种是活性依赖的稳态局域浓度分布 (activity-dependent steady-state local density distributions, LLD)，另一种是时间依赖的聚集体生长动力学 (time-dependent cluster-growth kinetics, TDGK)，并认为惯性的存在将无惯性条件下的连续相变转化为非连续相变，并不经历旋节线分解以及晶体粗化的过程。

考虑一个无惯性的准二维系统，其中每一个 ABP 粒子满足的运动方程为过阻尼朗之万方程：

$$\gamma \frac{d\mathbf{r}_i}{dt} = f_0 \mathbf{n}_i - \sum_{j=1}^N \frac{\partial U(\mathbf{r}_{ij})}{\partial \mathbf{r}_i} + \mathbf{f}_i \quad (6)$$

$$\gamma_r \frac{d\phi_i}{dt} = g_i \quad (7)$$

其中 γ 表示摩擦系数， f_0 和 $\mathbf{n}_i = (\cos \phi_i, \sin \phi_i)$ 分别代表自驱动力的大小与方向。而相互作用势能取

$$U(\mathbf{r}_{ij}) = 4\epsilon \left[\left(\frac{\sigma}{r_{ij}} \right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r_{ij}} \right)^6 + \frac{1}{4} \right], \quad r_{ij} < 2^{1/6} \sigma$$

而 \mathbf{f}_i 满足

$$\langle \mathbf{f}_i(t), \mathbf{f}_j(t') \rangle = 2D_t \gamma^2 \delta_{ij} \delta(t - t')$$

而 γ_r 是旋转摩擦系数，而 g_i 是旋转涨落项，同样满足

$$\langle \mathbf{g}_i(t), \mathbf{g}_j(t') \rangle = 2D_r \gamma_r^2 \delta_{ij} \delta(t - t')$$

而对于有惯性的粒子 (AIP) 来说，只需再考虑惯性项 $M \frac{d^2 \mathbf{r}_i}{dt^2}$ 和转动惯量 $J \frac{d^2 \phi}{dt^2}$ ：

$$M \frac{d^2 \mathbf{r}_i}{dt^2} + \gamma \frac{d\mathbf{r}_i}{dt} = f_0 \mathbf{n}_i - \sum_{j=1}^N \frac{\partial U(\mathbf{r}_{ij})}{\partial \mathbf{r}_i} + \mathbf{f}_i \quad (8)$$

$$J \frac{d^2 \phi}{dt^2} + \gamma_r \frac{d\phi}{dt} = g_i \quad (9)$$

稳态浓度方面，图 (5a) 是具有不同推进力的粒子的相分离情况，可以看到在活性增加的过程中 ABP 粒子逐渐由密度集中的一相转化为浓稀两相，转化临界点大约处于 $f_0 = 30$ 的位置。和图 (5b) 中 AIP 粒子的相分离情况对比，AIP 系统转化的临界点增加到了 $f_0 = 150$ 的位置，并且阻尼过高后两相系统又回到一相。

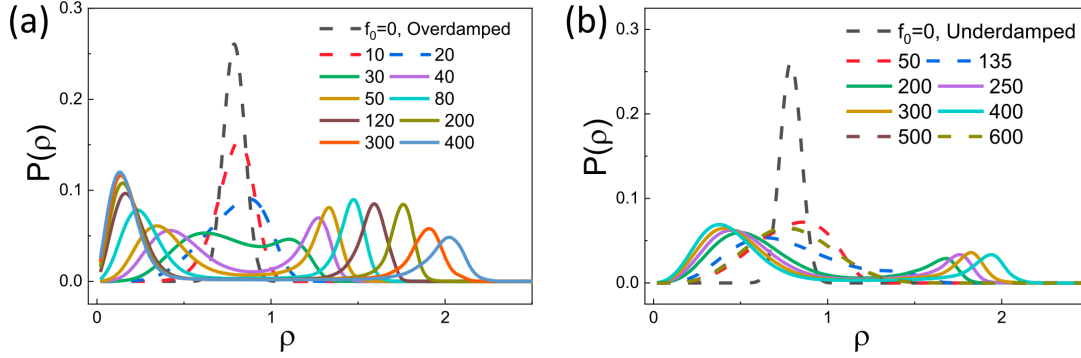


图 5: 不同推进力的粒子的稳态浓度分布

图 (6) 是 ABP 粒子和 AIP 粒子分别靠近相分离临界点时的稳态浓度分布。对于 ABP 粒子，一相情况下的密度峰形位置基本没有改变，分离时双峰的形态也基本相同。而对于 AIP 粒子而言，在活性逐渐增加的过程中一相密度峰的位置逐渐移向低浓度区域，并且高浓度相的浓度峰的形成和增长并不是连续的。

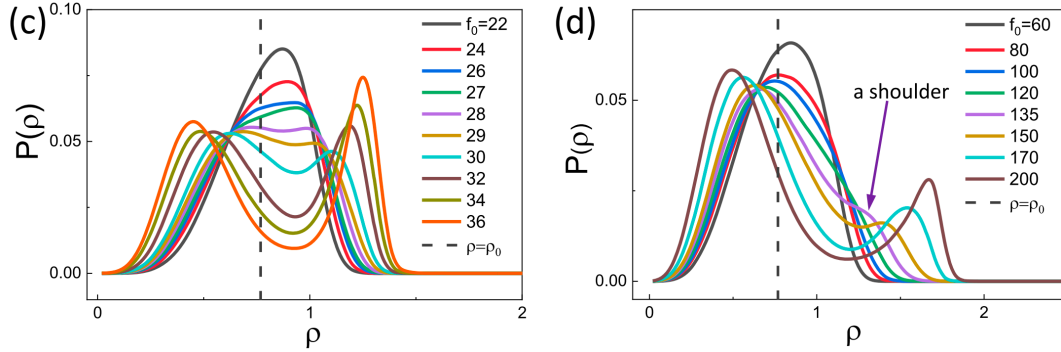


图 6: ABP 粒子和 AIP 粒子靠近相分离临界点时的稳态浓度分布

对于惯性诱导相分离的机理，文章认为 ABP 粒子在碰撞时并不会马上弹开，而是需要等到推进方向改变之后才会各自往不同方向前进，这使得每次碰撞的作用都需要 $t = 1/D_r$ 的时长，而在这段时间内周围会有更多的粒子相互碰撞并且聚集，所以会逐渐导致 MIPS 的最终形成，如图 (7) 所示。

然而两个 AIP 粒子的碰撞是弹性碰撞，并不存在作用时间。这种惯性粒子特有的弹性碰撞将会增加粒子间的平均间距，从而导致聚集体的粒子密度降低。所以

总的来说,粒子的活性诱导粒子聚集,而惯性的存在将会阻碍这一过程,两种效应的平衡将会最终决定MIPS是否会发生[20,22]。

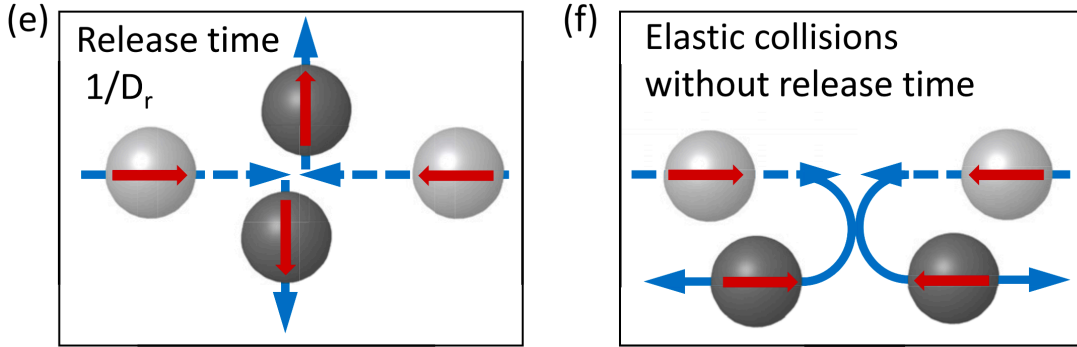


图 7: ABP 粒子和 AIP 粒子碰撞时的情况

系统时间依赖的聚集体增长动力学 (Time-Dependent Cluster-Growth Kinetics, (TDGK)) 方面的表现同样能够证实上述机理。图 (8) 是 LDD 随时间增长的变化,左侧代表的 ABP 系统中只存在活性诱导的聚集作用,所以和稳态 LDD 一样,相分离随时间连续变化,但在 AIP 系统中相分离是跳跃式的。这同样表明 AIP 系统的 MIPS 并没有经过旋节线分解与晶体粗化的过程,而是缓慢成核后的迅速生长过程。

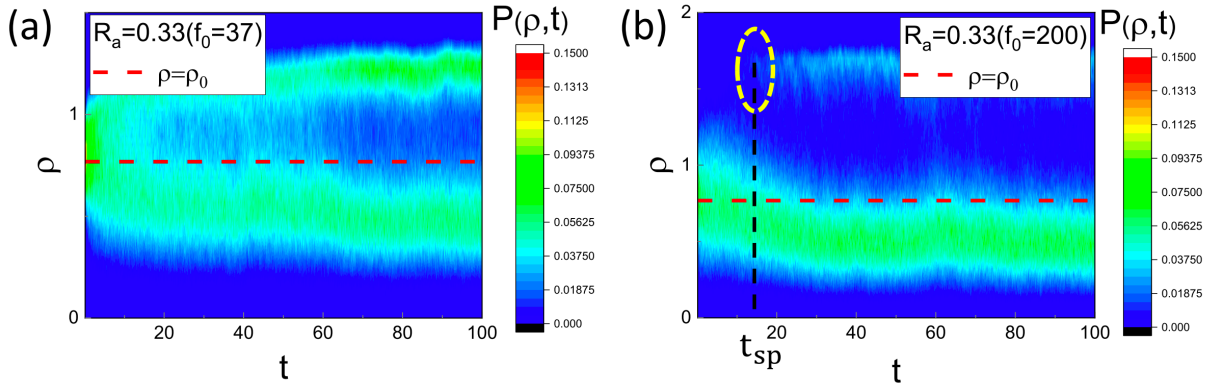


图 8: ABP 和 AIP 系统聚集体密度随时间的变化

此外,惯性的大小对 AIP 系统不连续的密度跳跃大小也会有一定的影响。但是当粒子质量超过了一定的限度,将不会再有 MIPS 的形成[21]——这与之前的讨论相符,而更大的质量对应着更大的密度跃升。图 (9) 为 AIP 系统相分离时间的系综平均 $\langle t_{sp} \rangle$ 与活化动力的关系,可以看到, $\langle t_{sp} \rangle$ 随活化动力的增加呈现指数衰减的形式

$$\langle t_{sp} \rangle = A_0 \exp[-R_0(f_0 - f_\mu^*)] + C_0$$

这进一步证实了惯性诱导的 MIPS 经历了一个类似成核的过程。其中 $\langle t_{sp} \rangle$ 与 f_0 的

关系与阿伦尼乌斯方程非常相近，所以式中 A_0 可以认为是成核的活化能，而惯性质量越大，活化能越大，所以惯性的存在能够抑制 MIPS 的形成。

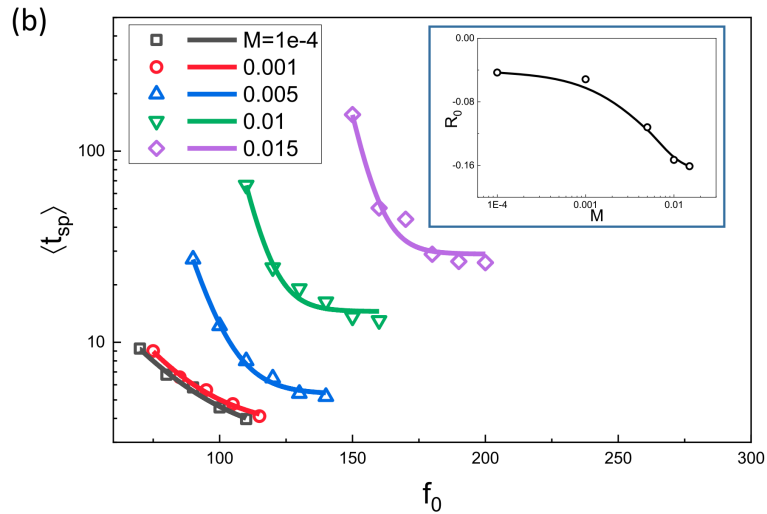


图 9: 相分离时间的系综平均与活化动力之间的关系

4.2 实验证据：自泳胶体

科学家已经能够合成许多种类的自泳胶体，它们通常以环境中的某些化学物质为燃料，通过化学反应的方式来实现自推进行为。比如将由均相反应制备的惰性金属胶体的一半镀上铂，在过氧化氢溶液中有铂的一面将会催化过氧化氢的分解，为游动提供动力 [26]。大多数情况下这样的系统总是准二维的，因为这样的粒子倾向于聚集在容器壁周围。不过在这种情况下依然会观察到的粒子聚集的现象也有可能是粒子间的相互吸引导致的。

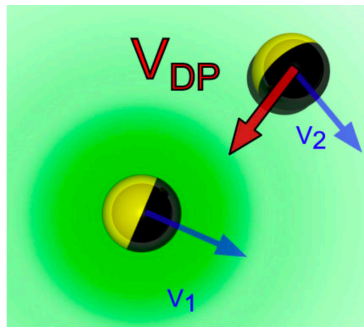


图 10: 铂-金双面粒子示意图，物质的消耗使得的粒子周围形成了一定的浓度梯度

参考文献 [24] 报道了外力场下自泳胶体 MIPS 行为的实验证据。研究人员将合成

的铂-金双面胶体粒子浸润于水和过氧化氢溶液中，通过光学显微镜模组和 MATLAB 程序来追踪自泳粒子的运动情况。

在纯水中，重力使得粒子在底部聚集而形成固相，在其上方则是非常稀薄、易于区分的气相。然而在过氧化氢加入后，粒子迅速活化并开始自推进，逐渐出现比较大的，时间大概需要几分钟。从图(11)中可以看到，虽然体系中的固相仍然存在，但固气界面将会变得模糊，并且顶部气相区域将会扩散得更高更远。

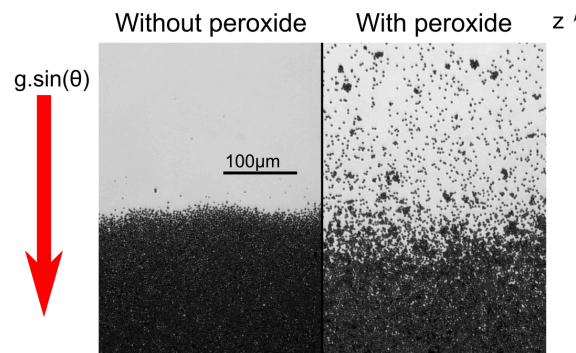


图 11: 水环境和过氧化氢环境中自推进粒子的相分离

图(12)是系统二维结构因子 $S(k) = \frac{1}{N} \langle \rho_k, \rho_{-k} \rangle$ 随面内波矢的变化情况。对于非活化粒子而言，虽然固相的固体特征非常明显，但是晶体结构不太完整；而对于活化粒子，可以看到图中第一个峰的高度明显减弱，晶体相的不稳定度增加，这和一些计算机模拟的结果非常相似 [27]。

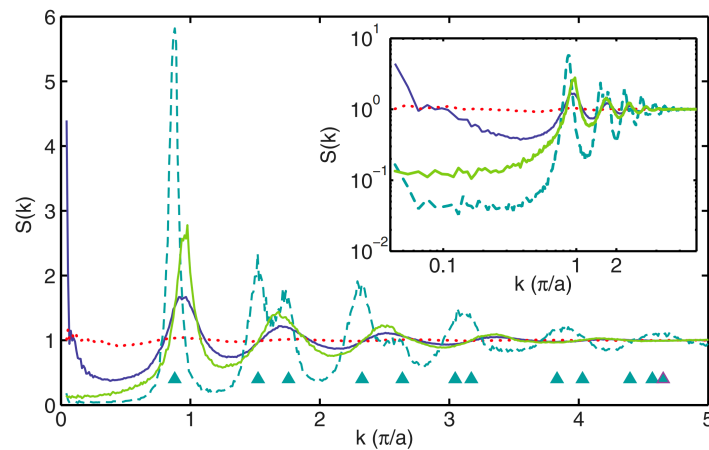


图 12: 二维结构因子随面内波矢的变化

在对粒子聚集体的进一步研究中，研究人员获得了更加惊人的发现。聚集体的形成是可逆的；组成粒子实际上在不断变化，并不只限于表面的粒子，而是整体的

组成都在改变(图 13); 并且粒子聚集体的尺寸和过氧化氢的浓度呈现反直觉的正相关线性关系。

研究人员认为, 这是由于制备的自推进粒子的推进原理是消耗周围的燃料, 所以在粒子周围会形成一定的浓度梯度, 它的大小大概与 $1/r$ 成正比。这种浓度梯度被认为会在粒子之间形成图 (10) 所示的散泳作用势 (diffusiophoretic interactions) V_{DP} 。

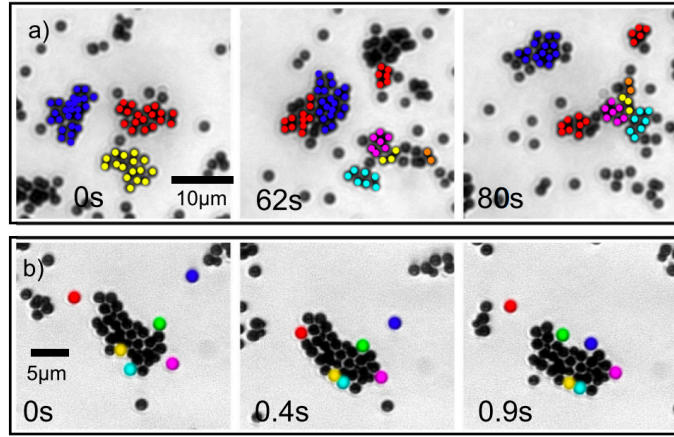


图 13: 聚集体的组成变化

文章指出, 这种独特的相互作用在一般相互吸引的胶体粒子中并不常见, 反而与细菌的化学浓度感应行为非常相似 [28–31]。在这一领域, Keller 和 Segel (KS) 富有前瞻性地使用平均场理论 (meanfield description) 来刻画细菌的行为, 并将细菌的扩散、化学浓度感应和化学诱导物的产生与扩散一并考虑在内 [30, 31]。运用 KS 理论, 设粒子浓度为 ρ 、化学诱导物浓度为 c , 则它们满足的方程为

$$\begin{aligned}\frac{\partial \rho}{\partial t} &= D_{\rho} \nabla^2 \rho - \nabla(\mu \rho \nabla c) \\ \frac{\partial c}{\partial t} &= D_c \nabla^2 c + \alpha \rho\end{aligned}$$

其中 D_{ρ} 以及 D_c 分别为粒子和化学诱导物的扩散系数, 而 α 为自推进化学反应在粒子表面上的速率。KS 理论模型的预测结果与实验符合的很好, 虽然实际上可能会有高阶非线性项的影响, 但我们暂时不考虑, 因为这不会在系统基本的稳定性上有较大的偏差。

然而, KS 理论并没有描述具体成核与聚集的细致机理, 也没有讲明单一聚集体和多个聚集体同时存在时的差别。这些都需要在理论方面做更多的工作。

5 总结与展望

本文聚焦于活性物质最引人瞩目的 MIPS 现象，较为详细地概述了这一领域以 RTP 粒子和 ABP 粒子为基础的 QSAP、ABP 以及 AOUP 微观动力学模型。在此基础上，本文从计算模拟和实验验证两方面分别介绍了对应的工作。

计算模拟方面，人们发现粒子的惯性会对 MIPS 产生抑制作用，它和动力学诱导的相分离相互对抗而达到平衡，从而能够决定系统是否会向 MIPS 发展，并认为惯性的存在将无惯性条件下的连续相变转化为非连续相变，并不经历常见的旋节线分解以及晶体的粗化过程。

实验验证方面，科学家在重力场下以合成的自泳胶体为实验对象，通过一定的数字化手段追踪 MIPS 粒子的行为，发现粒子聚集体的尺寸和过氧化氢的浓度呈现反直觉的正相关线性关系。文章认为，这是由于制备的自泳胶体特别的推进原理能够在粒子周围的浓度梯度导致的，并认为这一实验结果与细菌在化学诱导下的化学感应模型非常相似。

然而，目前人们提出的许多 MIPS 模型虽然在分子动力学模拟方面取得了丰厚的成果，但是大多尚未通过实验手段证实。显然，如果 MIPS 现象只能存在于计算机的数字运算中，那对于实际存在的问题而言是没有太大帮助的。并且现存的许多理论模型更无法解释在实验中观察到的丰富的非平衡现象。

所以对于 MIPS 的研究应当在理论突破和实验验证方面同时进行，从目前浩如烟海的模拟与实验数据中建立一个更加合适的模型，并通过实验来证明这一猜测——在文献查阅的过程中，尚未发现使用 AI 以及机器学习算法来学习预测 MIPS 的分子动力学，也许这是目前 MIPS 领域的一个突破口。

参考文献

- [1] Holger Stark. Artificial chemotaxis of self-phoretic active colloids: Collective behavior. *Accounts of Chemical Research*, 51(11):2681–2688, 2018.
- [2] Matthias Schmidt. Power functional theory for many-body dynamics. *Reviews of Modern Physics*, 94(1), 2022.
- [3] Michael E. Cates and Julien Tailleur. *Motility-Induced Phase Separation*, volume 6 of *Annual Review of Condensed Matter Physics*, pages 219–244. 2015.

- [4] M. Cristina Marchetti, Yaouen Fily, Silke Henkes, Adam Patch, and David Yllanes. Minimal model of active colloids highlights the role of mechanical interactions in controlling the emergent behavior of active matter. *Current Opinion in Colloid & Interface Science*, 21:34–43, 2016.
- [5] Zhan Ma, Mingcheng Yang, and Ran Ni. Dynamic assembly of active colloids: Theory and simulation. *Advanced Theory and Simulations*, 3(8), 2020.
- [6] Yulei Fu, Hengao Yu, Xinli Zhang, Paolo Malgaretti, Vimal Kishore, and Wendong Wang. Microscopic swarms: From active matter physics to biomedical and environmental applications. *Micromachines*, 13(2), 2022.
- [7] Ingmar H. Riedel, Karsten Kruse, and Jonathon Howard. A self-organized vortex array of hydrodynamically entrained sperm cells. *Science*, 309(5732):300–303, 2005.
- [8] DiLuzi W.and Turner L.and Mayer and M. Escherichia coli swim on the right-hand side. *Nature*, 435(1271-1274), 2005.
- [9] Felix Kümmel, Borge ten Hagen, Raphael Wittkowski, Ivo Buttinoni, Ralf Eichhorn, Giovanni Volpe, Hartmut Löwen, and Clemens Bechinger. Circular motion of asymmetric self-propelling particles. *Phys. Rev. Lett.*, 110:198302, May 2013.
- [10] Jie Su, Huijun Jiang, and Zhonghuai Hou. Disordered hyperuniform obstacles enhance sorting of dynamically chiral microswimmers. *Soft Matter*, 15:6830–6835, 2019.
- [11] Bricard, Caussin, and Desreumaux. Emergence of macroscopic directed motion in populations of motile colloids. *Nature*, 503(95-98), 2013.
- [12] Yongliang Gou, Huijun Jiang, and Zhonghuai Hou. Emergent swarming states in active particles system with opposite anisotropic interactions. *Chinese Journal of Chemical Physics*, 33(717), 2020.
- [13] Yan J.and Han M.and Zhang J. Reconfiguring active particles by electrostatic imbalance. *Nature Mater*, 15(1095-1099), 2016.
- [14] Hamid Karani, Gerardo E. Pradillo, and Petia M. Vlahovska. Tuning the random walk of active colloids: From individual run-and-tumble to dynamic clustering. *Phys. Rev. Lett.*, 123:208002, Nov 2019.
- [15] Sumino Y.and Nagai K.and Shitaka Y. Large-scale vortex lattice emerging from collectively moving microtubules. *Nature*, 483(448-452), 2012.
- [16] Jiang Huijun, Huai Ding, Mingfeng Pu, and Zhonghuai Hou. Emergence of collective dynamical chirality for achiral active particles. *Soft Matter*, 13:836–841, 2017.

- [17] Antonio Celani, Stefano Bo, Ralf Eichhorn, and Erik Aurell. Anomalous thermodynamics at the microscale. *Phys. Rev. Lett.*, 109:260603, Dec 2012.
- [18] Suraj Shankar and M. Cristina Marchetti. Hidden entropy production and work fluctuations in an ideal active gas. *Phys. Rev. E*, 98:020604, Aug 2018.
- [19] Emanuele Crosato, Mikhail Prokopenko, and Richard E. Spinney. Irreversibility and emergent structure in active matter. *Phys. Rev. E*, 100:042613, Oct 2019.
- [20] Michael E. Cates and Julien Tailleur. Motility-induced phase separation. *Annual Review of Condensed Matter Physics*, 6(1):219–244, 2015.
- [21] Suwendu Mandal, Benno Liebchen, and Hartmut Löwen. Motility-induced temperature difference in coexisting phases. *Phys. Rev. Lett.*, 123:228001, Nov 2019.
- [22] Hartmut Löwen. Inertial effects of self-propelled particles: From active brownian to active langevin motion. *J. Chem. Phys.*, 152(040901), 2020.
- [23] Joakim Stenhammar. An introduction to motility-induced phase separation. 12 2021.
- [24] I. Theurkauff, C. Cottin-Bizonne, J. Palacci, C. Ybert, and L. Bocquet. Dynamic clustering in active colloidal suspensions with chemical signaling. *Phys.Rev.Lett.*, 108(26), 2012.
- [25] J. Su, H. J. Jiang, and Z. H. Hou. Inertia-induced nucleation-like motility-induced phase separation. *New Journal of Physics*, 23(1):8, 2021.
- [26] DanV. Goia and Egon Matijevi. Tailoring the particle size of monodispersed colloidal gold. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 146(1):139–152, 1999.
- [27] Julian Bialké, Thomas Speck, and Hartmut Löwen. Crystallization in a dense suspension of self-propelled particles. *Physical Review Letters*, 108(16), apr 2012.
- [28] H. Budrene, E.and Berg. Dynamics of formation of symmetrical patterns by chemotactic bacteria. *Nature*, 376(49-53), 1995.
- [29] J. Saragosti, V. Calvez, N. Bournaveas, B. Perthame, A. Buguin, and P. Silberzan. Directional persistence of chemotactic bacteria in a traveling concentration wave. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 108(39):16235–16240, 2011.
- [30] Evelyn F. Keller and Lee A. Segel. Initiation of slime mold aggregation viewed as an instability. *Journal of Theoretical Biology*, 26(3):399–415, 1970.
- [31] Michael P. Brenner, Leonid S. Levitov, and Elena O. Budrene. Physical mechanisms for chemotactic pattern formation by bacteria. *Biophysical Journal*, 74(4):1677–1693, 1998.