

双重竞争机制调控宏观活性 环状颗粒链的构象与动力学*

杨济华,王振宇,刘伟,郑宁

(北京理工大学物理学院,北京 100081)

摘要:构建了二维宏观活性环状颗粒链实验模型,该模型在拓扑约束、柔性力学、定向驱动及耗散相互作用维度上,与微观活性环状体系具有核心物理相似性。实验观测到惰性紧凑态、舒展环态、舒展-紧凑振荡环态 3 类典型构象,发现构象特征量随自驱动速度呈非单调变化,而动力学参数则表现出单调变化特征。其中,舒展-紧凑振荡环态是活性环体系中此前报道较少的非平衡动态行为。引入无量纲参数 Δ 定量表征活性-噪声竞争,并进一步揭示活性-噪声竞争与活性力-临界张力竞争的双重调控机制。该机制为环链构象转变与动力学演化规律提供了分析框架,并理论上推演出 4 种典型状态。本研究为活性柔性环体系的非平衡相行为提供了实验参考,其揭示的竞争机制可为活性智能材料的构象调控与功能设计提供概念层面的新思路。

关键词:活性物质;环状链;构象与动力学;双重竞争调控机制

中图分类号:O414.22 **文献标志码:**A

环状聚合物因其特有的无末端拓扑封闭结构成为高分子物理与软物质科学中的重要模型体系^[1-4]。与线性或支化聚合物相比,闭环拓扑从根本上改变了链的构象熵、弛豫路径及分子间缠结,呈现出更快的结晶速率^[5-7]、更高的玻璃化转变温度^[8]和更低的熔体黏度^[9]等独特平衡态性质。环状拓扑同样广泛存在于生命活性体系中,从环状 DNA/RNA^[10-12]、染色质环^[13-14]到细胞骨架组成的收缩环^[15],这类天然结构在非平衡能量驱动下承担着关键生物学功能。将活性驱动与环状拓扑相结合是理解生命物质动态自组织动力学、开发仿生智能材料的关键物理路径。

近年来,结构单元具有自驱动能力的活性环状聚合物已成为非平衡软物质研究的前沿。理论模拟结果表明,活性可显著改变环链的构象与动力学,如诱导其塌缩或膨胀^[16-18],增强其在受限环境下的迁移能力^[19-21]并引发拓扑重构^[22]。但现有研究严重依赖计算模拟,且采用链完全柔性、活性力严格切向和理想白噪声等简化假设,与具有内禀弯曲刚度、复杂驱动耗散机制的真实高分子体系差异显著,模拟结论的普适性缺乏实验验证。目前,如何在真实非平衡环境中定量揭示活性驱动与无序涨落之间的竞争规律^[23],并建立统一预测环链构象与动力学演化状态的物理框架,仍是该领域亟待解决的关键问题,同时因微观聚合物受限于时空分辨率,难以实现单链构象与内部动力学的实时观测与精确解析,也是面临的新问题。

为此,本研究构建了振动驱动的二维宏观活性环状颗粒链体系。该体系借鉴了振动驱动活性粒

* 收稿日期:2026-03-10;修回日期:2026-04-30

基金项目:国家自然科学基金面上项目(11974044)

作者简介:杨济华(2001—),男,甘肃兰州人,2023 级硕士研究生。E-mail: jhyang@bit.edu.cn

通信作者:王振宇(1991—),男,山西太原人,实验师,博士。主要从事凝聚态物理和物理实验教学研究。

E-mail: wangzy@bit.edu.cn

子在揭示集体相行为方面的成功经验^[24],并与微观活性环状聚合物在核心物理上保持相似:拓扑相似(闭合环状约束)、力学相似(可拉伸、可弯曲的弹性连接)、驱动相似(外部能量输入转化为切向自驱动)、相互作用相似(粒子排除体积效应)。其突出优势在于可对链上单粒子运动与整体构象转变等关键细节进行直接、同步、高精度的可视化测量,弥补了分子尺度的不足。需要指出的是,这种相似是特定物理机制层面的对应,而非全部微观细节的复现。

基于该平台,系统研究了不同活性强度下环状链的构象与动力学的演化。实验发现,随着活性增强,系统依次呈现3种典型稳态或动态稳态:惰性条件噪声主导的紧凑态、低活性区的稳定舒展旋环态和中高活性区的舒展-紧凑振荡旋环态。本研究进一步定量表征了回转半径和非球度等结构参量,以及环链旋转角速度、运动协同性和对位直径矢量弛豫时间等动力学量随活性强度的变化规律。研究表明,环链构象类型与动力学模式由双重竞争机制共同调控:定向活性-噪声竞争决定系统能否协同定向旋转,活性力绝对强度与系统固有张力临界值的竞争决定环链处于稳态舒展还是非稳态振荡。该框架阐释了现有简化模拟未能捕捉到的振荡现象,为理解活性柔性环状体系的相行为提供了清晰的物理图像。

1 实验方法

实验采用3D打印制备两类直径1 cm的运动单体,其核心结构为底部一圈沿中心轴对称分布的倾斜支腿。惰性单体的支腿呈径向内、外交替排布,振动下受力抵消表现为无规则随机运动,动力学特征接近布朗扩散。活性单体底部全部支腿保持同向倾斜排布,非对称几何可将垂直振动通过非弹性碰撞高效转化为水平定向推进力,从而实现自驱运动。实验所用环形链由50个同类型单体首尾串联构成闭合环,单体间以直径1 mm、绷直长度为1 cm的柔性棉线连接。棉线松弛时无轴向张力,拉直后产生沿绳方向的张力且弯曲阻力微弱,各单体活性力方向与连接棉线的切向基本一致,如图1(a)所示。

1.1 单体运动行为与驱动调控

本文系统表征了自由空间中单粒子的动力学行为。如图1(b)所示,活性粒子轨迹具有显著方向性与持续性;惰性粒子轨迹杂乱,仅表现出无规则布朗扩散特征。图1(c)展示了均方位移(Mean square displacement, MSD)随时间变化情况。活性粒子的MSD在短时间内符合扩散指数 $\alpha=2$ 的弹道扩散规律($\propto t^2$),随时间演化逐渐过渡为 $\alpha=1$ 的正常扩散($\propto t$);惰性粒子的MSD则始终满足 $\alpha=1$ 的布朗扩散规律。

实验固定电磁振动台无量纲加速度 $\Gamma=4$,在40~100 Hz范围内调节振动频率 f ,实现对活性粒子自驱动速度 v 的精确调控。如图1(c)中插图所示, v 随 f 单调递减,可调范围为2.14~5.91 cm/s,该调控关系为环链运动研究提供了稳定可控的驱动条件。

实验验证了体系处于过阻尼极限情况。根据实验参数计算,瞬态惯性力与阻尼力的比值为 $(mv/\tau_r)/\gamma v \approx 0.05 \ll 1$ (即Stokes数 $S_i \ll 1$)。这表明惯性效应仅为阻尼力的高阶小量。体系动力学由摩擦与活性驱动主导,过阻尼近似成立,惯性效应可忽略。

1.2 数据采集与处理

实验在直径54 cm的圆形振动平台上进行,初始将环形链拉直为圆形并置于平台中心,如图1(d)所示。以帧率为25 fps的摄像机实时采集运动图像,基于Python-OpenCV实现图像自动化处理,包括图像预处理、二值化、前景目标检测、连通域分析与质心追踪,精确提取环链上所有单体随时间变化的空间坐标,构建完整轨迹数据集,为环链构型演化与动力学量化分析提供数据支撑。

2 结果与分析

颗粒环链在振动条件下,可呈现3种稳定构象:紧凑态、舒展旋环态与舒展-紧凑振荡旋环态。惰性环链($v=0$ cm/s)经长时间演化后弛豫为稳定紧凑态,呈现二维紧凑结构,无显著质心平动与定向

旋转,如图2(a)所示。低活性($v = 2.73 \text{ cm/s}$)的环链保持舒展旋环态,整体近似圆形,仅存在小幅局部涨落,并持续稳定定向旋转,质心无明显平动,如图2(b)所示。高活性($v = 5.69 \text{ cm/s}$)的环链则表现为舒展-紧凑振荡旋环态:初始呈近似圆形的舒展结构,随时间演化发生多处弯折并整体径向收缩;然后链段重新舒展,继而再次收缩,过程伴随整体定向旋转,质心平动微弱,如图2(c)所示。

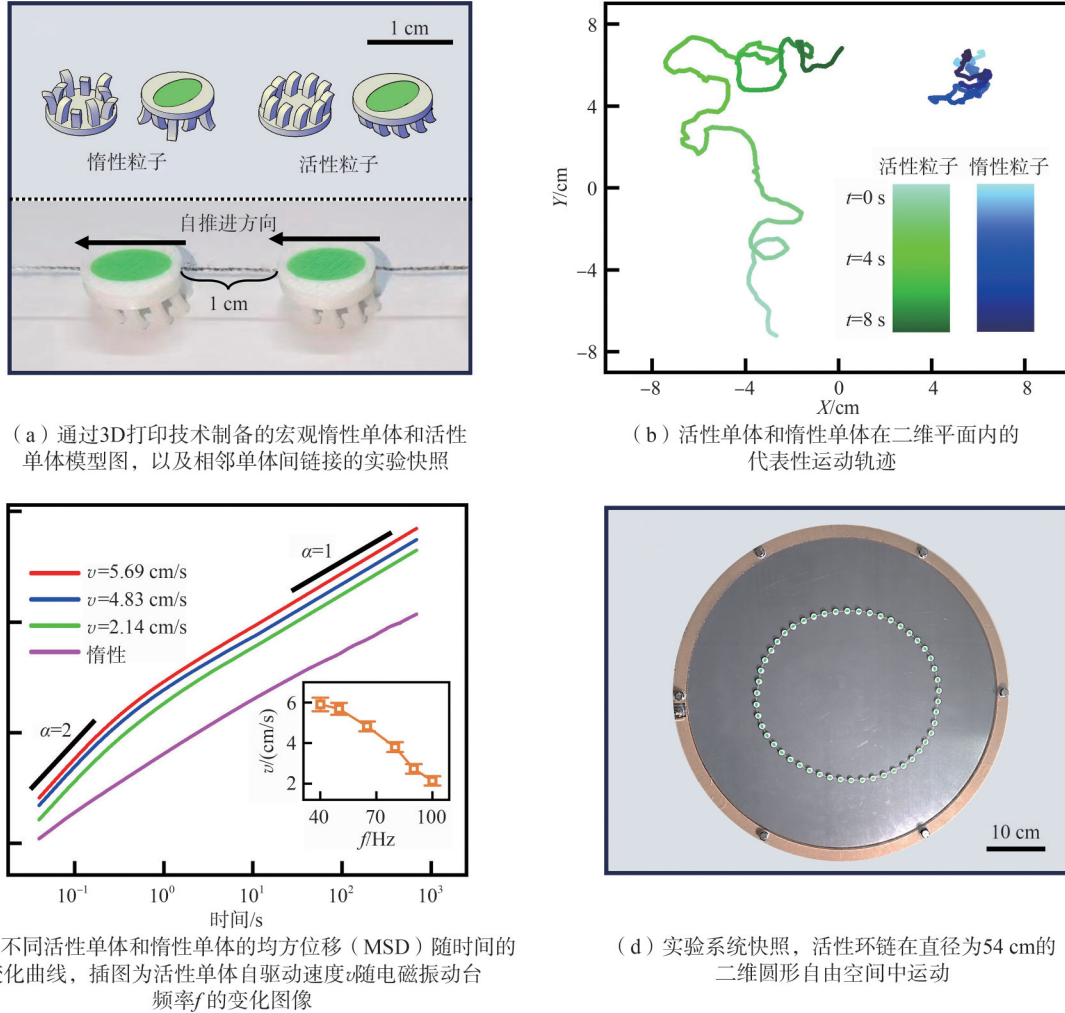


图1 宏观活性环状颗粒链的实验体系构建及单粒子运动表征

Fig. 1 Establishment of the macroscopic active granular ring chain system and characterization of single-particle motion

2.1 环链的构象

为定量表征环链的紧凑程度,引入回转半径 $R_g = \sqrt{\left\langle \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_{\text{cm}})^2 \right\rangle}$,其中 $\mathbf{r}_i$ 代表链上第 i 个单体的位置矢量, $\mathbf{r}_{\text{cm}}$ 为环链质心位置, N 为链中单体总数^[17,21,25]。图3(a)展示了不同自驱动速度下 R_g 的时间演化。其中,惰性环链的 R_g 随时间逐渐减小并趋于稳态;低自驱动速度($v = 2.14 \text{ cm/s}$)时, R_g 始终稳定在最大值附近,并表现出微弱涨落;当自驱动速度($v = 4.83 \text{ cm/s}$)适中时, R_g 缓慢衰减至稳态,其平均值显著高于惰性环链;当自驱动速度进一步增至 $v = 5.69 \text{ cm/s}$ 时, R_g 快速下降后呈现明显周期性波动,对应环链的舒展-紧凑振荡旋环态。

为直观反映活性驱动对环链构象的调控规律,绘制了时间平均回转半径 $\langle R_g \rangle$ 随自驱动速度 v 的变化曲线,如图3(b)所示,二者呈现显著非单调关系。惰性环链($v = 0 \text{ cm/s}$)的 $\langle R_g \rangle$ 最小,对应熵驱

动的紧凑态。体系虽处于持续振动,但微观运动受无规则类布朗扰动主导,且无定向驱动力与长程协同作用,构象演化遵循向多微观状态数、高构象熵状态弛豫的统计规律。紧凑态兼具高构象熵、强滞留性与力学稳定性,为该振动条件下的唯一稳定宏观构象,故惰性环链自发从低熵舒展态弛豫并稳定于高熵紧凑态。

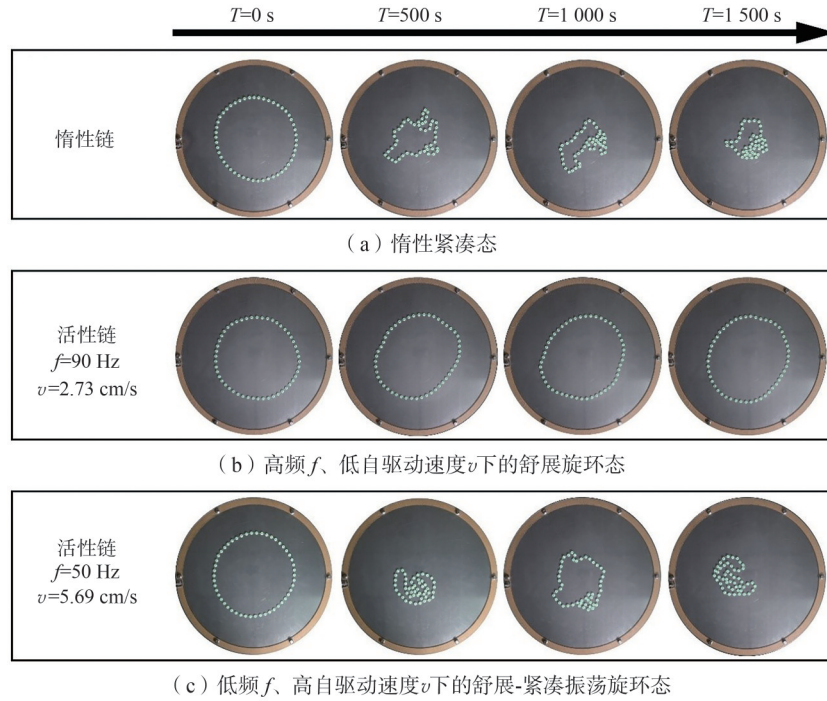


图2 不同活性条件下颗粒环链的典型构型演化快照

Fig. 2 Snapshots of typical conformational evolution of the ring chain under different activity conditions

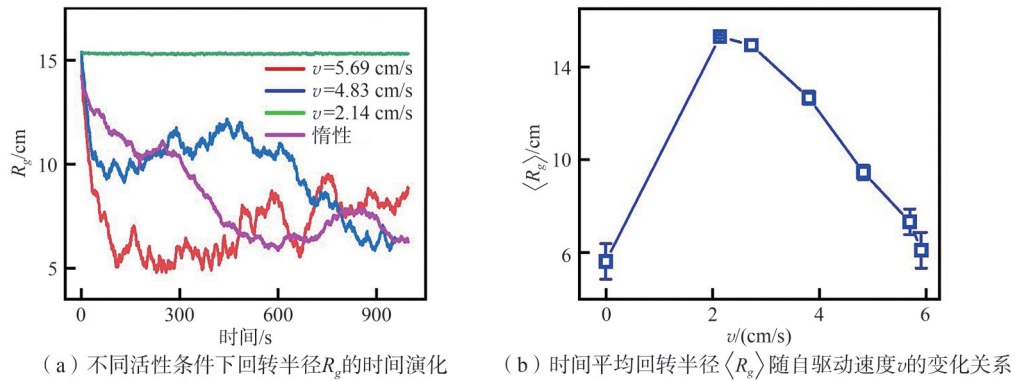


图3 颗粒环链回转半径的时间演化及速度依赖性

Fig. 3 Temporal evolution and velocity dependence of the gyration radius for the ring chain

低活性驱动($v = 2.14 \text{ cm/s}$)下, $\langle R_g \rangle$ 急剧增至最大值,表明低强度定向能量输入即可诱导环链脱离紧凑态,形成定向驱动主导的舒展旋环态。此时,切向活性力恰好抵消无规则噪声并维持棉线绷紧,径向张力分量为环链旋转提供向心力,切向活性力、棉线张力切向分量与基底摩擦力达成稳态平衡,抵抗各类扰动以稳定舒展构象。各粒子活性力沿环切向形成协同力矩,克服摩擦与弯曲阻力,驱动环链整体定向旋转且质心平动微弱。该舒展旋环态由定向非平衡驱动力与力平衡共同决定,其构象演化不受熵增主导。

当自驱动速度 v 继续增大, $\langle R_g \rangle$ 单调下降, 对应强驱动下环链呈现舒展-紧凑振荡旋环态。此时强切向活性力在抵消噪声、维持舒展后仍存净余量, 造成棉线过度拉伸并累积非均匀高张力。圆形构型处于亚稳态: 当强噪声涨落打破局部张力平衡, 或张力超过链段弯曲临界阈值时, 环链几何对称性破缺, 局部弯折引发全局约束失效, 累积的高张力瞬间释放并驱动环链向环链几何中心坍塌为棉线张力近乎消失的紧凑构象。而紧凑态下持续的切向活性力会重新拉伸棉线, 使环链逐步恢复舒展并再次累积张力, 构成环链稳定的舒展-紧凑振荡旋环态。

在分子物理中, 非球度 $A = (\lambda_1 - \lambda_2)^2 / (\lambda_1 + \lambda_2)^2$ [17-18] 是表征形状各向异性的关键物理量, 其中, λ_1 和 λ_2 是二阶回转张量 G_{mn} 的特征值, 对应构象在两正交方向的回转半径平方。 G_{mn} 包含体系相对于质心的空间分布特征, 定义为 $G_{mn} = 1/N \cdot \sum_{j=1}^N (r_{j,m} - r_{cm,m})(r_{j,n} - r_{cm,n})$, $m, n \in \{x, y\}$, $r_{j,m}$ 和 $r_{cm,m}$ 分别代表第 j 个粒子和质心在 m 方向上的位置。非球度 A 取值范围为 $0 \leq A \leq 1$, $A = 0$ 对应理想圆形, $A = 1$ 对应直线构型。

如图 4(a) 所示, 惰性环链的非球度 A 波动明显且整体较高, 源于熵驱动下无规则涨落导致的不对称紧凑态, 各向异性较强; 低自驱动速度 ($v = 2.14$ cm/s) 时, A 长期稳定在 0 附近, 对应各向同性的舒展旋环态; 中等速度 ($v = 4.83$ cm/s) 时, A 小幅波动, 仍以各向同性舒展构象为主; 高速度 ($v = 5.69$ cm/s) 时, A 波动显著且峰值较高, 表明构象频繁收缩折叠, 各向异性显著增强。

图 4(b) 为时间平均非球度 $\langle A \rangle$ 随自驱动速度 v 的变化情况。当 $v = 2.14$ cm/s 时, $\langle A \rangle$ 最小并趋于 0, 对应最均匀的各向同性构象, 与回转半径取最大值的结果一致; 当 $v > 2.14$ cm/s 时, $\langle A \rangle$ 随 v 单调上升, 各向异性逐渐增强, 与高驱动下构象收缩的规律相符合, 即图 3(b); 惰性环链的 $\langle A \rangle$ 显著偏高, 进一步证实了其熵主导的各向异性紧凑态。

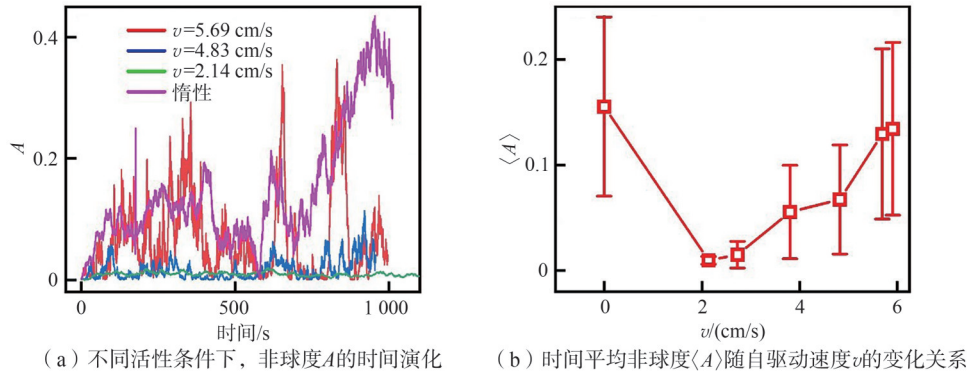


图 4 颗粒环链非球度的时间演化及速度依赖性

Fig. 4 Temporal evolution and velocity dependence of the asphericity for the ring chain

2.2 环链的动力学行为

为定量表征环链不同构象的动力学特征, 计算了环链对位直径矢量 R_d 的时间关联函数 $C_R(t)$ [17-18]。如图 5(a) 所示, 对位直径矢量定义为环上相隔 25 个单体的一对粒子的位置矢量差 ($R_d = \vec{r}_i - \vec{r}_{i+25}$), 可实时描述环链的整体取向与旋转运动。取向时间关联函数为 $C_R(t) = \hat{R}_d(t) \cdot \hat{R}_d(0)$, 其中 $\hat{R}_d(t)$ 为 t 时刻对位直径的单位矢量, 用以定量刻画环链取向对初始方向的记忆衰减特性。

如图 5(b) 所示, 舒展旋环态的关联函数 $C_R(t)$ 呈现清晰的周期性振荡, 表明环链以恒定角速度做规则旋转; 而舒展-紧凑振荡旋环态的 $C_R(t)$ 表现出振荡叠加指数衰减的特征。这一结果与图 2(b) 和 (c) 一致: 高频、低自驱动速度下, 环链做稳定的定向旋转, 对初始取向的记忆保持能力强; 低频、高自驱动速度下, 环链平均旋转角速度更快, 但噪声显著增强, 引发强烈的局部粒子振动。此类局部涨落不断累积, 破坏粒子间的运动协同性, 使对位直径矢量在短时间内丢失初始方向记忆。

为定量提取动力学参数,采用阻尼余弦振荡形式 $C_R(t) = \cos(\omega t) \exp(-t/\tau_e)$ 对图 5(b) 进行拟合^[17,26],其中角速度 ω 反映环链整体协同旋转的特征频率,有效弛豫时间 τ_e 表征有效取向记忆时间,描述的是环链需要多久的时间能够遗忘其初始取向。如图 5(c) 和 (d) 所示,随着自驱动速度 v 增大, ω 单调上升而 τ_e 单调下降,呈现出从舒展旋环态到舒展-紧凑振荡旋环态的变化:降低振动频率以提升 v 时,有效驱动力矩增大,使环链旋转角速度提高,但随之增强的噪声与定向驱动的竞争破坏了集体协同旋转的稳定性。因此,环链旋转速度加快的同时,对初始取向的记忆也更快衰减。

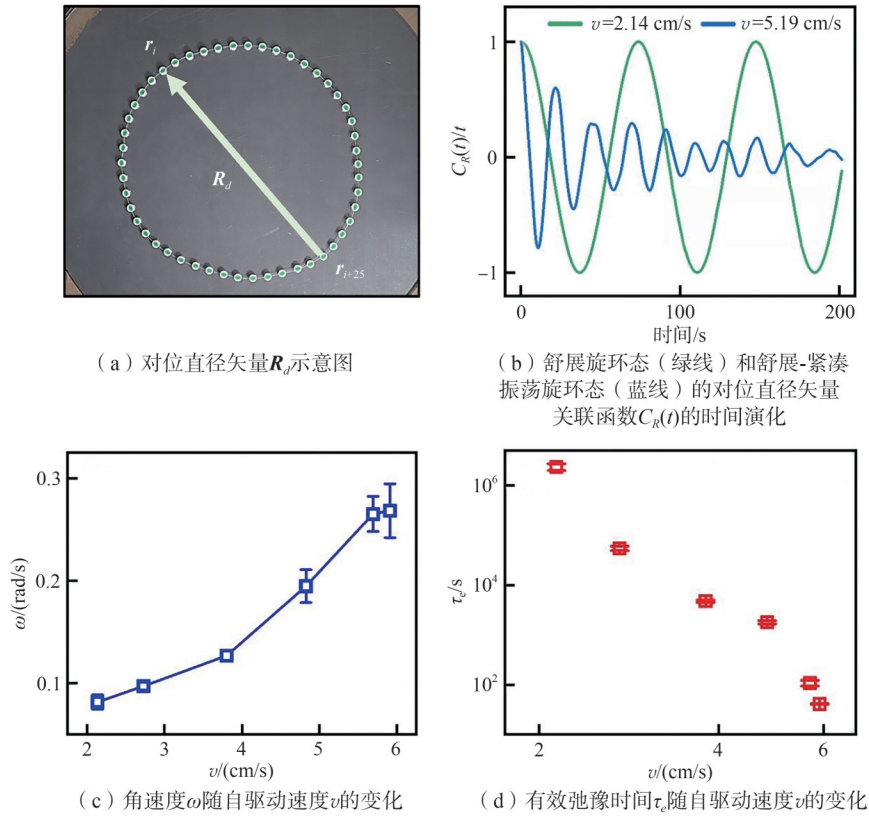


图5 环链动力学演化与参数定量表征

Fig. 5 Dynamical evolution and quantitative characterization parameters of the ring chain

2.3 活性-噪声与活性力-临界张力双重竞争机制

活性环链的非平衡构象转变与动力学演化本质是定向活性驱动、拓扑约束、耗散摩擦与噪声涨落协同竞争的宏观体现。振动环境中,自推进活性力注入能流并与环形拓扑耦合产生协同旋转力矩,基底噪声与内禀耗散则破坏构象对称性与运动相干性,促使体系向高熵态弛豫。环形拓扑的闭合特性将局域活性、张力传递与旋转动力学强耦合,使构象形变与取向演化高度关联,其系列转变与动力学特征均为活性-噪声非平衡竞争在特定拓扑与力学约束下的必然结果。

首先从活性-噪声竞争机制分析:动力学相干性(单元运动同步性、协调性与取向持续性)由二者相对强弱决定:活性提供定向协同秩序,噪声引发无规则扰动。鉴于环状柔性链的拓扑与力学耦合特性,局部活性力或自驱动速度难以完整表征体系有序度,故选用切向持续长度(活性驱动方向沿环链保持一致的特征长度)作为活性强度核心表征量和几何等价量。如图 6(a) 所示,因粒子定向运动方向与环切向基本一致,自由空间(无环链约束、无邻近粒子相互作用)单个粒子持续长度 $l_p = v\tau_r$ (v 为自驱动速度, τ_r 为转向弛豫时间)可等效描述环链切向活性持续长度。另一方面,采用惰性环相邻粒子间距的标准差 δl 作为系统噪声强度的几何表征。其物理依据在于:惰性粒子的支腿结构呈中心对称,在振动驱动下不产生定向自推进,振动输入能量全部转化为平面类布朗无规则运动。此时相邻

粒子间距的涨落 δl 综合反映了振动激励、基底摩擦、粒子惯性以及棉线柔性等多重因素共同构成的本征扰动强度,对应全局构象涨落幅度,并与体系的有效温度成正比^[2]。因此, δl 可作为系统基准噪声强度直接的实验观测量。

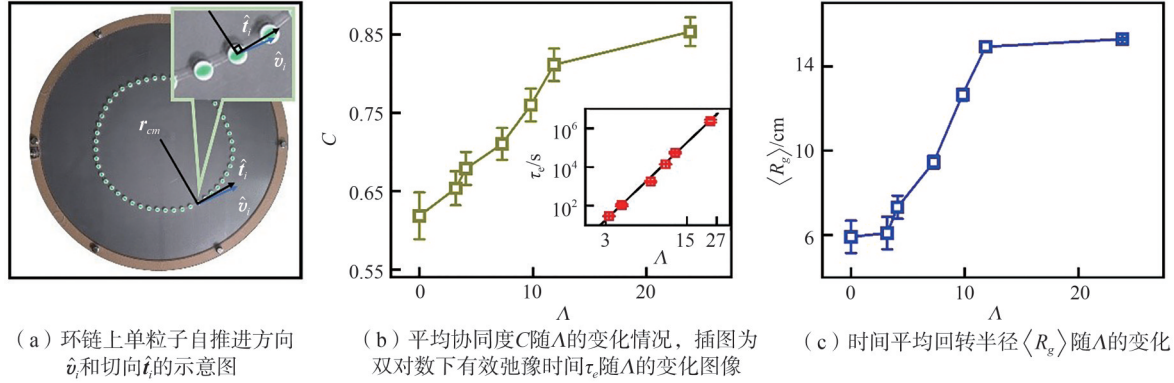


图6 无量纲活性强度 Δ 对环链动力学相干性的影响

Fig. 6 Effect of dimensionless activity strength Δ on the dynamical coherence of the ring chain

在此基础上,引入无量纲活性强度参数 $\Delta = l_p / \delta l = v \tau_\gamma / \sqrt{\langle (\Delta l)^2 \rangle}$, 其中, $\delta l = \sqrt{\langle (\Delta l)^2 \rangle} = \sqrt{\langle l^2 \rangle - \langle l \rangle^2}$ 为惰性环相邻粒子间距标准差。该参数以系统本征噪声为基准归一化,能够有效剥离具体实验条件的影响,其物理本质是活性建立长程协同与噪声破坏有序的能力竞争。需要指出的是, Δ 是控制参数,而非序参量。 l_p 与 δl 均在标准参考状态(自由活性粒子/惰性环)下独立测得,不依赖于活性环链的瞬时动力学输出。因此,即使振荡态中瞬时构象偏离理想切向运动, Δ 作为表征外部驱动与基准噪声相对强弱的前置参量,其物理意义依然成立。

当 $\Delta < 1$ 时,噪声占优,环链呈无规则畸变构象与非相干运动,无协同旋转;当 $\Delta > 1$ 时,活性主导,表现为规则对称构象与整体协同旋转,动力学有序且相干。图6中 Δ 轴范围介于0~30之间,对应于实验中的自驱动速度 v 变化区间。

为证实随着 Δ 增加,环链确实从无协同运动转变到整体协同旋转,通过平均协同度 $C = \langle \hat{v}_i \cdot \hat{t}_i \rangle$ 量化运动协同性,其中 $\hat{v}_i$ 为粒子自推进方向单位矢量, $\hat{t}_i$ 为局域切向单位矢量:当 $\Delta = 0$ (惰性体系)时,每个粒子的运动方向随机化, C 值最低;当 $0 < \Delta < 10$ 时,涨落仍能对有序协同构象产生破坏,导致协同度处于中间区间;当 $\Delta > 10$ 时,粒子集体运动与环切向高度一致, C 接近最大值,对应舒展旋转构象,见图6(b)。有效弛豫时间 τ_e 随 Δ 线性上升,表明旋转方向记忆保留能力与协同运动稳定性同步提升。

需要强调的是, Δ 仅决定动力学相干性,构象形态与力学稳定性由活性力 F_A 与棉线临界张力 F_C 的竞争主导。在本实验体系中,临界张力是活性环链作为闭合弹性结构在定向旋转条件下维持圆形构象的力学失稳阈值。该临界张力可近似由环周长、颗粒数及棉线弹性系数共同标定。活性力 $F_A = \gamma v$ 通过单个粒子自驱动速度与有效摩擦系数估算。有效摩擦系数 γ 通过外力-速度标定法测定:在活性粒子上施加已知外力 F_{ext} ,测量其稳态速度 v ,线性拟合 $F_{\text{ext}}-v$ 曲线,斜率即为 γ 。实验测得 $\gamma \approx 2.5 \times 10^{-2} \text{ N} \cdot \text{s/m}$ 。实验中, F_C 通过临界点反推法确定:在固定振动加速度 Γ 的条件下,逐步降低振动频率 f ,观测环链构象从稳定舒展旋环态转变为舒展-紧凑振荡态的临界频率 f_c (对应临界速度 $v_c \approx 4 \text{ cm/s}$)。由独立标定的有效摩擦系数 γ 计算临界点的单粒子活性力 $F_A^{\text{crit}} = \gamma v_c$ 。在过阻尼极限下,该驱动力沿环切向传递并在环内产生有效张力;在临界失稳点,此有效张力与 F_C 量级相当,故 $F_C \sim \gamma v_c \approx 10^{-3} \text{ N}$ 。

当 $F_A < F_C$ 时,活性力仅维持基础张力以对抗噪声,棉线处于弹性线性区,环链保持舒展稳定且

仅存在小幅涨落;当 $F_A > F_C$ 时,环链处于高张力状态,圆形构象为亚稳态,局部内凹扰动引发局域张力差,通过正反馈失稳导致链段塌陷,收缩后活性力重新拉伸棉线积累张力,形成舒展-紧凑循环振荡。

图6(c)验证了该判据:当 $\Delta = 0$ 时惰性环为高熵的紧凑态, $\langle R_g \rangle$ 最小; Δ 增大至低频高活性力($F_A > F_C$)时,舒展-紧凑的构象振荡使 $\langle R_g \rangle$ 逐渐增加; Δ 进一步增大至高频低活性力($F_A < F_C$)时,环链呈高度协同的舒展旋环态, $\langle R_g \rangle$ 趋于饱和。

综上,活性环链的动力学与构象由双重竞争机制共同调控,理论上可形成4种典型状态。①舒展旋环态($\Delta > 1$ 且 $F_A < F_C$):活性主导且张力未过载时,环链整体协同、同步旋转、近似圆形、力学稳定;②非相干舒展态($\Delta < 1$ 且 $F_A < F_C$):噪声主导但力学稳定,环链无统一协同旋转,整体不塌不缩,但形状凹凸、不规则畸变;③舒展-紧凑振荡旋环态($\Delta > 1$ 且 $F_A > F_C$):活性主导且张力过载,环链动力学相干有序,但构象在舒展-紧凑两态间振荡;④非相干振荡态($\Delta < 1$ 且 $F_A > F_C$):噪声主导且张力过载,环链发生无规则的舒展-紧凑振荡,形状剧烈畸变。

在当前实验参数范围内($\Gamma=4$, f 介于40~100 Hz之间,全程固定所有活性和惰性单体的几何结构),未在系统中观测到非相干舒展态($\Delta < 1$ 且 $F_A < F_C$)和非相干振荡态($\Delta < 1$ 且 $F_A > F_C$)这两种状态的稳定存在。当 f 降低(v 增大)时, τ_c 相应减小、 δl 相应增大,三者竞争导致 Δ 随 v 增加而单调递减。在本文实验范围内 $\Delta \in [3, 30]$,由于活性粒子的定向效率(由底部支腿几何构型决定)较高,在整个实验范围内 Δ 始终大于1(除了惰性环链),环链始终处于活性主导的相干旋转态。

因此, $\Delta < 1$ 的参数区域需要定向持续长度小于本征扰动长度($l_p < \delta l$),即活性粒子的定向效率极低或环境噪声异常强烈。这要求改变粒子几何设计(如减小支腿倾斜角)或引入额外噪声源,超出本文单一调控维度(振动频率)范围。这两种非相干状态是双重竞争机制框架的理论外推,用于保持理论相图的完整性,对应于更一般的参数空间。它们揭示了在定向效率受限或强噪声环境下的可能行为边界,但在当前实验条件下因 Δ 的参数耦合限制而未被观测到。

此外,惰性环的紧凑态源于非平衡涨落与几何弹性约束下的高熵稳定态,而活性环在舒展-紧凑振荡旋环态下的紧凑构象则来自张力过载引发的力学失稳,二者物理机制截然不同。上述结果清晰揭示了活性驱动、噪声涨落、内张力与几何弹性共同决定活性环链多态行为的统一物理机制。

本研究的结论主要适用于验证和理解由活性驱动、闭合拓扑、弹性约束和随机扰动这几项核心要素所导出的定性相行为与物理机制(如活性诱导的构象转变、动力学相干性产生)。但此体系由于尺度、驱动方式和耗散机制的差异,具体的定量参数(如临界值、绝对时间尺度)不能直接外推到微观体系,不能直接模拟依赖溶剂黏弹性、长程流体力学或链缠结等效应的微观现象,而更适用于类比稀疏溶液条件、忽略长程流体力学效应、关注单链行为的微观理论情景。对于涉及浓溶液、缠结网络的复杂行为,本模型不具备直接预测能力。

3 结论

本研究构建了振动驱动的二维宏观活性环状颗粒链模型,系统研究了自驱动强度对环链构象与动力学的调控规律。实验揭示了环链从噪声主导的紧凑态、经力学平衡的舒展旋环态到活性力过载引发的舒展-紧凑振荡旋环态的演化规律,发现时间平均回转半径随自驱动速度呈非单调变化趋势,而动力学参数呈单调变化趋势。

研究提出了双重竞争调控机制:活性-噪声竞争(由无量纲参数 Δ 定量表征)决定体系能否实现协同定向旋转;活性力-临界张力竞争(F_A vs F_C)决定构象处于稳态舒展还是非稳态振荡,该双参数框架推演出4种典型状态,实验系统证实了其中两种,另两种非相干态($\Delta < 1$)因当前粒子设计的定向效率限制而未被观测到,为未来在弱定向活性体系中验证提供了明确方向。

双重竞争机制不依赖于驱动的具体实现方式,而仅要求体系具备闭合拓扑、柔性连接、定向驱动

与耗散环境 4 项共性要素,因此是活性柔性闭环体系的普遍物理特征。无论是振动驱动的颗粒环、化学驱动的活性聚合物环,还是光驱动的胶体环,其构象与动力学均由这两项竞争共同支配。参数 Δ 以系统本征噪声为基准归一化,为量化定向有序与无序扰动的竞争提供了可跨体系借鉴的分析框架。但向微观体系的定量外推需谨慎,因微观体系的热噪声频谱、三维流体力学相互作用及熵弹性机制与本实验存在差异,可能导致定量阈值的偏移。

未来研究可在以下方向深入:在参数拓展上,系统研究连接键刚度和环尺寸等力学参数对相边界的影响;在拓扑复杂性上,探索链结和多环耦合等集体动力学行为。在应用层面,双重竞争机制为活性智能材料(如微纳机器人、脉冲式驱动器)的构象-功能耦合设计提供了原理参考,但工程实现仍面临能量供给与耐久性挑战。

参考文献:

- [1] Mcleish T. Floored by the rings[J]. *Nature Materials*, 2008, 7(12): 933-935.
- [2] Doi M, Edwards S F, Edwards S F. The theory of polymer dynamics[M]. Ithaca, NY: Oxford University Press, 1988.
- [3] Flory P J. Principles of polymer chemistry[M]. Ithaca, NY: Cornell University Press, 1953.
- [4] De Gennes P G. Scaling concepts in polymer physics[M]. Ithaca, NY: Cornell University Press, 1979.
- [5] Ungar G, Zeng X. Learning polymer crystallization with the aid of linear, branched and cyclic model compounds[J]. *Chemical Reviews*, 2001, 101(12): 4157-4188.
- [6] Su H H, Chen H L, Diaz A, et al. New insights on the crystallization and melting of cyclic PCL chains on the basis of a modified Thomson-Gibbs equation[J]. *Polymer*, 2013, 54(2): 846-859.
- [7] Clarson S J, Dodgson K, Semlyen J A. Studies of cyclic and linear poly (dimethylsiloxanes): 19. Glass transition temperatures and crystallization behaviour[J]. *Polymer*, 1985, 26(6): 930-934.
- [8] Santangelo P G, Roland C M, Chang T, et al. Dynamics near the glass temperature of low molecular weight cyclic polystyrene[J]. *Macromolecules*, 2001, 34(26): 9002-9005.
- [9] Dodgson K, Bannister D J, Semlyen J A. Studies of cyclic and linear poly (dimethylsiloxanes). 4. Bulk viscosities [J]. *Polymer*, 1980, 21(6): 663-667.
- [10] Alexiou T S, Alatas P V, Tsalikis D G, et al. Conformational and dynamic properties of short DNA minicircles in aqueous solution from atomistic molecular dynamics simulations[J]. *Macromolecules*, 2020, 53(14): 5903-5918.
- [11] Iwaki T, Ishido T, Hirano K, et al. Marked difference in conformational fluctuation between giant DNA molecules in circular and linear forms[J]. *The Journal of Chemical Physics*, 2015, 142(14): 145101.
- [12] Schleif R. DNA looping[J]. *Annual Review of Biochemistry*, 1992, 61(1): 199-223.
- [13] Mitra D, Pande S, Chatterji A. Topology-driven spatial organization of ring polymers under confinement[J]. *Physical Review E*, 2022, 106(5): 054502.
- [14] 孙慧敏, 张利绒, 刘利, 等. CTCF 介导的拓扑关联结构域边界的预测[J]. *内蒙古大学学报(自然科学版)*, 2023, 54(5): 482-490.
- [15] Sehring I M, Recho P, Denker E, et al. Assembly and positioning of actomyosin rings by contractility and planar cell polarity[J]. *Elife*, 2015, 4: e09206.
- [16] Anand S K. A computer simulation study of a chiral active ring polymer[J]. *The Journal of Chemical Physics*, 2024, 161(18): 184901.
- [17] Lamura A. Excluded volume effects on tangentially driven active ring polymers[J]. *Physical Review E*, 2024, 109(5): 054611.

- [18] Kumar S, Thakur S. Local polar and long-range isotropic activity assisted swelling and collapse dynamics of an active ring polymer[J]. *Macromolecules*, 2023, 56(14):5229-5236.
- [19] Theeyancheri L, Chaki S, Bhattacharjee T, et al. Active dynamics of linear chains and rings in porous media[J]. *The Journal of Chemical Physics*, 2023, 159(1):014902.
- [20] Li C, Chen Q, Ding M. Escape dynamics of active ring polymers in a cylindrical nanochannel[J]. *Soft Matter*, 2024, 20(8):1719-1724.
- [21] Theeyancheri L, Chaki S, Bhattacharjee T, et al. Migration of active rings in porous media[J]. *Physical Review E*, 2022, 106(1):014504.
- [22] Breoni D, Locatelli E, Tubiana L. Effects of knotting on the collapse of active ring polymers[J]. *Macromolecules*, 2025, 58(19):10677-10685.
- [23] 罗辽复. 什么是理论生物学?[J]. *内蒙古大学学报(自然科学版)*, 2017, 48(4):337-345.
- [24] 蒋楚楚, 郑宁, 刘伟. 活性粒子的运动属性和堆积密度诱导多种涡旋模式及其转变[J]. *内蒙古大学学报(自然科学版)*, 2023, 54(6):608-615.
- [25] Locatelli E, Bianco V, Magaretti P. Activity-induced collapse and arrest of active polymer rings[J]. *Physical Review Letters*, 2021, 126(9):097801.
- [26] Philipps C A, Gompper G, Winkler R G. Dynamics of active polar ring polymers[J]. *Physical Review E*, 2022, 105(6):L062501.

Dual Competitive Mechanisms Regulating the Conformation and Dynamics of a Macroscopic Active Ring-Shaped Granular Chain

YANG Jihua, WANG Zhenyu, LIU Wei, ZHENG Ning

(School of Physics, Beijing Institute of Technology, Beijing 100081, China)

Abstract: A two-dimensional macroscopic active ring-shaped granular chain model is established. The model captures the essential physics of microscopic active ring systems with respect to topological constraints, mechanical flexibility, directional driving, and dissipative interactions. Three distinct typical conformations are identified experimentally: the passive contracted state, the extended swirling ring state, and the extended-compact oscillating ring state. It is revealed that the conformational characteristic parameters display a non-monotonic variation with self-propulsion velocity, whereas dynamic parameters exhibit monotonic ones. Notably, the extended-compact reciprocating oscillation represents a rarely reported nonequilibrium dynamic in active ring systems. A dimensionless activity intensity parameter Λ is introduced to quantitatively characterize the activity-noise competition. Two competitive mechanisms governing the conformational and dynamic behaviors of the ring chain are further revealed: the activity-noise competition and the active force-critical tension competition. The mechanism furnishes an analytical framework for conformational transitions and dynamical evolution to predict theoretically four typical states. The work provides an experimental reference for the nonequilibrium phase behavior of active flexible ring systems, and the uncovered competition mechanisms may offer conceptual insights for the conformational and functional design of active intelligent materials.

Key words: active matter; ring-shaped chain; conformation and dynamics; dual competitive regulatory mechanism