活性胶体粒子趋化性的模拟研究

娄辛,[1,*] 邢志维,[1] 俞楠,[2,†] 陈江星,[3] 杨明成[4,5]

[1] 中国矿业大学材料与物理学院, 徐州 *221116*

[2] 苏州健雄职业技术学院, 苏州 *215411*

[3] 杭州师范大学物理学院, 杭州 *311121*

[4] 中国科学院物理研究所, 北京凝聚态物理国家研究中心, 软物质物理实验室, 北京 *100190*

[5] 中国科学院大学物理科学学院, 北京 *100049*

(Dated: November 2, 2026)

趋化性是微游泳体在化学浓度梯度中实现定向迁移的重要机制，也是人工活性胶体环境响应行为研究中的核心问题。本文采用多粒子碰撞动力学与分子动力学相结合的混合介观模拟方法，系统研究了自扩散泳 Janus 粒子在化学浓度梯度场中的趋化性行为。系统溶剂由反应物 F、生成物 P 和惰性粒子 N 组成，外部浓度梯度由边界墙处的化学反应持续维持。Janus 粒子通过催化半球表面的化学反应将反应物 F 转化为生成物 P ，在粒子周围产生非均匀化学场，并在自扩散泳作用下获得自主运动能力。通过调控不同流体组分与 Janus 粒子之间的 Lennard-Jones 相互作用类型，可以实现粒子沿自身取向矢量或逆取向矢量的自推进。模拟结果表明，Janus 粒子在非均匀化学环境中可表现向高浓度区域迁移的正趋化性，也可表现出向低浓度区域迁移的负趋化性。进一步分析发现，其宏观趋化方向并非仅由浓度梯度诱导的取向极化决定，而是取向效应、粒子有限尺寸效应以及取向依赖的运动性等多种微观机制竞争与协同作用的结果，上述机制共同调控 Janus 粒子的净迁移方向和趋化强度。本文揭示了非均匀化学环境中自扩散泳 Janus 粒子趋化响应的微观物理图像，为理解人工活性胶体的定向输运规律以及设计可调控环境响应型微纳米机器提供了理论参考。

PACS numbers: 47.57.-s, 66.10.cd, 02.70.Ns

I. 引言

趋化性是指运动个体在化学物质浓度梯度中产生定向迁移或取向响应的现象，广泛存在于细菌、藻类和免疫细胞等生物体系中 [1–5]。借助趋化机制，微生物能够主动趋向营养物质、远离有害刺激，并在复杂环境中实现高效搜索和适应性运动。近年来，受生物趋化行为启发，人工活性胶体和微纳马达在非均匀化学环境中的定向输运受到广泛关注 [6–12]。与被动胶体不同，活性粒子能够持续消耗周围环境中的化学能、光能或热能，并将其转化为自主运动。因此，研究活性粒子在化学浓度梯度中的响应规律，不仅有助于理解非平衡软物质体系中的定向输运机制，也为设计可控微纳机器人、靶向输运体系和智能响应材料提供了重要理论依据 [13–16]。

Janus 粒子是一类典型的人造活性粒子，其表面具有化学组成、催化活性或相互作用性质的不对称性，能够将自身存储及外界环境中的能量通过自扩散泳、自电泳或自热泳等机制转化为自主运动，已成为研究趋化、趋光和趋热等定向响应行为的重要模型体系 [17–19]。根据结构特征，人工微游泳体通常可分为各向同性胶体球和 Janus 粒子两类。对于各向同性胶体球，由于缺乏内禀的对称性破缺，这类体系难以充分反映真实生物微游动体依靠自身结构极性实现定向运动的基本特征。相比之下，Janus 粒子具有固有的几何或化学各向异性，其运动方向与粒子自身取向密切相关，因此更适合作为研究人工趋化行为及其微观机制的模型体系。现有关于 Janus 粒子定向响应行为的研究，通常将其在梯度场中的宏观迁移归因于取向效应，即外部梯度诱导粒子取向发生极化，从而使其沿特定方向产生净运动 [8,20,21]。然而，Janus 粒子的趋化行为并不一定由单一取向机制决定。即使不存在显著的取向偏置，空间非均匀的浓度场仍可能使粒子的运动能力依赖于其取向和空间位置，从而在长时间尺度上产生统计意义上的迁移偏置 [7,22–24]。此外，由于 Janus 粒子具有有限尺寸，其不同表面区域可同时处于不同的局域化学环境中，进而影响表面反应速率、粒子受力及转动行为。由此可见，人工 Janus 微游动体趋化性的微观物理机制仍有待进一步澄清。

本文通过计算机模拟构建了一个三维多组分活性流体模型，系统研究了具有表面催化反应的 Janus 粒子在化学浓度梯度场中的趋化动力学。体系中的溶剂分子由反应物 F、生成物 P 以及不参与表面反应的惰性粒子 N 组成。两侧边界墙处通过化学反应建立并维持反应物 F 稳定的浓度梯度，Janus 胶体粒子则通过催化半球上的表面的化学反应将反应物转化为生成物，在自身周围产生

*Electronic address: xlou@cumt.edu.cn

†Electronic address: 13505158616@163.com

录用稿件，非最终出版稿

局域浓度梯度场从而实现自推进。通过调控不同流体组分与 Janus 粒子之间的 Lennard-Jones 相互作用势类型，可以改变粒子的自推进方向，使其沿着或逆着自身取向矢量运动。模拟结果表明，Janus 粒子的趋化性并非由单一因素决定，而是由取向效应、粒子的有限尺寸效应和取向依赖的运动性等机制共同调控。取向效应源于浓度梯度与非对称粒子–溶剂相互作用诱导的取向偏置；有限尺寸效应反映了粒子不同表面区域在非均匀浓度场中感受到的局域环境差异；取向依赖的运动性则表明，上述局域环境差异会使粒子的自推进能力随其取向发生变化。这些机制之间的竞争与协同使 Janus 粒子能够表现出不同方向和强度的趋化响应。

II. 模拟模型与方法

本文采用混合介观模拟方法研究化学浓度梯度中 Janus 粒子的趋化行为。其中，远离胶体球的溶剂分子采用多粒子碰撞动力学方法（multiparticle collision dynamics, MPCD）描述 [25–28]，Janus 胶体粒子及其与邻近溶剂粒子之间的相互作用采用分子动力学方法（molecular dynamics, MD）处理。模拟体系如图 1(a) 所示，为三维长方体盒子，尺寸为 $L_x \times L_y \times L_z = 60a \times 40a \times 40a$。体系在 y 和 z 方向采用周期性边界条件，在 x 方向由两端边界墙限制。溶剂由三种点粒子组成，分别为反应物 F、生成物 P 和惰性粒子 N。如示意图 1 所示，通过边界墙处的化学反应，体系中建立起沿 x 方向的反应物 F 浓度梯度，Janus 胶体粒子处于该非均匀化学环境中。

A. MPCD 流体

在 MPCD 方法中，流体由 N_f 个点粒子组成，每个流体粒子在任意时刻具有质量 m、位置 $\mathbf{r}_i(t)$ 和速度 $\mathbf{v}_i(t)$。流体粒子的位置和速度交替地通过自由传播步骤和碰撞步骤进行演化。在自由传播步骤中，流体粒子按照

$$\mathbf{r}_i(t+h) = \mathbf{r}_i(t) + \mathbf{v}_i(t)h \tag{1}$$

更新位置，其中 h 为 MPCD 时间步长，随后进行碰撞步骤。具体而言，将体系划分为边长为 a 的立方碰撞单元，并将流体粒子按照其所在位置划分入相应单元中。每个流体粒子只与其所在单元中的其他流体粒子发生碰撞。在碰撞步骤中，流体粒子的速度更新采用安德森恒热浴（Anderson thermostat）方法 [29]。具体而言，碰撞过程按照 $\mathbf{v}(t+h) = \mathbf{v}_{cm}(t) + \mathbf{v}_i^{ran} + \mathbf{v}_i^{cor}$ 进行更新。其中，$\mathbf{v}_{cm}(t)$ 为所在格子的质心速度，$\mathbf{v}_i^{ran}$ 为从 Maxwell-Boltzmann 分布中随机抽取的热速度，$\mathbf{v}_i^{cor}$ 为保证局域动量和角动量守恒而引入的修正项。该算法可以保持流体质量、动

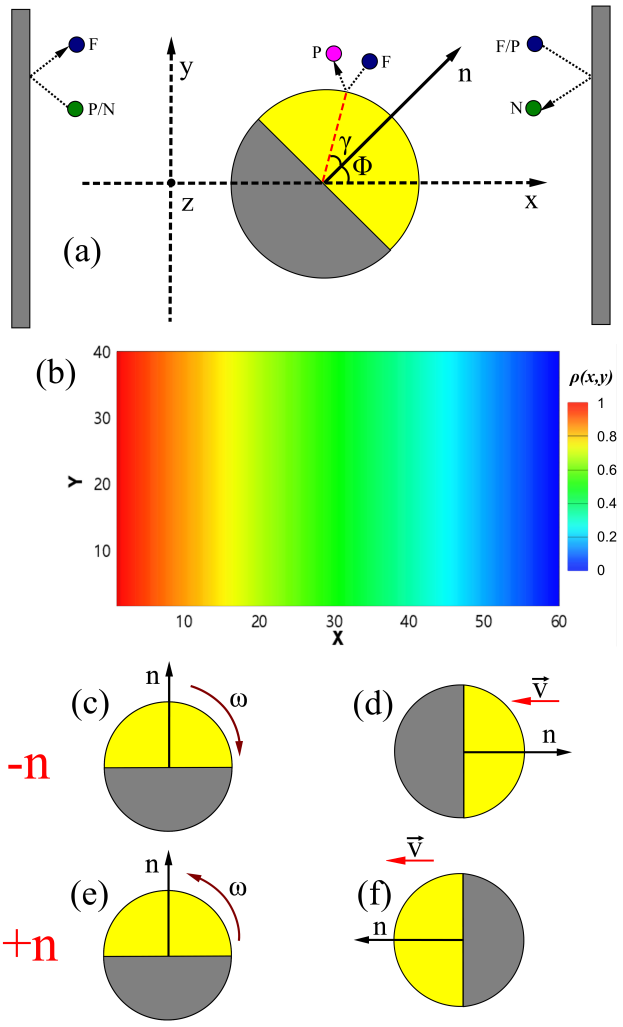


图1: 非均匀化学环境中 Janus 粒子的模拟模型及反应物浓度场。(a) 模拟体系示意图：y，z 方向为周期性边界条件，x 方向为边界墙。胶体球黄色和灰色半球分别为催化面和非催化面，**n** 为粒子的取向矢量，Φ 为 **n** 与 x 轴的夹角，γ 为流体粒子相对于 **n** 的位置角。体系溶剂由反应物 F、生成物 P 和惰性粒子 N 构成；两侧边界墙处的化学反应维持沿 x 方向的反应物浓度梯度。(b) 反应物 F 稳态归一化浓度场的二维切面 $\rho(x, y)$，显示浓度由左侧高浓度区向右侧低浓度区逐渐降低。(c)、(d) 对应粒子沿 $-\mathbf{n}$ 方向自推进模式及其转动结果。(e)、(f) 对应粒子沿 $+\mathbf{n}$ 方向的自推进模式及其转动结果。红色弧形箭头表示粒子的角速度 ω。

Fig. 1. Simulation model of a Janus particle and reactant concentration field in an inhomogeneous chemical environment: (a) Schematic of the simulation system, with periodic boundary conditions applied in the y and z directions and confining walls in the x direction. The yellow and gray hemispheres of the colloid represent the catalytic and non-catalytic caps, respectively; **n** is the particle orientation vector, Φ is the angle between **n** and the x-axis, and γ is the polar angle of a fluid particle relative to **n**. The solvent consists of reactant F, product P, and inert species N, with chemical reactions at both boundary walls maintaining a reactant concentration gradient

along the x direction; (b) two-dimensional cross-section of the steady-state normalized concentration field $\rho(x, y)$ of reactant F, showing a gradual decrease from the high-concentration region on the left to the low-concentration region on the right; (c), (d) self-propulsion mode along $-\mathbf{n}$ and the resulting rotational behavior; (e), (f) self-propulsion mode along $+\mathbf{n}$ and the resulting rotational behavior. The red curved arrows indicate the angular velocity ω of the particle.

量、能量和角动量的局域守恒, 从而可以正确地描述流体力学相互作用、热涨落、质量扩散和耗散过程。在碰撞步骤中，不区分流体粒子的化学种类，即反应物 F、生成物 P 和惰性粒子 N 以相同方式参与 MPCD 碰撞。

模拟中所有物理量均采用无量纲约化单位，长度单位为碰撞单元边长 a，质量单位为流体粒子质量 m，能量单位为 $k_{\mathrm{B}}T$。本文取 $a = 1$、$m = 1$、$k_{\mathrm{B}}T = 1$，平均每个碰撞单元中的流体粒子数为 $\rho = 14$，MPCD 时间步长为 $h = 0.05$。

B. 自扩散泳 Janus 粒子

Janus 粒子被建模为一个具有取向矢量 $\mathbf{n}$ 的球形胶体粒子，其两个半球具有不同的表面性质。如图 1(a) 所示，黄色半球为催化面，灰色半球为惰性面。流体粒子相对于 Janus 粒子取向矢量的夹角记为 γ。当反应物 F 位于催化半球一侧，即满足 $\cos\gamma > 0$，并进入 Janus 粒子表面附近的反应区域时，该反应物粒子以概率 $p_c = 0.2$ 转化为生成物 P。惰性粒子 N 不参与该表面反应。

Janus 粒子与溶剂粒子之间采用角度依赖型 Lennard-Jones 势描述：

$$U(r, \gamma) = (1 + \delta\cos\gamma)\,\widetilde{U}_{\alpha}(r), \tag{2}$$

其中 $\alpha = F, P, N$ 表示流体粒子种类，r 为流体粒子到 Janus 粒子中心的距离，δ 表征 Janus 表面相互作用的各向异性强度。径向势采用 LJ 型相互作用：

$$\widetilde{U}_{\alpha}(r) = \begin{cases} 4\epsilon\left(\left(\dfrac{\sigma}{r}\right)^{2n} - \left(\dfrac{\sigma}{r}\right)^{n}\right) + C, & r \le r_c, \\ 0, & r > r_c. \end{cases} \tag{3}$$

其中 ϵ 为势能强度，σ 为 Janus 粒子的半径，指数 n 控制径向势的力程与陡峭程度，r_c 为截断半径。本文采用 $n = 24$、$\epsilon = 1.0$。排斥型相互作用取 $C = \epsilon$，对应纯排斥的 Weeks–Chandler–Andersen(WCA) 型势能；吸引型相互作用则在排斥核势的基础上叠加一个短程吸引尾部，从而在粒子周围形成吸引势阱。通过改变反应物及生成物与 Janus 粒子之间的相互作用势类型，可以控制 Janus 粒子的自推进沿着反应面（$+\mathbf{n}$）或者逆着反应面运动（$-\mathbf{n}$），如图 1(d)(f) 所示。

Janus 粒子及其邻近流体粒子的运动方程采用速度 Verlet 算法积分。MD 时间步长为 $\Delta t_{\mathrm{MD}} = 0.002$，每个 MPC 时间步内包含 25 步 MD 模拟，以处理 Janus 粒子与邻近流体粒子之间的短程相互作用和表面反应。Janus 粒子表面附近采用修正的 bounce-back 粘性边界条件 [30,31]，使溶剂粒子与胶体表面交换线动量和角动量。

C. 边界墙与浓度梯度

体系在 x 方向由两端边界墙限制。流体粒子与边界墙碰撞时采用滑动反射边界条件，即粒子碰到墙面后法向速度反向，切向速度保持不变。该边界条件用于限制流体粒子的运动范围。Janus 胶体粒子与边界墙之间采用 $n = 24$ 的排斥型 Lennard-Jones 势，以避免胶体粒子穿透墙面。墙面排斥势的作用范围由参数 σ_w 控制。本文取 $\sigma_w = 10.0$，从而在不同粒子尺寸的模拟中采用一致的墙面排斥尺度，便于比较不同半径胶体粒子在边界附近的空间分布。边界墙同时用于维持外部化学浓度梯度。当流体粒子进入一侧边界墙附近区域时，被转化为反应物 F；当其进入另一侧边界墙附近区域时，被转化为惰性粒子 N，如图 1(a) 所示。通过这种边界墙化学反应，体系建立起了反应物 F 沿 x 方向稳定的浓度梯度分布，如图 1(b) 所示。

III. 模拟结果与讨论

在非均匀化学浓度场中，Janus 粒子的宏观迁移行为由取向分布、自推进方向以及局部化学环境共同决定。为表征浓度梯度诱导的取向极化及其对空间迁移的影响，本文首先调节粒子–流体相互作用的各向异性强度 δ，并统计取向概率分布 $P(\cos\phi)$ 与沿梯度方向的位置概率分布 $P(x)$，结果如图 2 所示。其中，ϕ 为取向矢量 $\mathbf{n}$ 与 x 轴正方向之间的夹角，$P(\cos\phi)$ 为三维取向分布沿 x 方向的投影，左侧 $x \simeq 10$ 区域对应反应物高浓度区，右侧 $x \simeq 50$ 区域对应反应物低浓度区。

对于沿反应面方向（$+\mathbf{n}$ ）自推进的 Janus 粒子，当存在各向异性时，取向分布 $P(\cos\phi)$ 在 $\cos\phi = -1$ 附近出现明显峰值，如图 2(a) 所示。这表明粒子取向矢量倾向于指向 $-x$ 方向。随着 δ 增大，该峰值进一步升高并逐渐变窄，说明粒子的取向极化程度随各向异性相互作用增强而提高。相应地，位置分布 $P(x)$ 在左侧高浓度区域 $x \simeq 10$ 附近形成显著累积峰，表明粒子表现出向反应物高浓度区域迁移的正趋化行为。

上述取向极化可归因于非均匀化学场中不同流体组分在 Janus 粒子表面诱导的非对称切向流。对于 $+\mathbf{n}$ 推进

录用稿件，非最终出版稿

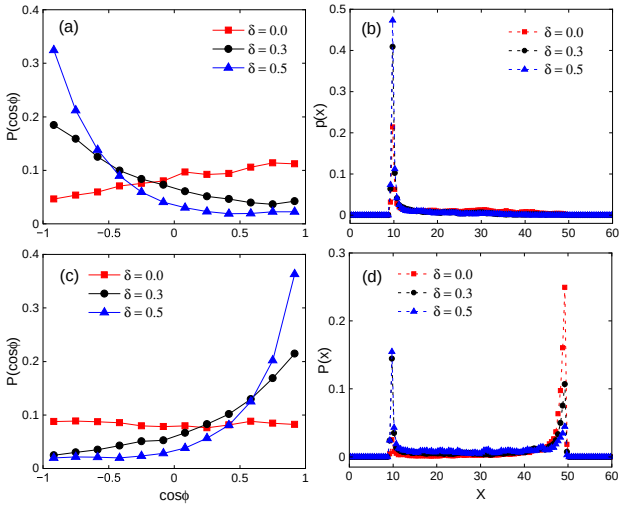


图2: 不同各向异性强度 δ 下 Janus 粒子的取向分布和位置分布。(a)(b) 分别对应生成物 P 与 Janus 粒子之间为吸引势、粒子沿反应面方向 $+\mathbf{n}$ 自推进的情况时的取向 $P(\cos\phi)$ 和位置分布 $P(x)$；(c)(d) 分别对应生成物 P 与 Janus 粒子之间为排斥势、粒子沿非反应面方向 $-\mathbf{n}$ 自推进的情况时的取向 $P(\cos\phi)$ 和位置分布 $P(x)$。

Fig. 2. Orientation and position distributions of Janus particles at different anisotropy strengths δ. (a), (b) Orientation distribution $P(\cos\phi)$ and position distribution $P(x)$, respectively, for attractive interactions between product P and the Janus particle, which propels itself along $+\mathbf{n}$, toward the reactive hemisphere. (c), (d) Corresponding orientation distribution $P(\cos\phi)$ and position distribution $P(x)$, respectively, for repulsive interactions between product P and the Janus particle, which propels itself along $-\mathbf{n}$, toward the nonreactive hemisphere.

模式，生成物 P 与 Janus 粒子之间为吸引相互作用，而反应物 F 和惰性粒子 N 与 Janus 粒子之间为排斥相互作用。对于吸引型相互作用，生成物粒子在非反应面一侧，即 $\gamma = 180°$ 附近，对应高势能位置；对于排斥型相互作用，反应物和惰性粒子在反应面一侧，即 $\gamma = 0°$ 附近，对应其高势能位置。以图 1(b) 所示构型为例，粒子左侧处于反应物浓度较高的区域，催化反应更加剧烈，并在粒子周围产生更多的生成物 P。因此，左侧由生成物粒子产生的、从非反应面指向反应面的切向流强于右侧。与此同时，反应物 F 和惰性粒子 N 在右侧产生的、从反应面指向非反应面的切向流强于左侧。胶体粒子受到驱动流体运动的反作用力，在上述两类非对称切向流共同作用下产生使粒子逆时针方向转动的流体力矩，进而驱动取向矢量 $\mathbf{n}$ 转向 x 轴负方向。在自推进的作用下，粒子沿 $-x$ 方向向左侧反应物高浓度区域迁移。此时，位置分布 $P(x)$ 在 $x \simeq 10$ 附近出现显著峰值，表现出正趋化

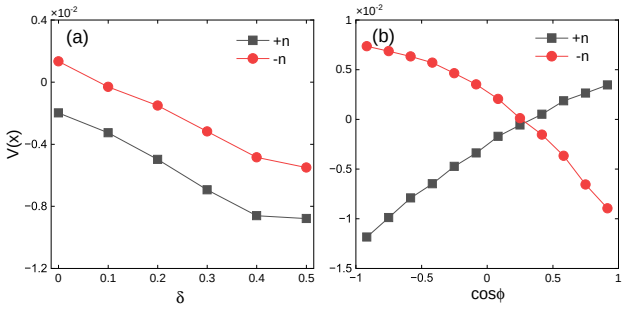


图3: 两种自推进模式下 Janus 粒子沿 x 方向的平均迁移速度 V_x。(a)V_x 随各向异性参数 δ 的变化；(b) 在 $\delta = 0$ 时，V_x 随取向参数 $\cos\phi$ 的变化，其中 ϕ 为取向矢量 $\mathbf{n}$ 与 x 轴正方向的夹角。灰色方块和红色圆点分别表示 $+\mathbf{n}$ 和 $-\mathbf{n}$ 自推进模式。

Fig. 3. Mean migration velocity V_x of Janus particles along the x direction for the two self-propulsion modes. (a) Dependence of V_x on the anisotropy parameter δ. (b) Dependence of V_x on the orientation parameter $\cos\phi$ at $\delta = 0$, where ϕ is the angle between the orientation vector $\mathbf{n}$ and the positive x direction. Gray squares and red circles denote the $+\mathbf{n}$ and $-\mathbf{n}$ self-propulsion modes, respectively.

性，如图 2(b) 所示。对于 $-\mathbf{n}$ 推进模式，生成物 P 与粒子之间的相互作用由吸引变为排斥，而反应物 F 和惰性粒子 N 的相互作用由排斥变为吸引。因此，各组分在粒子表面的高、低势能区域发生互换，诱导的切向流相对于 $+\mathbf{n}$ 模式反向，并使粒子受到顺时针方向的流体力矩。取向矢量 $\mathbf{n}$ 因而偏向 $+x$ 方向，在 $\cos\phi = 1$ 附近形成取向峰，如图 2(c) 所示。由于 $-\mathbf{n}$ 模式下粒子的自推进方向与 $\mathbf{n}$ 相反，当 $\mathbf{n}$ 指向 $+x$ 方向时，粒子仍沿 $-x$ 方向运动，并在左侧反应物高浓度区域形成累积，如图 2(d) 所示。总体而言，增强各向异性相互作用会增强两种推进模式下的取向极化，并提高粒子在高浓度区域的累积程度。

为定量比较不同各向异性强度下的净迁移行为，图 3(a) 给出了两种推进模式下平均迁移速度 V_x 随 δ 的变化。对于 $+\mathbf{n}$ 模式，V_x 在所考察的参数范围内始终为负，且其绝对值随 δ 增大而增加，说明粒子持续向左侧反应物高浓度区域迁移，正趋化强度随各向异性相互作用增强而提高。相比之下，$-\mathbf{n}$ 模式在 $\delta = 0$ 时具有正的 V_x，表现为向右侧低浓度区域迁移的负趋化；随着 δ 增大，V_x 逐渐减小并最终转变为负值，表明该模式下粒子的迁移方向可由负趋化转变为正趋化。值得注意的是，在 $\delta = 0$ 时，尽管各向异性势诱导的非对称流体力矩消失，两种推进模式下的粒子仍具有沿浓度梯度方向的非零迁移速度。$+\mathbf{n}$ 模式下，粒子的自推进方向与 $\mathbf{n}$ 一致，在自推进作用下取向分布所反映的运动趋势应指向 $+x$ 方向。然而，粒子却在左侧反应物高浓度区域形成明显的累积峰，

且平均迁移速度 $V_x < 0$，如图 2(b) 所示。对于 $-\mathbf{n}$ 模式，尽管粒子的取向分布整体较为平坦，未表现出显著的取向偏置，其沿梯度方向的平均迁移速度仍不为零，并在右侧反应物低浓度区域形成累积，如图 2(d) 所示。取向分布所反映的运动趋势与粒子的实际迁移方向并不一致，说明单纯从活性粒子的角度取向不足以完整描述 Janus 粒子的趋化响应，有限尺寸引起的取向依赖运动性同样参与决定粒子的净迁移方向和空间分布。

为了分离粒子有限尺寸效应对迁移速度的影响，我们计算了各向异性势能参数 $\delta = 0$ 时粒子沿梯度方向的迁移速度 V_x 随取向角的变化关系，如图 3(b) 所示。对于 $+\mathbf{n}$ 模式，V_x 的代数值随 $\cos\phi$ 增大而增大；对于 $-\mathbf{n}$ 模式，V_x 的代数值则随 $\cos\phi$ 增大而减小。两种模式下，相反取向对应的迁移速度并非等大反向，表明粒子沿相反方向运动时的速度大小存在差异。这种速度不对称性来源于有限尺寸粒子对局部反应物浓度的非均匀采样：催化面朝向反应物低浓度区域时，表面反应速率和自推进速度降低；催化面朝向反应物高浓度区域时，表面反应增强，自推进速度相应增大。由此产生取向依赖的速度差异，使粒子即使在各向异性参数 $\delta = 0$ 时仍存在沿梯度场方向的净迁移速度。

为定量分析不同取向区间对粒子净迁移的贡献，将取向参数 $\mu = \cos\phi$ 划分为若干区间，并定义第 i 个取向区间对平均迁移速度的加权贡献为

$$C_{x,i} = p_i V_{x,i}. \tag{4}$$

其中，p_i 为粒子处于第 i 个取向区间的概率，$V_{x,i}$ 为该取向区间内粒子沿 x 方向的条件平均速度。若 $C_{x,i} > 0$，则该取向区间内粒子向反应物低浓度区域 $+x$ 方向迁移；当 $C_{x,i} < 0$ 时，则该取向区间内粒子向反应物高浓度区域 $-x$ 方向迁移。对所有取向区间求和，可得到粒子沿 x 方向的取向加权平均迁移速度：

$$\langle V_x \rangle = \sum_i C_{x,i} = \sum_i p_i V_{x,i}. \tag{5}$$

计算结果表明，$+\mathbf{n}$ 模式下的平均迁移速度为 $\langle V_x \rangle = -0.0019$，粒子整体沿 $-x$ 方向向反应物高浓度区域迁移，表现出正趋化性。相比之下，$-\mathbf{n}$ 模式下的平均迁移速度为 $\langle V_x \rangle = 0.0012$，粒子整体沿 $+x$ 方向向反应物低浓度区域迁移，表现出负趋化性。上述迁移速度方向与图 2(b,d) 所示的位置累积方向一致，表明粒子的空间分布由不同取向区间的出现概率及其对应迁移速度共同决定。

随着粒子半径增大，催化面在不同取向下所感受到的局部反应物浓度差异进一步增加，由此导致的取向相关反应速率差和自推进速度差也随之增大。因此，粒子有限尺寸诱导的非对称耦合随粒子尺寸增大而增强，并进

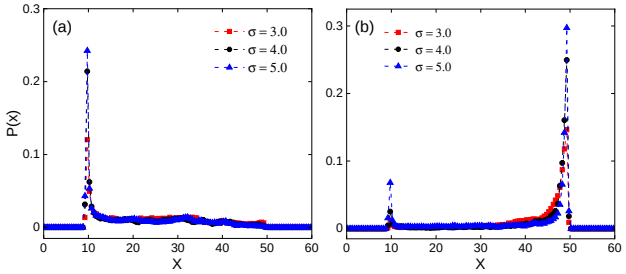


图4: 各向异性参数 $\delta = 0$ 时，不同半径 Janus 粒子沿 x 方向的位置概率分布 $P(x)$。(a) 沿 $+\mathbf{n}$ 方向自推进的模式；(b) 沿 $-\mathbf{n}$ 方向自推进的模式。不同曲线分别对应粒子半径 $\sigma = 3.0$、4.0 和 5.0。

Fig. 4. Position probability distributions $P(x)$ along the x direction for Janus particles of different radii at the anisotropy parameter $\delta = 0$. (a) Self-propulsion along $+\mathbf{n}$. (b) Self-propulsion along $-\mathbf{n}$. The different curves correspond to particle radii $\sigma = 3.0$, 4.0, and 5.0.

一步放大粒子在浓度梯度方向上的净迁移偏置，最终表现为更强的边界累积。基于这一物理图像，图 4 给出了 $\delta = 0$ 条件下不同半径 Janus 粒子的位置概率分布 $P(x)$。结果显示，$+\mathbf{n}$ 和 $-\mathbf{n}$ 两种推进模式下，粒子分别主要累积于反应物高浓度区和低浓度区；随着粒子半径增大，对应累积位置处的概率密度峰值均明显升高。这一尺寸依赖性与前述粒子有限尺寸效应诱导的速度不对称性相一致。此外，在 $-\mathbf{n}$ 推进模式下，粒子在左侧反应物高浓度区域附近也出现了一定程度的累积，并且该累积随粒子半径增大而增强。其可能原因在于边界附近的吸引作用：左侧边界墙通过化学反应持续生成反应物 F，而在 $-\mathbf{n}$ 推进模式下，F 与 Janus 粒子之间存在吸引型相互作用。因此，边界附近较高浓度的 F 会增强粒子向左侧边界迁移和停留的趋势。随着粒子半径增大，粒子表面与边界墙之间的有效间距减小，边界附近反应物对粒子的吸引作用进一步增强，最终提高了粒子在左侧边界附近的停留概率。

IV. 结论

本文采用多粒子碰撞动力学与分子动力学相结合的混合介观模拟方法，研究了自扩散泳 Janus 粒子在化学浓度梯度场中的趋化行为。模拟结果表明，人造 Janus 粒子能够感知外部浓度梯度，并在不同粒子–流体相互作用条件下表现出趋向反应物高浓度区域的正趋化性或远离高浓度区域的负趋化性。

研究发现，Janus 粒子的趋化行为并不能简单地由粒子的取向极化单独决定，而是来源于多种微观机制之间的

录用稿件，非最终出版稿

竞争。具体而言，非均匀浓度场可诱导粒子产生取向偏置，从而形成取向效应；由于 Janus 粒子具有有限尺寸，其表面不同区域可同时处于不同的局域浓度环境，这种不均匀性随粒径增大而增强，从而产生尺寸依赖的趋化响应。同时，粒子在不同角度取向位置处反应面的局域化学环境不同，使其自推进能力呈现取向依赖的运动性能。这三种机制共同决定了粒子的宏观迁移方向和趋化强度。

这一结果表明，人工 Janus 粒子的趋化行为本质上是取向效应、粒子有限尺寸效应和取向依赖的运动性共同作用的结果，而不能仅用传统的取向极化图像来解释。本文的研究加深了对非均匀化学环境中人工活性胶体定向输运机制的理解，并为设计具有可调趋化响应的微纳米机器提供了理论参考。

V. 致谢

感谢国家重点研发计划（批准号：2022YFF0503504）、国家自然科学基金（批准号：12504246）、江苏省青年基金项目（批准号：BK20251644）、徐州市应用基础青年人才项目（批准号：KC25025）、中央高校基本业务费专项资金（批准号：2025QN1137）和中国载人航天工程项目（批准号：KJZ-YY-NLT0502）资助的课题。

[1] Van Haastert P J M, Devreotes P N 2004 *Nat. Rev. Mol. Cell Biol.* **5** 626
[2] Keegstra J M, Carrara F, Stocker R 2022 *Nat. Rev. Microbiol.* **20** 491
[3] Wadhams G H, Armitage J P 2004 *Nat. Rev. Mol. Cell Biol.* **5** 1024
[4] Roussos E T, Condeelis J S, Patsialou A 2011 *Nat. Rev. Cancer* **11** 573
[5] Raina J B, Fernandez V, Lambert B, Stocker R, Seymour J R 2019 *Nat. Rev. Microbiol.* **17** 284
[6] Hong Y, Blackman N M K, Kopp N D, Sen A, Velegol D 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 178103
[7] Baraban L, Harazim S M, Sánchez S, Schmidt O G 2013 *Angew. Chem. Int. Ed.* **52** 5552
[8] Popescu M N, Uspal W E, Bechinger C, Fischer P 2018 *Nano Lett.* **18** 5345
[9] Buttinoni I, Bialké J, Kümmel F, Löwen H, Bechinger C, Speck T 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 238301
[10] Sánchez S, Soler L, Katuri J 2015 *Angew. Chem. Int. Ed.* **54** 1414
[11] Liebchen B, Löwen H 2018 *Acc. Chem. Res.* **51** 2982
[12] Chen J X, Chen Y G, Ma Y Q 2016 *Soft Matter* **12** 1876
[13] Ju X, Chen C, Oral C M, Sevim S, Golestanian R, Sun M, Bouzari N, Lin X, Urso M, Nam J S, Cho Y, Peng X, Landers F C, Yang S, Adibi A, Taz N, Wittkowski R, Ahmed D, Wang W, Magdanz V, Medina-Sánchez M, Guix M, Bari N, Behkam B, Kapral R, Huang Y, Tang J, Wang B, Morozov K, Leshansky A, Abbasi S A, Choi H, Ghosh S, Borges Fernandes B, Battaglia G, Fischer P, Ghosh A, Jurado Sánchez B, Escarpa A, Martinet Q, Palacci J, Lauga E, Moran J, Ramos-Docampo M A, Städler B, Herrera Restrepo R S, Yossifon G, Nicholas J D, Ignés-Mullol J, Puigmartí-Luis J, Liu Y, Zarzar L D, Shields C W IV, Li L, Li S, Ma X, Gracias D H, Velev O, Sánchez S, Esplandiu M J, Simmchen J, Lobosco A, Misra S, Wu Z, Li J, Kuhn A, Nourhani A, Maric T, Xiong Z, Aghakhani A, Mei Y, Tu Y, Peng F, Diller E, Sakar M S, Sen A, Law J, Sun Y, Pena-Francesch A, Villa K, Li H, Fan D E, Liang K, Huang T J, Chen X Z, Tang S, Zhang X, Cui J, Wang H, Gao W, Kumar Bandari V, Schmidt O G, Wu X, Guan J, Sitti M, Nelson B J, Pané S, Zhang L, Shahsavan H, He Q, Kim I D, Wang J, Pumera M 2025 *ACS Nano* **19** 24174
[14] Chen S, Fan D E, Fischer P, Ghosh A, Göpfrich K, Golestanian R, Hess H, Ma X, Nelson B J, Patiño Padial T, Tang J, Villa K, Wang W, Zhang L, Sen A, Sánchez S 2025 *Nat. Nanotechnol.* **20** 990
[15] Bishop K J M, Biswal S L, Bharti B 2023 *Annu. Rev. Chem. Biomol. Eng.* **14** 1
[16] Merindol R, Walther A 2017 *Chem. Soc. Rev.* **46** 5588
[17] Yu N, Lou X, Chen K, Yang M 2019 *Soft Matter* **15** 408
[18] Auschra S, Bregulla A, Kroy K, Cichos F 2021 *Eur. Phys. J. E* **44** 90
[19] Lozano C, Ten Hagen B, Löwen H, Bechinger C 2016 *Nat. Commun.* **7** 12828
[20] Velluvakandy R, Ju X, Pumera M 2026 *Nat. Commun.* **17** 5275
[21] Bickel T, Zecua G, Würger A 2014 *Phys. Rev. E* **89** 050303
[22] Abécassis B, Cottin-Bizonne C, Ybert C, Ajdari A, Bocquet L 2008 *Nat. Mater.* **7** 785
[23] Anderson J L, Prieve D C 1984 *Sep. Purif. Methods* **13** 67
[24] Tătulea-Codrean M, Lauga E 2018 *J. Fluid Mech.* **856** 921
[25] Malevanets A, Kapral R 1999 *J. Chem. Phys.* **110** 8605
[26] Padding J T, Louis A A 2006 *Phys. Rev. E* **74** 031402
[27] Kapral R 2008 *Adv. Chem. Phys.* **140** 89
[28] Gompper G, Ihle T, Kroll D M, Winkler R G 2009 *Advanced Computer Simulation Approaches for Soft Matter*

录用稿件，非最终出版稿

Sciences III (Berlin: Springer) p1
[29] Noguchi H, Kikuchi N, Gompper G 2007 *EPL* **78** 10005
[30] Yang M, Wysocki A, Ripoll M 2014 *Soft Matter* **10** 6208
[31] Lüsebrink D, Yang M, Ripoll M 2012 *J. Phys.: Condens. Matter* **24** 284132

Simulation Study of the Chemotaxis of Active Colloidal Particles

LOU Xin[1,*], XING Zhiwei[1], YU Nan[2,†], CHEN Jiangxing[3], YANG Mingcheng[4,5]

[1]School of Materials Science and Physics, China University of Mining and Technology, Xuzhou 221116, China
[2]Suzhou Chien-Shiung Institute of Technology, Suzhou 215411, China
[3]School of Physics, Hangzhou Normal University, Hangzhou 311121, China
[4]Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics and Laboratory of Soft Matter Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China
[5]School of Physical Sciences, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China

Abstract

Chemotaxis is an important mechanism by which microswimmers achieve directed migration in chemical concentration gradients and is a central issue in the study of the environmental responses of artificial active colloids. Here, a hybrid mesoscale simulation method combining multiparticle collision dynamics and molecular dynamics is used to systematically investigate the chemotactic behavior of self-diffusiophoretic Janus particles in a chemical concentration gradient. The solvent consists of reactant F, product P, and inert particles N, while chemical reactions at the boundary walls continuously maintain the external concentration gradient. A Janus particle converts reactant F into product P through chemical reactions on its catalytic hemisphere, generating a nonuniform chemical field around the particle and enabling autonomous motion through self-diffusiophoresis. By tuning the types of Lennard-Jones interactions between the different fluid species and the Janus particle, self-propulsion can be achieved either along or opposite to the particle's orientation vector. The simulations show that Janus particles in nonuniform chemical environments can exhibit either positive chemotaxis, migrating toward regions of higher concentration, or negative chemotaxis, migrating toward regions of lower concentration. Further analysis reveals that the macroscopic direction of chemotaxis is not determined solely by orientational polarization induced by the concentration gradient. Instead, it results from the competition and cooperation among several microscopic mechanisms, including orientational effects, finite particle size effects, and orientation-dependent motility. Together, these mechanisms regulate the net migration direction and chemotactic strength of Janus particles. This study elucidates the microscopic physical picture underlying the chemotactic response of self-diffusiophoretic Janus particles in nonuniform chemical environments and provides a theoretical basis for understanding the directed transport of artificial active colloids and designing micro/nanomachines with tunable environmental responses.

[*]E-mail: xlou@cumt.edu.cn [†]E-mail: 13505158616@163.com

录用稿件，非最终出版稿