arXiv:2611.32535v1 [cond-mat.soft] 24 Nov 2026

# 奇异黏性驱动的相分离：手性活性混合物

Xiaoyi Wu，[1] Tzer Han Tan，[1] 和 Hongbo Zhao[1, 2, *]
[1] *Department of Physics, University of California San Diego, La Jolla, CA 92093*
[2] *Department of Chemistry, University of California San Diego, La Jolla, CA 92093, USA*

自旋方向相反的活性粒子构成的二元混合物能够自发分离，形成同手性畴，但这种稳健分相背后的机制仍未得到充分理解。在此，我们建立了一种双流体流体动力学理论，将奇黏度推广到多组分系统。我们表明，交叉宇称破缺黏性将一种手性物种的应力与另一种物种的应变率耦合起来，能够使均匀混合物失稳；而每个同手性畴内部的奇黏度则决定了界面稳定性和动力学。对应力与速度关联的微观测量得出的黏度估算表明，系统会发生自发相分离，随后出现畴粗化。这些发现表明，奇黏度为调控手性活性混合物的相行为和畴形貌提供了一条途径。

活性物质消耗能量以产生运动和力，从而产生其被动物质所不具备的涌现现象。例如，自驱动活性布朗粒子可以发生运动性诱导相分离（MIPS），并形成致密团簇 [1]。活性与被动布朗粒子的混合物 [2, 3]以及施加差异应力的活性向列相都可以发生分相 [4, 5]。在这些系统中，关闭非平衡驱动后，相分离便会消失，因为其平衡热力学倾向于均匀态或混合态。

值得注意的是，手性活性物质中的微观组分会产生诸如旋转 [6], 之类的手性运动，这也为相分离提供了一条独特途径。在能够自驱动并旋转的环游型游动体以及仅进行旋转的旋转体中，反向旋转粒子的混合物都可以分相形成同手性畴，其中的粒子具有相同的手性。在环游型游动体的混合物中，相分离通过取向、集群运动和运动性诱导相分离（MIPS）发生 [7–9]。在旋转体的混合物中，无论是否存在流体动力学相互作用（湿系统或干系统）、采用惯性动力学还是过阻尼动力学，以及旋转体是由外部力矩驱动还是无力矩旋转体，相分离都能在多种实验和计算系统中稳健地产生 [10–14]。然而，尽管这种普适性十分显著，旋转体混合物中相分离背后的机制仍未得到充分理解，尤其是与上述其他活性相分离实例相比 [15], ，相关理论仍然缺失。

在相互作用的旋转体系统中，过去十年的大量研究已经确立，宇称破缺和时间反演对称性使黏度张量中出现非耗散且破坏宇称的分量 $\eta_{ijkl}$，即奇黏度。在二维各向同性系统中，奇黏度张量的形式为 $\eta_o(\epsilon_{ik}\delta_{jl}+\epsilon_{jl}\delta_{ik})$，其中$\epsilon_{ij}$ 是二维 Levi-Civita张量

[16–20]。后续研究表明，奇黏度对界面现象和相分离具有深远影响，可导致形成不含旋转体的气泡相 [21, 22]，外部剪切旋转体流体中的相分离 [23]，以及奇表面波 [24–28]。这些情况的共同点在于，奇黏度将剪切流与法向应力耦合起来，从而重新分布密度并改变界面动力学。受这些发现启发，我们将奇黏度推广到多组分流体。在本文中，我们首先从微观模型中展示混合物中相分离的出现，建立连续介质双流体模型，随后研究奇黏度 $\eta_o$ 如何控制后期界面动力学，最后通过微观涨落关联表明，一种将不同组分的应力与应变率耦合起来的宇称破缺黏度 $\eta_o'$ 是分相开始的根本原因。

微观模型——我们考虑由以大小相等、方向相反的角速度 $\pm\Omega$ 自旋的粒子组成的二维二元混合物。它们遵循过阻尼动力学

$$\sum_j \left(\boldsymbol{F}_{ij}+\boldsymbol{F}_{ij}^{\perp}\right)-\Gamma\boldsymbol{v}_i=0, \tag{1}$$

其中，$\Gamma$为阻尼系数，$\mathbf{v}_i$ 为粒子 $i$的速度。通过在右侧引入 $m\dot{\boldsymbol{v}}_i$ ，可将该模型扩展为包含惯性，其中$m$为粒子质量 [10, 21, 29]。粒子通过源自 Weeks-Chandler-Andersen（WCA）势、能量尺度为 $\epsilon$ 的成对位阻排斥 $\mathbf{F}^{ij}$ 以及 $\boldsymbol{F}_{ij}^{\perp}$ 与其相对于粒子中心连线的横向相对表面速度成正比的阻力相互作用。当旋转运动主导平移运动时，该速度与 $\Omega$ 成正比

$_i+\Omega j$，其中 $\Omega_i$ 是粒子 $i$的自旋速率。在此，我们采用距离依赖性由润滑理论预测的流体动力学阻力 [30]（补充材料第 S1A节），尽管集体行为对阻力的具体机制和距离依赖性并不敏感 [10–14]。

在一个过阻尼且所有

* hongbo@ucsd.edu

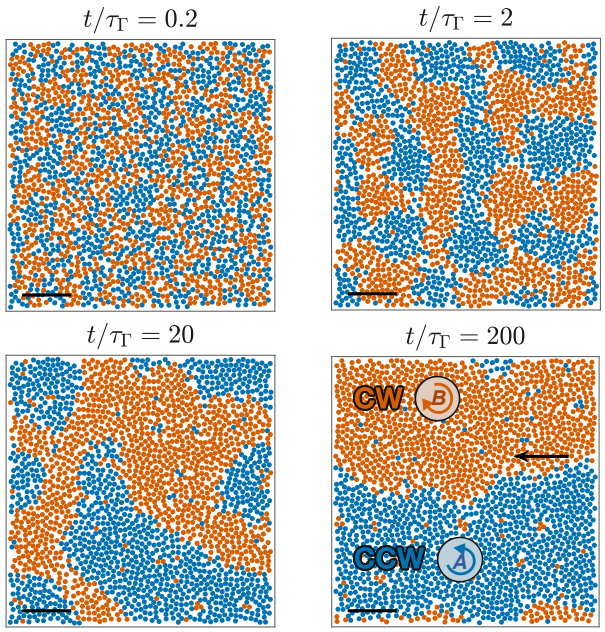


图1. 二元手性混合物中的相分离。基于智能体的模拟中，在堆积分数为 0.6 且采用周期性边界条件的情况下，直径为 $\sigma$ 的 $N_A = N_B = 1075$过阻尼混合物的时间演化。此密度下，特征粒子间距为 $1.14\sigma$。物种$A$ 逆时针旋转（$\Omega_A = \Omega > 0$，蓝色），物种 $B$顺时针旋转（$\Omega_B = -\Omega < 0$，红色），横向力与排斥力之比为 $f_0\Omega\sigma/\epsilon = 10^2$，其中 $f_0$ 为旋转阻力系数。时间以过阻尼弛豫时间 $\tau_\Gamma = \Gamma\sigma^2/\epsilon$ 为单位进行测量。初始均匀混合物自发分离成同手性畴。随着这些区域不断粗化，其界面变得近乎平面，并支持单向行波。（补充视频 S1）。最终快照中的箭头表示波传播方向。比例尺： $10\sigma$。

粒子以相同角速度旋转的过阻尼同手性系统中，系统保持均匀（图S1）。然而，在异手性混合物中，两种物种会自发分离成同手性畴（图1）。随后，这些区域不断粗化，形成近似平面的界面，波沿界面单向传播。在不存在吸引性成对相互作用的情况下出现这种显著的相分离，促使我们为该活性混合物建立连续介质理论。

连续介质模型——对于二元混合物，每种组分的密度 $n_\alpha$，其中组分标记为 $\alpha = A,\ B$，遵循连续性方程

$$\partial_t n_\alpha + \nabla\cdot(\mathbf{u}_\alpha n_\alpha) = 0, \tag{2}$$

其中 $\mathbf{u}_\alpha$ 是组分 $\alpha$的连续介质速度。每个组分的动量平衡满足 [4, 5, 22,31–33]

$$\nabla\cdot\boldsymbol{\sigma}_\alpha - n_\alpha\nabla\mu_\alpha = \Gamma\mathbf{u}_\alpha + \Gamma_f\mathbf{u}_{\alpha\beta}. \tag{3}$$

总应力 $\boldsymbol{\sigma}_\alpha = \boldsymbol{\sigma}_{\nu,\,\alpha} + \boldsymbol{\sigma}_{o,\,\alpha} + \boldsymbol{\sigma}_{\tau,\,\alpha}$ 由常规黏性应力和奇黏性应力 $\boldsymbol{\sigma}_{\nu,\,\alpha}$ 以及 $\boldsymbol{\sigma}_{o,\,\alpha}$ 和扭矩诱导应力 $\boldsymbol{\sigma}_{\tau,\,\alpha} = \eta_R\Omega_\alpha\boldsymbol{\epsilon}n_\alpha$ 组成，后者描述粒子之间的旋转阻力，其中 $\eta_R$ 为旋转黏度。 $\mu_\alpha$ 是 $\alpha$的化学势，而 $\Gamma_f$ 是作用于相对速度$\mathbf{u}_{\alpha\beta} \equiv \mathbf{u}_\alpha - \mathbf{u}^\beta$ 的种间阻力系数，该相对速度在 A 和 B 之间传递动量。

晚期界面动力学——我们首先运用该理论考察相分离晚期阶段的界面稳定性。此时，每个区域几乎完全由单一组分构成，并遵循相应的单组分流体动力学方程。如图1所示，由于位阻排斥，整个系统中的总密度几乎均匀。因此，我们将每种组分近似视为具有恒定密度 $n_0$ 的不可压缩流体，其中 $\nabla\cdot\mathbf{u}_\alpha = 0$，而 $n_0\mu_\alpha$ 作为强制满足这一约束的拉格朗日乘子。在界面处，我们施加速度连续性条件 $\mathbf{u}_A = \mathbf{u}_B$，该条件控制着界面动力学。在每个区域内，各组分的常规黏性应力和奇黏性应力分别化为其单组分形式，即 $\nabla\cdot\boldsymbol{\sigma}_{\nu,\alpha} = \eta_\alpha\nabla^2\mathbf{u}_\alpha$ 和 $\nabla\cdot\boldsymbol{\sigma}_{o,\,\alpha} = \eta_{o,\alpha}\boldsymbol{\epsilon}\nabla^2\mathbf{u}_\alpha$ [17–20, 24]，其中 $\eta_\alpha$ 和 $\eta_{o,\alpha}$ 分别是组分 $\alpha$ 的剪切黏度和奇黏度。由于 A 和 B 以相反的角速度 $\Omega_A = -\Omega_B = \Omega$ 旋转，且剪切黏度和奇黏度分别具有偶宇称和奇宇称，我们有 $\eta_A = \eta_B = \eta$ 和 $\eta_{o,A} = -\eta_{o,B} = \eta_o$。最后，两个组分的动量平衡合并式（方程3）要求界面两侧的牵引力连续。

在尖锐界面极限下，我们通过引入一个小的界面扰动 $h \sim e^{ikx+\omega t}$ （补充材料，第 S4D节），其中 $x$ 是沿界面的坐标，且 $k$ 是波数（图 2（a））。在长波长极限 $|k\lambda| \ll 1$下，色散关系标度为

$$\mathrm{Im}\omega \sim -\frac{\eta_R\Delta\Omega}{4\eta}(k\lambda)^3, \quad \mathrm{Re}\omega \sim \frac{\eta_R\Delta\eta_o\Delta\Omega}{2\eta^2}|k\lambda|^3, \tag{4}$$

其中 $\Delta\Omega = \Omega_B - \Omega_A$, $\Delta\eta_o = \eta_{o,B} - \eta_{o,A}$，且 $\lambda = \sqrt{\eta/\Gamma}$ 为流体动力学屏蔽长度。色散关系的虚部 $\mathrm{Im}\omega(k)$揭示了单向行波。在图2(a)所示的构型中，波向左传播，这与我们在微观模拟中观察到的界面波一致（补充视频S1）。色散关系的实部 $\mathrm{Re}\omega(k)$与 $\eta_o\Omega$ 成正比，决定界面的稳定性。这是因为奇黏度将两个区域中的剪切流与界面处的法向应力耦合，从而在两个区域之间产生正或负的界面张力 [24]，，具体取决于 $\eta_o\Omega$ 的符号。如果 $\eta_o\Omega < 0$，界面稳定，同手性畴保持分离。如果 $\eta_o\Omega > 0$，两个区域相互穿插，从而使 A 和 B 有效混合（图2(c)）。

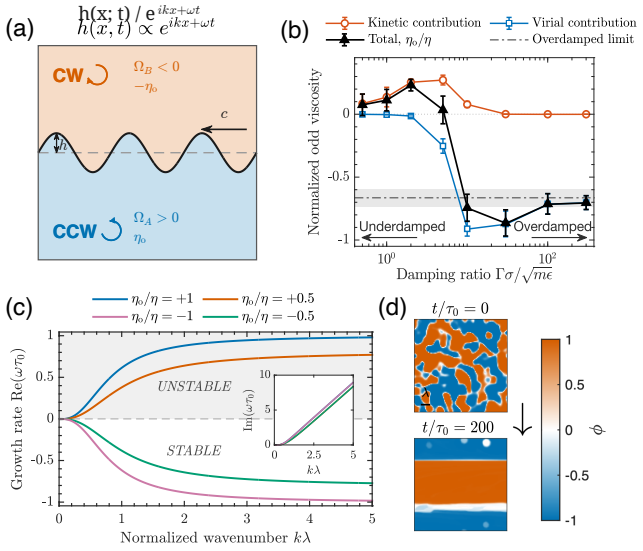


图 2. 奇黏度在相分离的后期阶段稳定了同手性区域之间的界面。(a) 物种 $A$和 $B$之间界面的示意图，其中相速度 $c = -\mathrm{Im}\,\omega/k$。(b) 在不同阻尼比（无量纲摩擦与惯性之比）下计算得到的奇黏度 $\eta_o/\eta$，采用格林–久保关系计算，并对五次独立运行结果取平均。$\Omega > 0$。阻尼增大使动能贡献 $\eta_o^{\mathrm{kin}}/\eta$ 相对于维里项 $\eta_o^{\mathrm{vir}}/\eta$ 减小（补充材料，S1 B节），从而反转奇黏度的符号。灰色虚线和阴影带表示过阻尼格林–久保结果 $\eta_o/\eta = -0.66 \pm 0.07$（95%置信区间）。(c) 不同 $\eta_o/\eta$取值下界面不稳定性的增长率 $\mathrm{Re}\omega$。插图：$\mathrm{Im}\omega$ 决定波传播的方向；$|\eta_o/\eta|$ 取值相同的曲线重合。(d) 不可压缩双流体模型的快照，模型初始状态为随机完全分离的A、B畴，且 $\eta_o\Omega < 0$。特征长度和时间尺度分别为 $\lambda = \sqrt{\eta/\Gamma}$、$\tau_0 = \eta/(\eta_R\Omega n_0)$。颜色表示组分场 $\phi = (n_A - n_B)/(n_A + n_B)$。

先前的微观模拟报告了 $\eta_o\Omega$ [23, 29, 34–37]的正值和负值。确定黏度的一种成熟方法是格林–久保关系，它将黏度张量与应力关联函数的时间积分联系起来 [29, 34, 38]：$\eta_{ijkl} \propto \int_0^\infty \langle\sigma_{ij}(t)\sigma_{kl}(0)\rangle dt$，其中 $\sigma_{ij}(t)$ 是根据 Irving-Kirkwood公式从微观模拟中测得的涨落应力[29]。在此，我们将这一方法应用于具有额外惯性的同手性系统中的微观模型，并系统地改变阻尼与惯性比（补充材料，第 S1B 节）。我们发现，增大阻尼会使 $\eta_o\Omega$ 的符号反转，因为源于粒子间作用力的维里贡献超过了来自粒子动量的动能贡献（图2(b)）。在欠阻尼状态下，$\eta_o\Omega > 0$，与先前研究一致 [29, 34, 36]。在本研究重点关注的强过阻尼无惯性状态下，$\eta_o\Omega < 0$ [23]。

这具有重要意义。首先，$\eta_o\Omega < 0$ 解释了微观模拟中后期观察到的平面界面的稳定性。此外，该界面的稳定性超越了线性区域。在不可压缩假设下对二组分模型（方程 2 和 3）进行模拟表明，当系统从相分离状态开始，即两个组分被分隔到几何形状随机的分离区域中时，这些区域会随时间不断粗化，直到界面最终变平（图 2(d)），与微观模拟结果高度一致。相比之下，在不存在奇黏度时——这是此前由外部力矩驱动的被动相分离系统研究的情形—— [39–41], 界面会持续变形而不会变平。当 $\eta_o\Omega > 0$ 时，界面会迅速扩张并增强混合（图 S5）。其次，如果移除不可压缩约束并允许密度发生变化，$\eta_o\Omega < 0$ 会抑制各相中的密度涨落，这一点已由对均匀密度场进行的线性稳定性分析和模拟得到证实（补充材料 S2 节，图 S4） [22]。这与我们的过阻尼模拟中同手性畴的均匀性一致（图 1 和图 S2）。在欠阻尼系统中，$\eta_o\Omega > 0$ 可能触发密度不稳定性并形成粒子耗尽气泡 [21, 22]。

尽管奇黏度可以解释同手性畴的粗化，但一个尚未解决的问题是，最初是什么触发了向同手性畴的分相。即使在宏观均匀的混合物中，局部组分涨落也会形成富含相反手性的区域。我们提出，这些区域边界处耦合的奇黏性响应经粗粒化后，会产生两个组分之间额外的交叉宇称破缺黏度（补充材料第S4F节）。因此，我们将这一响应纳入连续理论，考察其对均匀混合物稳定性的影响，并根据微观涨落关联测量相应的输运系数。

分相的起始条件——将黏度张量推广至包含交叉响应，并忽略体黏度后，黏性应力的散度变为

$$\nabla\cdot\boldsymbol{\sigma}_{\nu,\alpha} = \eta_{\alpha\beta}\nabla^2\mathbf{u}_\beta, \quad \nabla\cdot\boldsymbol{\sigma}_{\mathrm{o},\alpha} = \eta_{\mathrm{o},\alpha\beta}\boldsymbol{\epsilon}\nabla^2\mathbf{u}_\beta. \tag{5}$$

由具有相反手性的旋转体构成的混合物具有组合的宇称交换对称性（镜像反射并伴随 $A \leftrightarrow B$ 交换）。在等组成混合物中，这种宇称交换对称性将物种空间中的奇黏度张量限制为

$$\boldsymbol{\eta}_\mathrm{o} = \begin{pmatrix} \eta_\mathrm{o} & -\eta'_\mathrm{o} \\ \eta'_\mathrm{o} & -\eta_\mathrm{o} \end{pmatrix}, \tag{6}$$

以及剪切黏度张量至 $\eta_{\alpha\beta} = \eta\,\delta_{\alpha\beta} + \eta'(1-\delta_{\alpha\beta})$，其中 $\eta'$ 为交叉剪切黏度，且 $\eta'_\mathrm{o}$ 为交叉宇称破缺黏度。图 3(a) 展示了耦合两个独立剪切的广义黏度张量

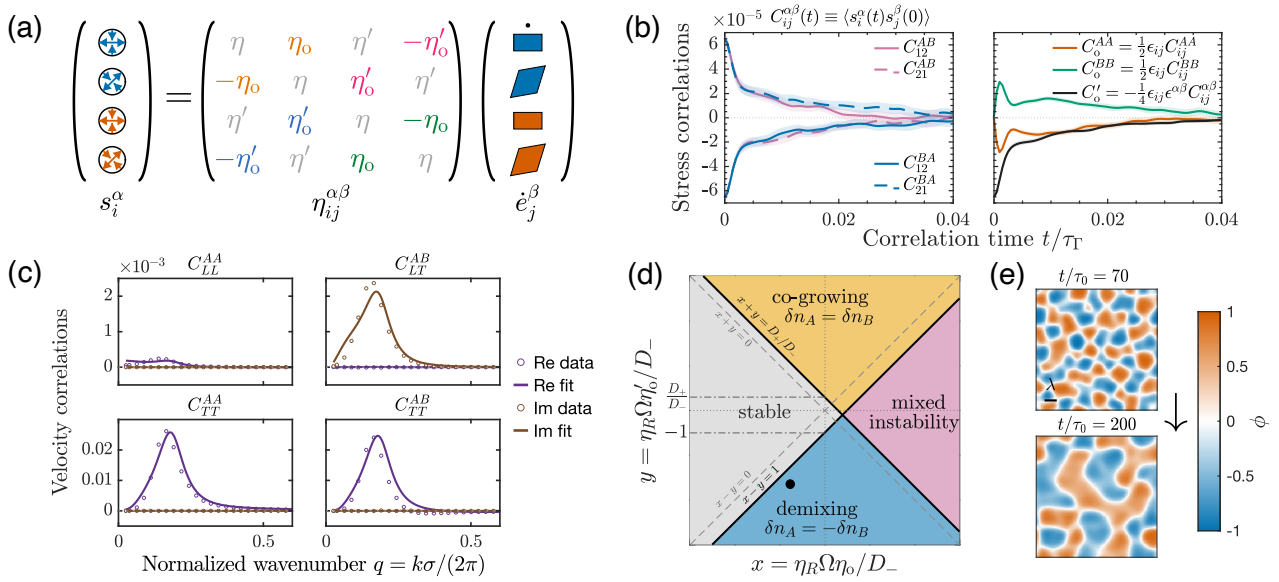


图3。交叉宇称破缺黏度引发体相分相。（a）反向旋转混合物中剪切应力与剪切应变率之间的关系，展示了对称性约束的黏度张量。（b）均匀混合物中的应力关联。左：A与B之间的奇应力关联满足宇称交换对称性。右：种内与种间奇应力关联的合并结果。它们的时间积分分别与 $\eta_o$ 和 $\eta_o'$成正比。关联取80条轨迹的平均值，并在堆积分数为1.1时测量。（c）在频率 $\omega\tau_\Gamma = 15.7$下，通过微观模拟测得的速度关联 $C_{LL}^{AA}$、 $C_{LT}^{AB}$、 $C_{TT}^{AA}$和 $C_{TT}^{AB}$的实部与虚部，并与涨落流体动力学理论的最佳拟合结果进行比较。（d） $\eta_o, \eta_o'$ 平面中的线性稳定性图，显示稳定、分相（$\delta n_A = -\delta n_B$ 模态不稳定）、共同增长（$\delta n_A = \delta n_B$ 模态不稳定）以及混合不稳定性（两个模态均不稳定）区域。（e）双流体模型模拟的快照，其中宇称破缺黏度由（d）中的黑点表示；模拟从带有小扰动的均匀密度状态开始。

两种物种的应力与应变率分量， $s_i^\alpha = \eta_{ij}^{\alpha\beta}\dot{e}_j^\beta$，其中 $(s_1^\alpha, s_2^\alpha) = (\sigma_{\alpha,xx} - \sigma_{\alpha,yy}, \sigma_{\alpha,xy} + \sigma_{\alpha,yx})/2$ 以及 $(\dot{e}_1^\alpha, \dot{e}_2^\alpha) = (\partial_x u_{\alpha,x} - \partial_y u_{\alpha,y}, \partial_x u_{\alpha,y} + \partial_y u_{\alpha,x})$。我们注意到，尽管同一物种的奇黏度 $\eta_o$是无耗散的，交叉宇称破缺黏度 $\eta_o'$却可以贡献于黏性耗散。

基于广义黏度张量和方程2-3，我们可以分析均匀混合物 $n_A = n_B = n_0$ 对微小密度扰动的线性稳定性（补充材料第S5B节）。这需要对化学势关于密度扰动进行展开： $\delta\mu_\alpha = n_\alpha^{-1}K_{\alpha\beta}\delta n_\beta - \kappa\nabla^2\delta n_\alpha$，其中 $K_{\alpha\beta} = n_\alpha\partial\mu_\alpha/\partial n_\beta$，且 $\kappa$ 是密度梯度能量惩罚最低阶项的系数。由于物种交换对称性，我们有 $K_{AA} = K_{BB} = K$和 $K_{AB} = K_{BA} = K_c$，因此线性稳定性分析中的两个密度本征模分别是同相（总密度）模 $\delta n_A = \delta n_B$ 和反相（组分）模 $\delta n_A = -\delta n_B$。我们定义 $K_\pm = K \pm K_c$。当以下条件成立时，总密度模变得不稳定：

$$\eta_R(\eta_o+\eta_o')\Omega > D_+ \equiv \left(\sqrt{(\eta-\eta')K_+}+\sqrt{\kappa n_0(\Gamma+2\Gamma_f)}\right)^2, \quad (7)$$

导致 A 和 B 的密度共同增长，形成高密度区和低密度区。组分模变得不稳定

当

$$\eta_R(\eta_o-\eta_o')\Omega > D_- \equiv (\sqrt{(\eta+\eta')K_-}+\sqrt{\kappa n_0\Gamma})^2, \quad (8)$$

从而导致分相。这些稳定性判据在混合物相图（图 3（d））中得到了说明。没有交叉宇称破缺黏度时，同一物种的奇黏度 $\eta_o$ 本身无法解释分相。图3（d）中的蓝色区域界定了总密度恒定时发生分相的条件。

接下来，我们将应力关联从单一组分推广到混合物，$C_{ij}^{\alpha\beta}(t) = \langle s_i^\alpha(t)s_j^\beta(0)\rangle$，以寻找 $\eta_o$ 和 $\eta_o'$的特征。旋转对称性和宇称交换对称性意味着 $C_{12}^{AA}(t) = -C_{21}^{AA}(t) = -C_{12}^{BB}(t) = C_{21}^{BB}(t)$，并且这些关联是时间延迟 $t$的奇函数，而 $C_{12}^{AB}(t) = C_{21}^{BA}(t) = -C_{21}^{AB}(t) = -C_{12}^{BA}(t)$则是 $t$的偶函数。我们通过在高堆积密度下进行模拟（图 S8），测量了均匀异手性混合物中的这些应力关联。图3(b)中的系综平均结果在统计不确定性范围内满足对称性关系。

将格林–久保关系推广到混合物，$\eta_{ij}^{\alpha\beta} \propto \int_0^\infty C_{ij}^{\alpha\beta}(t)\,dt$（补充材料第S5 C节），我们根据对称性条件计算 $\eta_o$ 和$\eta_o'$：$\eta_o = \frac{1}{4}\epsilon_{ij}(\eta_{ij}^{AA} - \eta_{ij}^{BB})$以及 $\eta_o' = -\frac{1}{4}\epsilon_{ij}\epsilon^{\alpha\beta}\eta_{ij}^{\alpha\beta}$，其中 $\epsilon^{AB} = -\epsilon^{BA} = 1$。当 $\Omega > 0$时，我们得到

$\eta_o/\eta = -0.064 \pm 0.007$，$\eta'_o/\eta = -0.086 \pm 0.008$ 处于 95% 置信区间内。结果 $\eta'_o < \eta_o < 0$ 支持根据方程 7-8，在总密度空间均匀时，分相所需的符号条件。

为了检验针对活性混合物提出的 Green-Kubo 关系，我们扩展流体动力学模型，将涨落应力 $\boldsymbol{\sigma}^R_\alpha$ 和力纳入其中，并将模型对速度涨落的预测与模拟中测得的结果进行比较（补充材料 S5 D节）。我们根据所需的对称性和格林–久保关系，采用涨落应力的最简模型，$\langle \sigma^R{}_{,ij}{}^{\alpha}(\mathbf{r}\ t)\ \sigma^R{}_{,kl}{}^{\beta}(\mathbf{r}',t')\rangle \propto \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}')(\eta^{\alpha\beta}_{ijkl}\text{,sym}\delta(t-t') + \eta^{\alpha\beta}_{ijkl}\text{,anti}^{\psi}(t-t'))$, 其中 $\psi(t)$ 是时间的奇函数。如上所述，应力关联的对称部分 $\eta^{\alpha\beta}_{ij}$,sym $= \eta^{\beta\alpha}_{ji}$,sym 在时间延迟反转下为偶函数，而反对称部分 $\eta^{\alpha\beta}_{ij}$,anti $= -\eta^{\beta\alpha}_{ji}$,anti 为奇函数。随后，我们可以利用 $\langle \hat{u}^{\alpha}_{\gamma}(\mathbf{k}\ \omega)\hat{u}^{*\beta}_{\delta}(\mathbf{k}',\omega') \rangle = C^{\alpha\beta}_{\gamma\delta}(k,\omega)\delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}')\delta(\omega - \omega')$, $\hat{}$ 计算均匀混合物中速度涨落的关联，其中 $\gamma,\delta \in \{L,T\}$, $\hat{u}^{\alpha}_{L} = \mathbf{k} \cdot \hat{\mathbf{u}}_\alpha$ 和 $\hat{u}^{\alpha}_{T} = (\epsilon\mathbf{k}) \cdot \hat{\mathbf{u}}_\alpha$ 分别是速度场的纵向和横向傅里叶振幅，而 k 是单位波矢。宇称交换对称性要求$C^{AA}_{\gamma\gamma} = C^{BB}_{\gamma\gamma}$ 和 $C^{AB}_{\gamma\gamma} = C^{BA}_{\gamma\gamma}$为实数，而 $C^{AA}_{LT} = -C^{BB}_{LT}$ 和 $C^{AB}_{LT} = -C^{BA}_{LT}$ 为复数。图3(c)展示了部分关联。对密度变化有贡献的纵向速度涨落远弱于对剪切流有贡献的横向速度涨落。随后，我们将理论拟合到微观模拟得到的速度关联，发现二者吻合良好（图3(c)）。我们采用自助法估算拟合参数的不确定性（补充材料 S5 D节），得到 $\eta_o/\eta = -0.02 \pm 0.02$ 和$\eta'_o/\eta = -0.1 \pm 0.04$ 处于95% 置信区间内。这与应力关联的结果$\eta'_o < \eta_o < 0$一致。对图3(d)蓝色区域中的广义双流体模型（$\eta'_o < \eta_o < 0$）进行连续介质模拟表明，从均匀密度出发，两种组分会发生分相，且区域随时间不断粗化（图3(e)）；而若 $\eta'_o = 0$, 它们则会保持混合（补充材料，S5 E节）。总之，微观测量和连续介质模拟支持一种由交叉宇称破缺黏性输运介导的体相分相机制。

讨论——通过将奇异黏性流体力学推广到双组分系统，我们建立了一个连续介质理论，用于描述异手性混合物的自发相分离以及随后同手性畴的粗化过程。该理论揭示了相分离如何直接源于非平衡输运系数，而无需借助驱动分相的外加双阱自由能 [10, 39–44]。我们对应力与速度关联的分析进一步为广义黏度张量提供了微观基础，并加深了对非平衡混合物涨落流体力学的理解。我们发现，宇称破缺黏度的符号及其相对大小对界面的稳定性和密度涨落起着关键作用。这意味着，惯性和旋转速度等微观参数会改变黏度比 [37], , 进而改变相行为。事实上，近期已有研究报道，在组分和角速度比不同的混合物中存在不同的微观结构 [11]。因此，我们将经典双流体模型推广到手性活性混合物 [4, 5, 31–33, 43, 44]，为探索相图不同区域中的新型不稳定性和图样开辟了途径。

一个引人入胜的研究方向是探究奇异黏度是否会产生有效的界面张力，从而支配相之间三相交界处的接触角（补充材料，图S6）。更广泛地说，这或许能为手性活性混合物中的毛细现象建立一个广义框架，其中界面动力学由非平衡应力控制 [45]。利用由振荡电场或声场驱动的几何手性粒子，或由内部电机驱动的手性机器人进行实验实现 [46–49] ，可能为探索手性活性混合物的理论相图，并为将外消旋混合物分离为同手性组分提供一条新途径。

致谢。H.Z. 感谢 Society of Hellman fellowship 的支持。T.T. 感谢 UC MRPI Active Matter Hub 的支持。T.T. 感谢 DARPA DSO Pitch Day Award HR0011-26-3-E052 的支持。

[1] M. E. Cates 和 J. Tailleur，《凝聚态物理年度评论》6，219（2015年）。[2] A. Wysocki、R. G. Winkler 和 G. Gompper，《新物理学杂志》18，123030（2016年）。[3] J. Stenhammar、R. Wittkowski、D. Marenduzzo 和 M. E. Cates，《物理评论快报》114，018301（2015年）。[4] S. Bhattacharyya 和 J. M. Yeomans，《物理评论快报》130，238201（2023年）。[5] S. Bhattacharyya 和 J. M. Yeomans，《物理评论E》110，024607（2024年）。[6] B. Liebchen 和 D. Levis，《欧洲物理学快报》139，67001（2022年）。[7] D. Levis 和 B. Liebchen，《物理评论E》100，012406（2019年）。[8] B. Ventejou、H. Chat´e、R. Montagne 和 X.-q. Shi，《物理评论快报》127，238001（2021年）。[9] B.-Q. Ai、S. Quan 和 F.-g. Li，《新物理学杂志》25，063025（2023年）。[10] N. H. P. Nguyen、D. Klotsa、M. Engel 和 S. C. Glotzer，《物理评论快报》112，075701（2014年）。[11] R.-x. Guo、J.-j. Li 和 B.-q. Ai，《物理评论E》111，045423（2025年）。[12] K. Yeo、E. Lushi 和 P. M. Vlahovska，《物理评论快报》114，188301（2015年）。

[13] C. Scholz、M. Engel 和 T. P¨oschel, 《自然·通讯》9, 931（2018年）。[14] M. Deb 和 R. Singh, 《软物质》22, 4846（2026年）。[15] M. E. Cates 和 C. Nardini, 《物理学进展报告》88, 056601（2025年）。[16] T. Khain、C. Scheibner、M. Fruchart 和 V. Vitelli, 《流体力学杂志》934, A23（2022年）。[17] M. Fruchart 、 C. Scheibner 和 V. Vitelli, 《凝聚态物理年度评论》14, 471（2023年）。[18] D. Banerjee、A. Souslov、A. G. Abanov 和 V. Vitelli, 《自然·通讯》8, 1573（2017年）。[19] T. Markovich 和 T. C. Lubensky, 《美国国家科学院院刊》121, e2219385121（2024年）。[20] T. Markovich 和 T. C. Lubensky, 《物理评论快报》127, 048001（2021年）。[21] L. Caprini 和 U. Marini Bettolo Marconi, 《化学物理学杂志》162, 161101（2025年）。[22] U. Marini Bettolo Marconi、A. Petrini、R. Maire 和 L. Caprini, 《新物理学杂志》28, 064401（2026年）。[23] Y. Ding、B. Wang、Q. Yang、Z. Zhao、S. Komura、R. Seto、M. Yang 和 F. Ye, 《研究》7, 0356（2024年）。[24] V. Soni、E. S. Bililign、S. Magkiriadou、S. Sacanna、D. Bartolo、M. J. Shelley 和 W. T. M. Irvine, 《自然·物理》15, 1188（2019年）。[25] C. B. Caporusso、G. Gonnella 和 D. Levis, 《物理评论快报》132, 168201（2024年）。[26] L. Neville 、 J. Eggers 和 T. B. Liverpool, 《物理评论快报》137, 088302（2026年）。[27] A. G. Abanov、T. Can 和 S. Ganeshan, 《SciPost物理学》5, 10.21468/scipostphys.5.1.010（2018年）。[28] A. Souslov、K. Dasbiswas、M. Fruchart、S. Vaikun- tanathan 和 V. Vitelli, 《物理评论快报》122, 128001（2019年）。[29] M. Han、M. Fruchart、C. Scheibner、S. Vaikuntanathan、J. J. de Pablo 和 V. Vitelli, 《自然·物理》17, 1260（2021年）。[30] T. H. Tan、A. Mietke、J. Li、Y. Chen、H. Higinbotham、P. J. Foster、S. Gokhale、J. Dunkel 和 N. Fakhri, 《自然》607, 287（2022年）。[31] S. Bhattacharyya 和 J. M. Yeomans, 《软物质》21, 7641（2025年）。[32] R. Bruinsma、A. Y. Grosberg、Y. Rabin 和 A. Zidovska, 《生物物理学杂志》106, 1871（2014年）。[33] S. A. Rautu、A. Zidovska、D. Saintillan 和 M. J. Shelley, 《物理评论X》16, 021009（2026年）。[34] C. Hargus 、 K. Klymko 、 J. M. Epstein 和 K. K. Man- dadapu, 《化学物理学杂志》152, 201102（2020年）。[35] Z. Liao、M. Han、M. Fruchart、V. Vitelli 和 S. Vaikun- tanathan, 《化学物理学杂志》151, 194108（2019年）。[36] J. Mecke、Y. Gao、C. A. Ram´ırez Medina、D. G. A. L. Aarts、G. Gompper 和 M. Ripoll, 《通信物理》6, 324（2023年）。[37] E. Eren、M. Fruchart 和 V. Vitelli, 《物理评论E》114, 024109（2026年）。[38] C. Hargus、A. Deshpande、A. K. Omar 和 K. K. Man- dadapu, 《物理评论快报》134, 097105（2025年）。[39] M. Spellings、M. Engel、D. Klotsa、S. Sabrina、A. M. Drews、N. H. P. Nguyen、K. J. M. Bishop 和 S. C. Glotzer, 《美国国家科学院院刊》112, E4642（2015年）。[40] S. Sabrina 、 M. Spellings 、 S. C. Glotzer 和 K. J. M. Bishop, 《软物质》11, 8409（2015年）。[41] B. Maji、N. B. Padhan 和 R. Pandit, 《通信物理》8，488（2025年）。[42] G. Pisegna 和 S. Saha, 《旋转混合物：非互易性在标量密度中跨尺度传递手性》（2025年）, arXiv:2509.07630 [cond-mat.stat-mech]。[43] J. F. Joanny、F. J¨ulicher、K. Kruse 和 J. Prost, 《新物理学杂志》9，422（2007年）。[44] A. C. Callan-Jones 和 F. J¨ulicher, 《新物理学杂志》13, 093027（2011年）。[45] Y. Zhao、R. Zakine、A. Daerr、Y. Kafri、J. Tailleur 和 F. van Wijland, 《自然·物理》22，805（2026年）。[46] S. Sabrina、M. Tasinkevych、S. Ahmed、A. M. Brooks、M. Olvera de la Cruz、T. E. Mallouk 和 K. J. M. Bishop, 《ACS纳米》12，2939（2018年）。[47] F. Ma、S. Wang、D. T. Wu 和 N. Wu, 《美国国家科学院院刊》112, 6307（2015年）。[48] C. Scholz、A. Ldov、T. P¨oschel、M. Engel 和 H. L¨owen, 《科学进展》7，eabf8998（2021年）。[49] F. Bo、S. Liu、Z. He、W. Joyce、G. Leech、K. Tran、K. Ramirez、N. Boechler、N. Gravish、H. Zhao 和 T. H. Tan, 《奇异机器人活性物质的三个相》（2026年）, arXiv:2603.09897 [cond-mat.soft]。

# 补充材料：手性活性混合物中的奇黏度驱动的相分离

Xiaoyi Wu, [1] Tzer Han Tan, [1] 和 Hongbo Zhao[1,2†] *Department of Physics, University of California San Diego, La Jolla, CA 92093, USA* [2] *Department of Chemistry, University of California San Diego, La Jolla, CA 92093, USA*

## 目录

S1. 微观模型 1
A. 手性旋转粒子的粒子模型 B. 格林-久保关系 1 2

S2. 单组分体相模型与稳定性分析 4
A. 连续介质模型与体相稳定性 B. 可压缩连续介质模拟 6 6

S3. 自由表面界面模型 7
A. 线性稳定性分析 B. 不可压缩连续介质模拟 7 9

S4. 二元混合物的界面稳定性分析 10
A. 体相模型与边界条件 B. 稳态解 C. 线性化体相方程与边界条件 D. 界面色散关系 E. 不可压缩连续介质模拟 F. 交叉宇称破缺响应的粗粒化起源 10 11 11 12 13 14

S5. 二元混合物体相模型与稳定性分析 15
A. 二元混合物的连续介质模型 B. 二元混合物的体相不稳定性 C. 多组分黏度矩阵的格林-久保关系 D. 涨落流体力学与速度关联 E. 二元混合物的连续介质模拟 15 15 17 22 26

参考文献 28

## S1. 微观模型

本节将介绍我们的微观模型，然后利用格林-久保关系从微观应力关联中提取输运系数。

### A. 手性旋转粒子的粒子模型

我们研究了受纯排斥性 Weeks-Chandler-Andersen（WCA）势和由横向摩擦产生的横向成对力作用的微观二维手性旋转粒子。WCA 势 $U^{\mathrm{WCA}}$

以及粒子 $i$ 与 $j$ 之间的成对作用力 $F_{ij}^{\mathrm{WCA}}$ 遵循

$$U^{\mathrm{WCA}}(r)=\begin{cases}4\epsilon\left[\left(\frac{\sigma}{r}\right)^{12}-\left(\frac{\sigma}{r}\right)^{6}+\frac{1}{4}\right], & r\le 2^{1/6}\sigma,\\ 0, & r>2^{1/6}\sigma.\end{cases}, \tag{S1.1}$$

$$\boldsymbol{F}_{ij}^{\mathrm{WCA}}=\begin{cases}\frac{24\epsilon}{r_{ij}}\left[2\left(\frac{\sigma}{r_{ij}}\right)^{12}-\left(\frac{\sigma}{r_{ij}}\right)^{6}\right]\hat{\boldsymbol{r}}_{ij}, & r_{ij}\le 2^{1/6}\sigma,\\ \mathbf{0}, & r_{ij}>2^{1/6}\sigma.\end{cases} \tag{S1.2}$$

其中粒子直径 $\sigma=1$ 设定 WCA截断为 $2^{1/6}\sigma$， $r$ 是粒子之间的距离， $\epsilon$ 是特征能量尺度，$\mathbf{r}ij=\mathbf{r}_i-\mathbf{r}j$， $r_{ij}=|\mathbf{r}_{ij}|$，$\hat{}\mathbf{r}ij=\mathbf{r}_{ij}/r_{ij}$。$\mathbf{r}_i$ 是粒子 $i$的坐标。粒子 $i$ 以角速度 $\Omega_i$自旋，并通过流体动力学相互作用。当粒子彼此靠近时，它们之间的阻力用润滑理论近似，与旋转体中心连线方向上相邻表面的横向相对速度成正比。当旋转体的旋转速率远大于其平动速度 $\Omega_i\sigma\gg|\mathbf{v}_i|$时，一对旋转体之间的流体动力学阻力为，

$$\boldsymbol{F}_{ij}^{\perp}=\frac{1}{2}f_0(\Omega_i+\Omega_j)\ln\frac{d_c}{r_{ij}}(\hat{\boldsymbol{z}}\times\hat{\boldsymbol{r}}_{ij}),\qquad r_{ij}<d_c=3\sigma, \tag{S1.3}$$

其中， $f_0$ 是由旋转运动产生的阻力系数。超过距离截断 $d_c$后，阻力消失。

旋转体的运动方程由过阻尼动力学描述，

$$\dot{\boldsymbol{x}}_i=\boldsymbol{v}_i, \tag{S1.4}$$

$$0=\sum_j\left(\boldsymbol{F}_{ij}^{\mathrm{WCA}}+\boldsymbol{F}_{ij}^{\perp}\right)-\Gamma\boldsymbol{v}_i. \tag{S1.5}$$

对于惯性旋转子，方程S1.5 左侧变为 $m\dot{\boldsymbol{v}}_i$，其中 $m$ 表示粒子质量。

对于基于智能体的模拟，我们选择 $f_0=1$、 $\epsilon=0.01$和 $\Omega=1$ 作为模拟单位，除非另有说明。按照我们的约定，$\Omega_A=+\Omega>0$ 表示逆时针旋转器，以蓝色显示；而 $\Omega_B=-\Omega<0$ 表示顺时针旋转子，以红色显示（图S1）。对于单组分模拟，我们使用 $\Omega_i=+\Omega$。粒子最初随机放置在六方晶格上，该晶格在矩形区域中包含 $N_x=43$ 行和 $N_y=50$ 列，并施加周期性边界条件。晶格间距为 $a=2^{1/6}a_0$，其中 $a_0=1.1$ 除非另有说明，对应于完全占据晶格上的堆积密度 $\rho\approx0.6$ 。我们的微观模拟显示，在纯过阻尼手性活性系统中存在截然不同的行为：单组分手性流体保持稳定，而反向旋转子的混合物则发生显著的相分离，如图S1所示。

我们给出了开放空间中含30%逆时针旋转器和70%顺时针旋转器的过阻尼手性活性混合物的额外结果，见图 S2，表明相分离在本研究重点关注的等组成混合物之外的其他组分下同样具有稳健性。

### B. 格林-久保关系

活性手性流体中的涨落应力可通过Green-Kubo关系与奇黏度相关联 [S1]。在基于智能体的模拟中，欧文-柯克伍德应力张量 $\boldsymbol{\sigma}$ 通过以下方式测量

$$\boldsymbol{\sigma}=-\frac{1}{V}\left[\sum_{i=1}^{N}m\boldsymbol{v}_i\boldsymbol{v}_i+\sum_{i<j}(\boldsymbol{F}_{ij}^{\mathrm{WCA}}+\boldsymbol{F}_{ij}^{\perp})\boldsymbol{r}_{ij}\right] \tag{S1.6}$$

$$=\boldsymbol{\sigma}^{\mathrm{kin}}+\boldsymbol{\sigma}^{\mathrm{vir}}, \tag{S1.7}$$

其中 $\boldsymbol{v}_i\boldsymbol{v}_i$ 和 $\boldsymbol{F}_{ij}\boldsymbol{r}_{ij}$ 表示并矢积，而 $V=L_xL_y=L^2$ 是二维模拟盒的尺寸。注意，在六方晶格中， $L_x\approx N_xa$ 和 $L_y\approx(\sqrt{3}/2)N_ya$ ，因此 $L_x\approx L_y\approx53$ 在我们的默认设置中。我们将应力张量分为动能贡献 $\boldsymbol{\sigma}^{\mathrm{kin}}$（式S1.6 中的第一项，源于粒子动量）以及构型贡献（或维里贡献） $\boldsymbol{\sigma}^{\mathrm{vir}}$ （源于粒子间作用力），以探究测得的黏度的物理起源。对称无迹应力的两个独立分量在（$\ell=2$）不可约表示下变换，其定义如下：

$$s_1=\frac{1}{2}(\sigma_{xx}-\sigma_{yy}),\qquad s_2=\frac{1}{2}(\sigma_{xy}+\sigma_{yx}), \tag{S1.8}$$

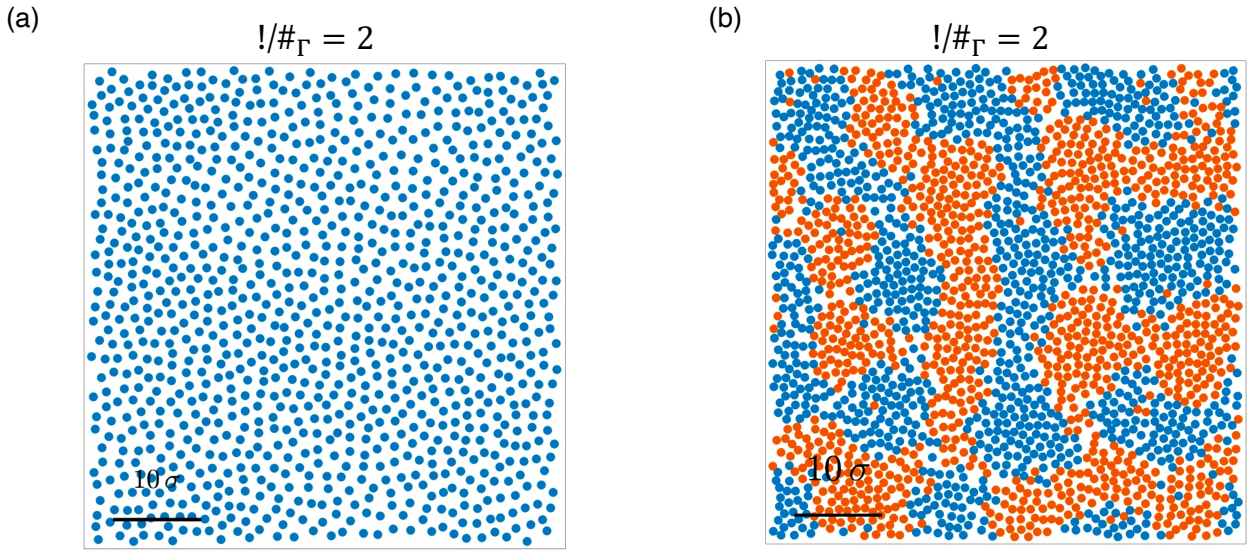


图 S1。**单组分旋转器的均匀性与二元混合物的分相**。（**a**）由 $N_A = 1075$ 逆时针旋转器（蓝色）组成的单组分系统保持均匀。（**b**）含有 $N_A = N_B = 1075$ 且 $t/\tau_\Gamma = 2$ 的二元混合物发生分相。

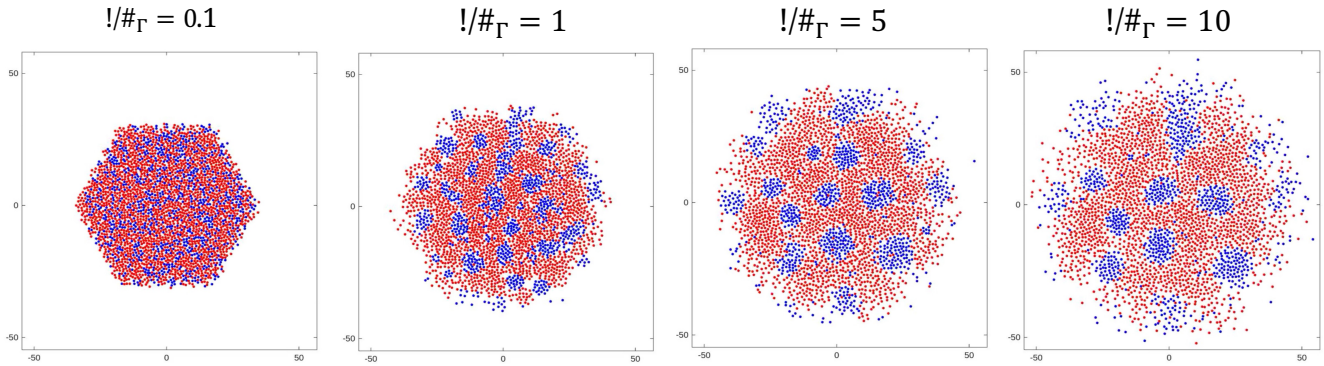


图 S2。**过阻尼二元混合物中不等组成下的稳健分相**。时间演化快照：开放空间模拟中含有 30 % 逆时针旋转器和 70% 顺时针旋转器的混合物。

并将其称为文献 [S2]中的剪切应力 1 和剪切应力 2。由于旋转对称性，应力分量的关联满足 $\langle s_1(t)s_1(0)\rangle = \langle s_2(t)s_2(0)\rangle$，且 $\langle s_1(t)s_2(0)\rangle = -\langle s_2(t)s_1(0)\rangle$。因此，我们定义这些应力分量的自相关函数和互相关函数：

$$C_{\text{auto}} = \frac{1}{2}\big(\langle s_1(t)s_1(0)\rangle + \langle s_2(t)s_2(0)\rangle\big), \tag{S1.9}$$

$$C_{\text{cross}} = \frac{1}{2}\big(\langle s_1(t)s_2(0)\rangle - \langle s_2(t)s_1(0)\rangle\big). \tag{S1.10}$$

我们还定义剪切应力的动能分量和维里分量，例如 $s_1^{\text{kin}} = \frac{1}{2}(\sigma_{xx}^{\text{kin}} - \sigma_{yy}^{\text{kin}})$，以及相应的关联函数 $C_{\text{auto}}^{\text{kin}} = \frac{1}{2}\big(\langle s_1^{\text{kin}}(t)s_1^{\text{kin}}(0)\rangle + \langle s_2^{\text{kin}}(t)s_2^{\text{kin}}(0)\rangle\big)$ 等。请注意 $C_{\text{auto}} \neq C_{\text{auto}}^{\text{kin}} + C_{\text{auto}}^{\text{vir}}$，因为 $C_{\text{auto}}$ 也涉及动能应力和维里应力之间的关联。

剪切黏度和奇黏度与关联函数的关系如下：

$$\eta = \frac{V}{k_B T_{\text{eff}}} \int C_{\text{auto}}(t) dt \tag{S1.11}$$

$$\eta_{\text{o}} = \frac{V}{k_B T_{\text{eff}}} \int C_{\text{cross}}(t) dt, \tag{S1.12}$$

其中 $k_B$ 为玻尔兹曼常数。所有速度涨落均由确定性势和横向力产生，不存在热噪声。在有限惯性下，速度涨落的动能定义了有效温度 $T_{\text{eff}} = m\langle|\mathbf{v}|^2\rangle/2$ [S3]。我们报告无量纲比 $\eta_{\text{o}}/\eta$ 其中 $T_{\text{eff}}$ 相消。如图3(b)所示，奇黏性应力关联信号在 $t = 0$处为零，这是时间反演下反对称性的结果： $\langle s_1(t)s_2(0)\rangle = -\langle s_1(-t)s_2(0)\rangle$ [S1]。我们还报告由下式定义的奇黏度的动能和维里贡献

$$\eta_{\text{o}}^{\text{kin}} = \frac{V}{k_B T_{\text{eff}}} \int C_{\text{cross}}^{\text{kin}}(t) dt \tag{S1.13}$$

$$\eta_{\text{o}}^{\text{vir}} = \frac{V}{k_B T_{\text{eff}}} \int C_{\text{cross}}^{\text{vir}}(t) dt. \tag{S1.14}$$

以及贡献 通过动能应力和维里应力之间的交叉关联对奇黏度的贡献，

$$\eta_{\text{o}}^{\text{kin-vir}} = \frac{V}{k_B T_{\text{eff}}} \int C_{\text{cross}}^{\text{kin-vir}}(t) dt, \tag{S1.15}$$

其中

$$C_{\text{cross}}^{\text{kin-vir}} = \frac{1}{2}\big(\langle s_1^{\text{kin}}(t)s_2^{\text{vir}}(0)\rangle + \langle s_1^{\text{vir}}(t)s_2^{\text{kin}}(0)\rangle - \langle s_2^{\text{kin}}(t)s_1^{\text{vir}}(0)\rangle - \langle s_2^{\text{vir}}(t)s_1^{\text{kin}}(0)\rangle\big). \tag{S1.16}$$

总体而言， $\eta_{\text{o}} = \eta_{\text{o}}^{\text{kin}} + \eta_{\text{o}}^{\text{vir}} + \eta_{\text{o}}^{\text{kin-vir}}$。我们在图 S3(a) 中展示，奇黏度的动能–维里交叉贡献 $\eta_{\text{o}}^{\text{kin-vir}}$并不是决定 $\eta_{\text{o}}/\eta$ 符号的主导贡献，这对于我们计算的所有阻尼比均成立。

图 S3 半阻尼相对于惯性较弱时，动能贡献占主导，且 $\eta_{\text{o}} > 0$，这与动理论对手性气体所预测的符号一致 [S4]；粒子碰撞时，旋转运动产生的横向力会使粒子偏转，从而产生横向动量通量，进而对正的奇黏度有所贡献。增大 $\Gamma$ 会抑制动能部分，使应力仅通过瞬时粒子间作用力传递；此时横向力会使接触方向产生偏置，并产生符号相反的横向响应。这两种贡献在 $\Gamma \approx 5$附近相互抵消，之后维里贡献逐渐趋于平稳：纯过阻尼模拟得到 $\eta_{\text{o}}/\eta = -0.66 \pm 0.07$，这与过阻尼状态下施加 Lees-Edwards剪切时测得的负号一致 [S5]。欠阻尼手性气体中预测和测得的 $\eta_{\text{o}}\Omega$ 正值 [S1、S4] 以及过阻尼旋转体中报告的负值 [S5，S6] ，体现了更广泛的奇黏度响应的两个极限状态；这种响应由惯性与耗散之间的平衡所决定。

图 S3 和正文图2(c)中报告的单组分奇黏度是在体积分数为10%的条件下测得的，此时流体保持均匀，因此适合进行 Green–Kubo 分析。对于每个阻尼系数，测量结果均取五条独立轨迹的平均值。每条轨迹的前半段均被舍弃，以使系统达到稳态，关联函数则根据后半段数据计算。格林-久保积分窗口根据总剪切应力自关联的衰减情况确定，积分采用梯形法则计算。本文报告的统计不确定性和阴影区域，是按照学生t分布取双侧95%置信区间进行估算的。

### S2. 单组分体相模型与稳定性分析

我们提出了一个描述单组分过阻尼手性流体的最简连续介质模型。受手性活性流体水动力学描述的启发 [S7–S9], ，该模型结合了质量守恒、动量平衡、黏性应力、奇黏性应力以及由微观自旋动力学产生的力矩。我们首先考察单组分流体的体相动力学与稳定性，然后在第S5节将这一框架推广至具有相反手性的二元混合物。

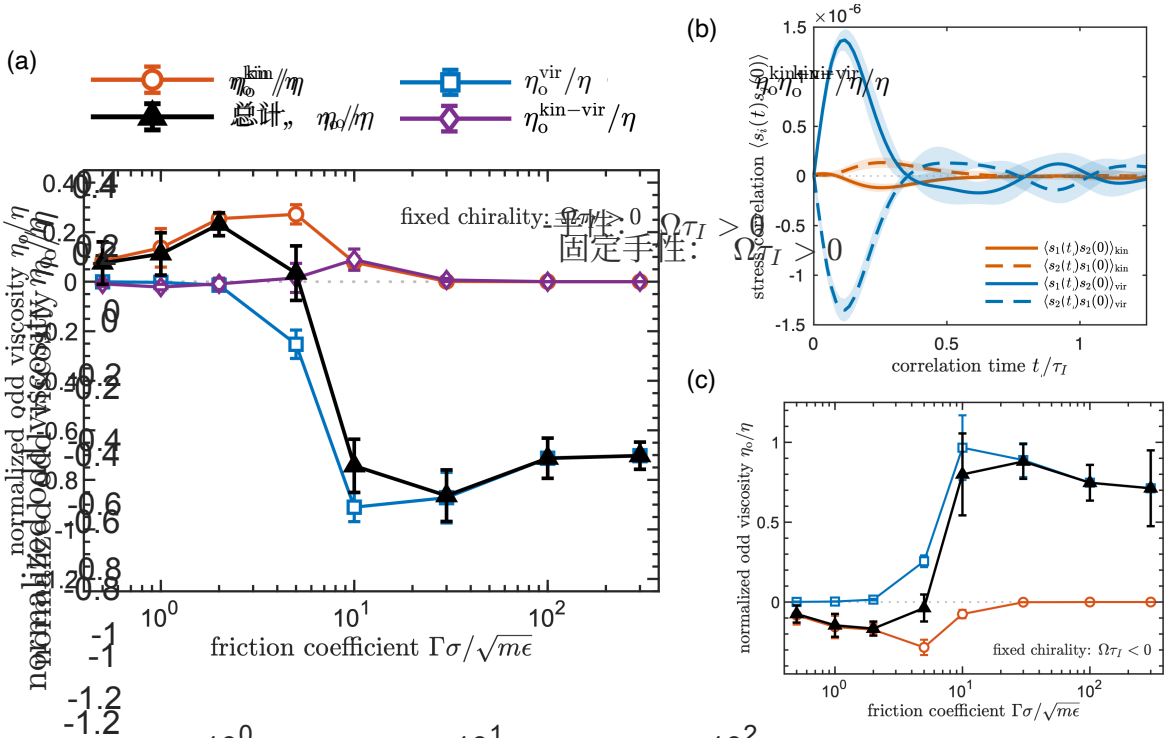


图 S3. **阻尼诱导的奇黏度符号反转。(a)** 对于 $\Omega\tau_I > 0$ 的顺时针旋转器， $\eta_o/\eta$ 对阻尼比 $\tilde{\Gamma}$ 的依赖关系；其中包括动能–维里交叉贡献（紫色），与动能贡献和维里贡献 $\eta_o^{\rm kin}$ 和 $\eta_o^{\rm vir}$ 相比，该项较小，因此对奇黏度符号的决定作用有限。阻尼系数通过 $\tilde{\Gamma} = \Gamma\tau_I/m = \Gamma\sigma/\sqrt{m\epsilon}$ 按惯性时间尺度 $\tau_I = \sigma\sqrt{m/\epsilon}$ 进行无量纲化，其中 $\tau_I$ 与动量弛豫时间 $m/\Gamma$ 的比值为该参数。**(b)** $\Omega\tau_I < 0$、$\Gamma = 10$ 条件下的应力交叉关联函数 $\langle s_i(t)s_j(0)\rangle$，按动能贡献和维里贡献进行分解；在强阻尼区间，维里贡献占主导。**(c)** $\Omega\tau_I < 0$ 时 $\eta_o/\eta$ 随 $\tilde{\Gamma}$ 的变化。随着阻尼增大，动能贡献（红色）逐渐受到抑制，在过阻尼极限下产生 $\eta_o/\eta > 0$。反转旋转体的手性会使 $\eta_o$ $\eta_o < 0$ ± 95 的符号反转，这与过阻尼状态下两种手性对应的 Ω 一致。数值以五条独立轨迹的均值 % 置信区间表示。

对于惯性可忽略极限下的二维单组分手性流体，密度 $n(\mathbf{r}\ t)$ 和速度场 $\mathbf{u}(\mathbf{r}\ t)$ 由以下一般形式的方程描述

$$\partial_t n + \nabla\cdot(n\mathbf{u}) = 0, \tag{S2.1}$$

$$\nabla\cdot(\boldsymbol{\sigma}_v + \boldsymbol{\sigma}_o + \boldsymbol{\sigma}_\tau) - n\nabla\mu - \Gamma\mathbf{u} = 0, \tag{S2.2}$$

其中， $\Gamma > 0$ 是基底摩擦系数， $\mu = \delta F/\delta n$ 是化学势，其中 $F$ 是自由能。为描述空间变化的密度场，我们允许本构系数依赖于 $n_\circ$ 黏性应力、奇黏性应力和主动扭矩应力为

$$\sigma_{ij,v} = \eta(n)\left(\partial_i u_j + \partial_j u_i - \frac{2}{d}\delta_{ij}\partial_k u_k\right) + \zeta(n)\delta_{ij}\partial_k u_k, \tag{S2.3}$$

$$\sigma_{ij,o} = \eta_o(n)\left(\epsilon_{ik}\partial_k u_j + \epsilon_{jk}\partial_i u_k\right) = \eta_o(n)\left(\epsilon_{ik}\partial_j u_k + \epsilon_{jk}\partial_k u_i\right), \tag{S2.4}$$

$$\sigma_{ij,\tau} = \eta_R\Omega n\epsilon_{ij}, \tag{S2.5}$$

其中， $\zeta$ 是体黏度，$\epsilon_{ij}$ 是二维列维-奇维塔张量，空间维数为 $d = 2$。我们假设剪切黏度、体黏度和奇黏度 $\eta(n)$、$\zeta(n)$和 $\eta_o(n)$均线性依赖于密度 $n_\circ$ 奇黏性应力的散度变为

$$f_{i,o} = \partial_j\sigma_{ij,o} = \eta_o(n)\epsilon_{ik}\partial_{jj}u_k + \eta_o'(n)(\partial_j n)\left(\epsilon_{ik}\partial_j u_k + \epsilon_{jk}\partial_k u_i\right). \tag{S2.6}$$

因此，对于关于密度为 $n = n_0$ 且 $\boldsymbol{u} = 0$的均匀稳态的扰动，方程 S2.6 中的唯一线性阶贡献为 $\eta_o(n_0)\boldsymbol{\epsilon}\nabla^2\mathbf{u}$。其余所有贡献均为扰动的非线性项。密度-

依赖项在完整的连续介质模拟中会用到，但不会改变下文的体相线性稳定性分析。

### A. 连续介质模型与体相稳定性

在线性稳定性分析中忽略非线性项后，方程 S2.2 变为

$$\eta\nabla^2\mathbf{u} + \eta_R\Omega\boldsymbol{\epsilon}\nabla n - \Gamma\mathbf{u} - n\nabla\mu + \eta_o\boldsymbol{\epsilon}\nabla^2\mathbf{u} + \zeta\nabla(\nabla\cdot\mathbf{u}) = 0. \tag{S2.7}$$

我们将平方梯度自由能对应的化学势写为 $\mu = \mu_h(n) - \kappa\nabla^2 n$，其中 $\mu_h$是均匀贡献，而 $\kappa > 0$ 惩罚密度梯度。因此，被动力密度为$-n\nabla\mu = -n\nabla\mu_h(n) + \kappa n\nabla(\nabla^2 n)$。将此项在线性阶展开于 $n = n_0$ 附近，得到 $-K\nabla\delta n + \kappa n_0\nabla(\nabla^2\delta n)$，其中 $K \equiv(n\partial\mu_h/\partial n)|_{n_0} > 0$。条件 $K > 0$ 确保仅被动贡献不会使均匀态失稳。

我们围绕均匀稳态 $n = n_0$，$\mathbf{u} = 0$ 引入形式为 $n = n_0 + \delta\hat{n}e^{i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}+\omega t}$的微弱扰动，$\mathbf{u} = \delta\hat{\mathbf{u}}e^{i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}+\omega t}$。在线性阶下，根据方程 S2.1 和 S2.7，

$$\omega\delta\hat{n} + in_0\boldsymbol{k}\cdot\delta\hat{\mathbf{u}} = 0, \tag{S2.8}$$

$$-\eta k^2\delta\hat{\mathbf{u}} + i\eta_R\Omega\epsilon\boldsymbol{k}\delta\hat{n} - \Gamma\delta\hat{\mathbf{u}} - iK\boldsymbol{k}\delta\hat{n} - i\kappa n_0 k^2\boldsymbol{k}\delta\hat{n} - \eta_o k^2\epsilon\delta\hat{\mathbf{u}} - \zeta\boldsymbol{k}(\boldsymbol{k}\cdot\delta\hat{\mathbf{u}}) = 0. \tag{S2.9}$$

为 简单起见，我们设定 $\zeta = 0$。动量方程随后可写成矩阵形式 s

$$\begin{pmatrix} -\eta k^2 - \Gamma & -\eta_o k^2 \\ \eta_o k^2 & -\eta k^2 - \Gamma \end{pmatrix}\delta\hat{\mathbf{u}} + \begin{pmatrix} -iK - i\kappa n_0 k^2 & i\eta_R\Omega \\ -i\eta_R\Omega & -iK - i\kappa n_0 k^2 \end{pmatrix}\begin{pmatrix} k_x \\ k_y \end{pmatrix}\delta\hat{n} = 0. \tag{S2.10}$$

求解速度扰动可得

$$\delta\hat{\mathbf{u}} = \frac{1}{(\eta k^2+\Gamma)^2 + \eta_o^2 k^4}\begin{pmatrix} -\eta k^2 - \Gamma & \eta_o k^2 \\ -\eta_o k^2 & -\eta k^2 - \Gamma \end{pmatrix}\begin{pmatrix} (iK + i\kappa n_0 k^2)k_x - i\eta_R\Omega k_y \\ i\eta_R\Omega k_x + (iK + i\kappa n_0 k^2)k_y \end{pmatrix}\delta\hat{n}. \tag{S2.11}$$

将式S2.11 代入式 S2.8 可得色散关系

$$\omega = n_0\frac{\eta_o\Omega\eta_R k^4 - (\eta k^2+\Gamma)(Kk^2 + \kappa n_0 k^4)}{(\eta k^2+\Gamma)^2 + \eta_o^2 k^4}. \tag{S2.12}$$

当 $\omega(k) > 0$ 对任意物理波数成立时，均匀态是不稳定的。由于式S2.12的分母严格为正，失稳条件由其分子决定，即要求

$$\eta_R\eta_o\Omega > (\sqrt{\eta K} + \sqrt{\kappa n_0\Gamma})^2. \tag{S2.13}$$

在 $\kappa = 0$ 的极限下， 公式 S2.13 化简为 $\eta_R\eta_o\Omega > \eta K$，与参考文献 [S8中的失稳条件一致 ].

### B. 可压缩连续介质模拟

基于公式 S2.1和S2.2中介绍的过阻尼体相模型，我们在周期性盒状区域中实现了可压缩单组分手性活性流体的连续介质模拟。模拟初始于近似均匀态，其平均数密度为 $n_0 = 0.5$ ，并加入振幅为 0.01 的空间随机噪声。对于非线性动力学，我们保留了上文引入的奇黏度、剪切黏度和体黏度的线性密度依赖性。

我们使用特征密度 $n_0$、特征长度 $\lambda$和特征速度 $u_0$对力平衡方程进行无量纲化。将特征尺度为 $\eta u_0/\lambda^2$的黏性力（其中 $\eta$ 表示参考密度为 1 时的黏度）与尺度为 $\Gamma u_0$的基底摩擦平衡，可得 $\lambda = \sqrt{\eta/\Gamma}$；将这些项与尺度为$\eta_R\Omega n_0/\lambda$的活性扭矩力平衡，则可得$u_0 = \eta_R\Omega n_0/\sqrt{\eta\Gamma}$。因此，相应的特征时间尺度为 $\tau_0 = \lambda/u_0 = \eta/(\eta_R\Omega n_0)$。在模拟中，我们设定 $\lambda = 0.1$ 和 $u_0 = 1$，使得 $\tau_0 = 0.1$，并在 128×128 网格上离散化该区域。我们采用基于理想混合熵的简单自由能模型， $f(n) = A[\frac{n}{\bar{n}}\ln\frac{n}{\bar{n}} + (1-\frac{n}{\bar{n}})\ln(1-\frac{n}{\bar{n}})],$，其中设无量纲比 $A/\eta_R\Omega n_0 = 1$,而 $\bar{n} = 1$ 为允许的最高密度。在这些尺度及其他所有无量纲参数固定的情况下，图 S4 中变化的参数是奇黏度与剪切黏度之比 $\eta_o/\eta$，其数值标示在各面板中。

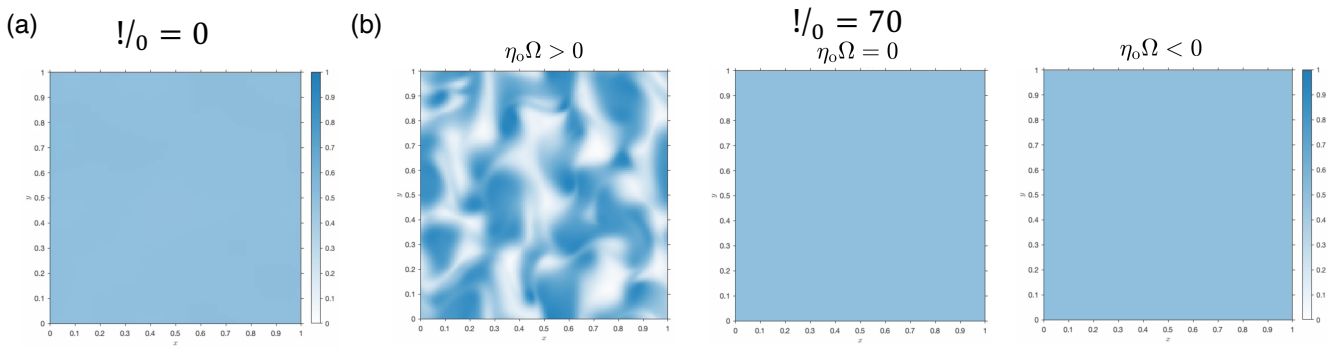


图 S4。**单组分体相稳定性的可压缩连续介质模拟。（a）**在 $t/\tau_0 = 0$ 时的初始条件，由平均密度为 $n_0 = 0.5$ 的均匀态和振幅为 0.01 的空间白噪声组成。**（b）**在 $t/\tau_0 = 70$ 时、针对 $\eta_o/\eta = 2$、0 和 $-2$ 的密度场，分别对应于逆时针 $\Omega > 0$ 约定下的 $\eta_o\Omega > 0$、$\eta_o\Omega = 0$ 和 $\eta_o\Omega < 0$。$\eta_o/\eta = 2$ 情形会发展出体相不稳定性，而 $\eta_o/\eta = 0$ 和 $-2$ 情形保持均匀。色标表示数密度 $n$，范围为 0 到 1。

图S1 中的基于智能体的模拟表明，相同的过阻尼手性旋转体构成的单组分集合不会出现体密度不稳定性。这一行为与方程S2.13中的失稳条件一致，同时也与图S3 和正文图1中的 Green–Kubo测量所得奇黏度的符号一致。按照我们的约定，逆时针自旋对应 $\Omega > 0$。在过阻尼状态下，测得的奇黏度与 $\Omega$ 符号相反，因此 $\eta_o\Omega < 0$，失稳判据因而无法满足。为说明这一符号的作用，图S4 比较了在其他所有无量纲参数保持不变时，$\eta_o/\eta = 2$、0 和 $-2$对应的非线性演化。对于 $\Omega > 0$，它们分别对应正、零和负的 $\eta_o\Omega$。当 $\eta_o\Omega = 2$时可观察到体相不稳定性，而当 $\eta_o\Omega = 0$ 和 $-2$时，均匀态保持稳定。

单组分体相模型与正文中所报告的奇黏度符号反转（即在过阻尼极限下 $\eta_o\Omega < 0$）共同解释了图 S1 所示的过阻尼单组分基于智能体的模拟中为何不存在体相不稳定性。

## S3. 自由表面界面模型

为讨论第S4节中两个反向旋转的同手性畴之间界面的稳定性，我们考虑一个更简单的情形：均匀密度恒定、因而不可压缩的同手性畴与真空之间的界面[S7]。分析基于第S2.1 和S2.2 式中引入的单组分连续介质模型，并取不可压缩极限。我们取流体内部的密度和旋转频率在空间中均匀分布，而外部均为零。因此，与密度相关的输运系数在流体内部取恒定的体值 $\eta$ 和 $\eta_o$，在其他区域则消失。不可压缩性消除了体黏度的贡献。为单独考察奇黏度的作用，界面不具有被动表面张力。

### A. 线性稳定性分析

应用第S2节中的相同本构关系，不可压缩手性流体在区域 $D$ 中的控制方程为

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0, \tag{S3.1}$$

$$\eta\nabla^2\mathbf{u} + \eta_o\epsilon\nabla^2\mathbf{u} + \eta_R\epsilon\nabla\Omega - \nabla p - \Gamma\mathbf{u} = 0. \tag{S3.2}$$

区域内的密度保持恒定。由自由能 $-n\nabla\mu$ 产生的被动力被$-\nabla p$取代，其中 $p$ 是压力，即用于强制满足不可压缩条件 $\nabla \cdot \mathbf{u} = 0$的拉格朗日乘子。恒定的体密度已吸收到 $\eta_R$的定义中。对于空间均匀的 $\Omega$，力矩项在体相中消失，但仍存在于界面力平衡中。

利用不可压缩性，我们得到 $\epsilon\nabla^2\mathbf{u} = \nabla\omega$，其中 $\omega = \epsilon_{ij}\partial_i u_j$ 是涡量。因此，压力项和奇黏性项可以改写为 $-\nabla p + \eta_o\nabla\omega = -\nabla(p - \eta_o\omega)$。定义 $q = p - \eta_o\omega$后，体相方程可简化为 $\eta\nabla^2\mathbf{u} - \nabla q - \Gamma\mathbf{u} = 0$。对力平衡取散度和旋度可得

$$\nabla^2 q = 0, \qquad \lambda^2\nabla^2\omega - \omega = 0, \tag{S3.3}$$

其中 $\lambda = \sqrt{\eta/\Gamma}$ 是流体动力学屏蔽长度。因此，对于空间均匀的 $\eta_o$，奇黏度从体相流动方程中消失，并仅通过界面力平衡进入动力学，如文献 [S7]所示。

应力张量遵循方程 S2.3-S2.5 ，因此可写为

$$\sigma_{ij} = -q\delta_{ij} + \eta_R\epsilon_{ij}\Omega + \eta(\partial_i u_j + \partial_j u_i) + 2\eta_o\epsilon_{jk}\partial_k u_i. \tag{S3.4}$$

At th在区域 $\partial D$ 的表面上，我们忽略表面张力并施加应力平衡

$$\boldsymbol{\sigma}\cdot\hat{\boldsymbol{n}}|_{\partial D} = 0, \tag{S3.5}$$

以及 区域形状的运动学边界条件，该条件由 $f(x,\ y,\ t) =$ 描述 0:

$$\frac{Df}{Dt} = \partial_t f + \mathbf{u}\cdot\nabla f = 0. \tag{S3.6}$$

我们用 $D = \{(x,\ y)|y < g(x,\ t)\}$描述手性流体所占据的区域，界面上方为真空$y = g(x,\ t)$。因此，方程 S3.6 变为 $\partial_t g = u_y - u_x\partial_x g$。对于未受扰动的平坦界面 $y = g(x,\ t) = 0$，稳态流沿 $x$ 具有平移不变性，并呈现以下形式

$$\bar{\boldsymbol{u}}(y) = (\bar{u}(y), 0), \qquad \bar{u}(y) = -\frac{\eta_R}{\eta}\Omega\lambda e^{y/\lambda}, \tag{S3.7}$$

其中，我们用上横线表示基态。随后引入一个小的界面扰动，$\tilde{g}(x,\ t) = \hat{}ge^{ikx+st}$，并围绕平坦界面对边界力平衡条件进行线性化，得到 $\tilde{\boldsymbol{\sigma}}(x,\ 0)\hat{}\boldsymbol{y} = \tilde{g}_x(x)\,\bar{\boldsymbol{\sigma}}(x,\ 0)\hat{}\boldsymbol{x} - \tilde{g}(x)\bar{\boldsymbol{\sigma}}_y(x,\ 0)\hat{}\boldsymbol{y}$，其中，我们用波浪号表示一阶扰动，并用下标表示偏导数。在下面的推导中，我们分别用 $\tilde{u}$和 $\tilde{v}$ 表示速度扰动 $\delta\mathbf{u}$ 的 $x$ 和 $y$ 分量。利用基态解，一阶扰动的边界力平衡条件中的 $x$ 和 $y$ 分量可化为

$$\begin{aligned}\eta\tilde{u}_y + \eta\tilde{v}_x - 2\eta_o\tilde{u}_x &= 2\tilde{g}_x\eta_o\bar{u}_y - \tilde{g}\eta\bar{u}_{yy},\\ -\tilde{q} - 2\eta_o\tilde{v}_x + 2\eta\tilde{v}_y &= \tilde{g}_x(-\eta_R\Omega + \eta\bar{u}_y),\end{aligned}$$

其中所有量均取值于 $y = 0$。注意，下标表示偏导数。一阶扰动的方程 S3.1-S3.2 的一般解为

$$\begin{aligned}\tilde{q} &= Ae^{|k|y}e^{ikx+st},\\ [\tilde{u},\tilde{v}] &= \left[-\frac{ik}{\Gamma}Ae^{|k|y} + Be^{\chi y}, -\frac{|k|}{\Gamma}Ae^{|k|y} - \frac{ik}{\chi}Be^{\chi y}\right]e^{ikx+st}.\end{aligned}$$

其中 $\chi = \sqrt{k^2 + \lambda^{-2}}$、A 和 B 是待由边界条件确定的未知系数。代入线性化的边界力平衡条件可得

$$\begin{aligned}\frac{-2ik|k|\eta - 2k^2\eta_o}{\Gamma}A + \left(\eta\chi + \eta\frac{k^2}{\chi} - 2ik\eta_o\right)B &= \frac{\Omega\eta_R}{\eta}\left(-2ik\eta_o + \frac{\eta}{\lambda}\right)\hat{g},\\ \left(-1 + \frac{2ik|k|\eta_o - 2\eta k^2}{\Gamma}\right)A + \left(-\frac{2\eta_o k^2}{\chi} - 2ik\eta\right)B &= (-2ik\eta_R\Omega)\,\hat{g}.\end{aligned} \tag{S3.8}$$

线性化运动学边界条件为 $\tilde{g}_t = \tilde{v}_y - \bar{u}\tilde{g}_x$ 给出

$$\left(s - ik\frac{\eta_R\Omega}{\eta}\lambda\right)\hat{g} = -\frac{|k|}{\Gamma}A - \frac{ik}{\chi}B. \tag{S3.9}$$

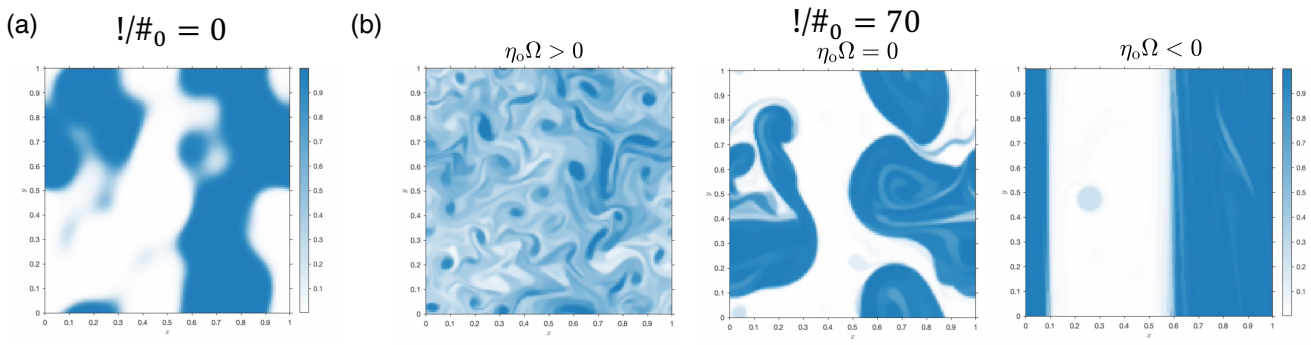


图 S5。**单组分界面稳定性的不可压缩连续介质模拟。（a）**在 $t/\tau_0 = 0$ 时的初始构型，由高斯随机场和高斯协方差核生成。（**b**）在 $t/\tau_0 = 70$ 时、对于 $\eta_o/\eta = 2$、0 和 $-2$ 的密度场，分别对应于 $\Omega\ \eta_o、\ > 0\Omega\ \eta_o、\ = 0\Omega\ \eta_o$ 和 $< 0$，其中 $\Omega > 0$。色标表示密度 $n$，范围为 0 至 1。

结合方程S3.8-S3.9 可得色散关系 $s(k)$。在色散关系的长波极限和短波极限下，

$$\mathrm{Im}[s(k)] \sim \begin{cases} \frac{2\eta_R\Omega}{\eta}(k\lambda)^3 & \text{if } |k\lambda| \ll 1 \\ \frac{\eta_R\Omega}{\eta}k\lambda & \text{if } |k\lambda| \gg 1 \end{cases}$$

$$\mathrm{Re}[s(k)] \sim \begin{cases} \frac{2\eta_o\eta_R\Omega}{\eta^2}(|k|\lambda)^3 & \text{if } |k\lambda| \ll 1 \\ \frac{\eta_R\eta_o\Omega}{\eta^2+\eta_o^2} & \text{if } |k\lambda| \gg 1 \end{cases}$$

因此，增长率的正负由 $\eta_o\Omega$ 控制： $\eta_o\Omega > 0$ 会使自由表面失稳，而 $\eta_o\Omega\ < 0$会抑制界面扰动。

### B. 不可压缩连续介质模拟

现在，我们通过在不可压缩极限下求解连续介质模拟中的连续介质方程 Eq.S3.1-S3.2 来研究过阻尼单组分手性流体的非线性界面动力学。我们使用与上文可压缩模拟相同的特征长度和时间尺度 $\lambda$ 以及 $u_0$，并在周期性区域上采用相同的 128×128 网格。初始密度场由空间相关随机场生成，其相关长度为 $1.5\lambda$，并映射到有界区间 $0 \le n \le 1$。这样便产生了一个初始分相构型：在奇黏性流体中， $n$ 为 1；在真空中， $n$为 0，二者之间具有不规则界面。这使我们能够研究黏性流体界面的演化。在求解密度场的平流方程时，为保持密度梯度较大处界面的锐利性，我们采用 THINC（双曲正切界面捕捉）方法捕捉界面运动，并抑制界面处的数值弥散。

在其他无量纲参数均保持不变的情况下，图 S5 比较了 $\eta_o/\eta = 2$、0 和 $-2$在 $t/\tau_0 = 70$时的非线性演化。在我们的模拟中，当 $\Omega > 0$时，这些情况分别对应于 $\eta_o\Omega\ > 0$、$\eta_o\Omega\ = 0$和 $\eta_o\Omega\ < 0$。这三种情况呈现出定性上截然不同的界面动力学。当 $\eta_o/\eta = 2$时，界面变得不稳定，并形成更精细的互联结构。当 $\eta_o/\eta = 0$时，界面保持弯曲并持续演化，同时区域继续形变和旋转。相比之下，当 $\eta_o/\eta = -2$时，界面变形受到强烈抑制，系统趋向于弛豫至板状构型，界面几乎呈平面。后一种 $\eta_o\Omega\ < 0$的情况对应于过阻尼状态下通过 Green–Kubo测量得到的奇黏度符号。

## S4. 二元混合物的界面稳定性分析

接下来，我们将单组分连续介质模型推广至具有密度 $n_\alpha$ 和速度场 $\mathbf{u}_\alpha$的二元手性活性混合物，其中 $\alpha \in \{A, B\}$ 表示两种物种。将方程 S2.1 和 S2.2 推广至双组分系统，

$$\partial_t n_\alpha + \nabla \cdot (n_\alpha \mathbf{u}_\alpha) = 0, \tag{S4.1}$$

$$\nabla \cdot (\sigma_{v,\alpha} + \sigma_{o,\alpha} + \sigma_{\tau,\alpha}) - n_\alpha \nabla \mu_\alpha - \Gamma_\alpha \mathbf{u}_\alpha - \Gamma_f(\mathbf{u}_\alpha - \mathbf{u}_\beta) = 0, \tag{S4.2}$$

其中 $\beta \neq \alpha$。黏性应力、奇黏性应力和力矩应力具有与第S2节中相同的本构形式，并分别应用于每个组分。化学势 $\mu_\alpha = \delta F/\delta n_\alpha$ 由二元自由能 $F[n_A, n_B]$ 得到，并决定被动热力学力密度。与 $\Gamma_f$成正比的项表示种间阻力，并抑制两个组分之间的相对运动。在正文中，我们指出，在相分离的后期阶段，两个组分几乎完全分 segregated 成互补畴，而密度仍近似均匀。本节聚焦于两个组分均不可压缩且区域之间存在尖锐界面的极限，并对界面的稳定性进行完整的模拟与分析。

### A. 体相模型与边界条件

为分析界面稳定性，我们考虑这样一种后期构型：两个物种被尖锐界面充分分隔。远离界面时，每个相均由单一组分主导，且具有均匀密度。我们将每个体相视为不可压缩单组分手性流体，如公式S3.1 和S3.2所示。

我们考虑一个分隔上下两相的水平界面，分别将其记为 $+$和 $-$，并写作

$$\mathbf{u}(x,y,t) = \begin{cases} \mathbf{u}^+(x,y,t) & \text{if } y > g(x,t) \\ \mathbf{u}^-(x,y,t) & \text{if } y < g(x,t) \end{cases}, \qquad \Omega = \begin{cases} \Omega^+ & \text{if } y > g(x,t) \\ \Omega^- & \text{if } y < g(x,t) \end{cases}.$$

这里，$g(x,\ t)$表示界面高度。界面为 $\partial D = \{(x,\ y)|f(x,\ y,\ t) = 0\}$，其中 $f(x,\ y,\ t) = y - g(x,\ t)$。我们允许 $|\Omega^+| \neq |\Omega^-|$，因此分析并不局限于严格的反向旋转相，不过我们假设剪切黏度 $\eta$ 处处相同。在每一相内，$\Omega^\pm$ 和 $\eta_o^\pm$ 均为空间均匀的。定义$q^\pm = p^\pm - \eta_o^\pm \omega^\pm$后，体相方程化为

$$\nabla \cdot \mathbf{u}^\pm = 0, \tag{S4.3}$$

$$\eta \nabla^2 \mathbf{u}^\pm - \nabla q^\pm - \Gamma \mathbf{u}^\pm = 0. \tag{S4.4}$$

因此，

$$\nabla^2 q^\pm = 0, \qquad \lambda^2 \nabla^2 \omega^\pm - \omega^\pm = 0, \tag{S4.5}$$

其中$\lambda = \sqrt{\eta/\Gamma}$是上文定义的流体动力学屏蔽长度。与单组分情形一样，在不可压缩体相中，奇黏度被吸收到有效压力中，并且只通过界面应力发挥作用。每一相中的应力为

$$\sigma_{ij}^\pm = -q^\pm \delta_{ij} + \eta_R \epsilon_{ij} \Omega^\pm + \eta(\partial_i u_j^\pm + \partial_j u_i^\pm) + 2\eta_o^\pm \epsilon_{jk} \partial_k u_i^\pm. \tag{S4.6}$$

为单独研究手性应力对界面稳定性的影响，我们忽略毛细应力，因此界面应力条件简化为牵引力连续性

$$(\boldsymbol{\sigma}^+ - \boldsymbol{\sigma}^-) \cdot \hat{\boldsymbol{n}}|_{\partial D} = 0, \tag{S4.7}$$

以及速度连续性

$$\tilde{\mathbf{u}}^+|_{\partial D} = \tilde{\mathbf{u}}^-|_{\partial D} = \mathbf{u}|_{\partial D}, \tag{S4.8}$$

以及描述边界演化的运动学条件 $\partial_t f + \mathbf{u} \cdot \nabla f = 0$。

### B. 稳态解

我们首先确定具有平面界面的稳态、未受扰动的两相基态，并以此为基础进行界面稳定性分析。我们考虑两个半无限半空间，它们由位于 $y=0$ 处的平坦界面分隔。基流沿界面具有平移不变性且不随时间变化，速度场在 $y\to\pm\infty$处趋于零。结合体相方程，这些条件给出远离界面呈指数衰减的解。与第 S5 节类似，我们用帽号表示基态流 $\mathbf{u}^{\pm}(x,\ y)=(\bar{u}^{\pm}(x),\ 0)$。

对于平坦的稳态界面，运动学边界条件自动满足，而应力边界条件则化简为

$$\eta_R(\Omega^+-\Omega^-)-\eta(\omega^+-\omega^-)=0,\qquad -(p^+-p^-)+(\eta_o^+\omega^+-\eta_o^-\omega^-)=0. \tag{S4.9}$$

这些条件由基态涡量解满足

$$\bar{\omega}^+(y)=\frac{\eta_R}{2\eta}(\Omega^+-\Omega^-)e^{-y/\lambda},\qquad \bar{\omega}^-(y)=\frac{\eta_R}{2\eta}(\Omega^--\Omega^+)e^{y/\lambda}, \tag{S4.10}$$

以及相应的切向速度解

$$\bar{u}^+(y)=\frac{\eta_R}{2\eta}(\Omega^+-\Omega^-)\lambda e^{-y/\lambda},\qquad \bar{u}^-(y)=\frac{\eta_R}{2\eta}(\Omega^+-\Omega^-)\lambda e^{y/\lambda}. \tag{S4.11}$$

作为一致性检验，当 $\Omega^-=-\Omega^+$时，对应于具有镜像对称性的构型，稳态速度场 $\bar{u}$ 化简为手性流体邻接真空时的已知解 [S7]。这种对应关系可以通过镜像法来理解：在自由表面问题中，用界面的镜像流体替代界面的另一侧，以满足自由滑移边界条件 [S10]。

### C. 线性化体相方程与边界条件

我们允许两个手性体相具有不同的奇黏度 $\eta_o^{\pm}$。在上述平坦界面上引入一个无穷小、均值为零的扰动$y=\tilde{g}(x,\ t)=\hat{}ge^{ikx+st}$。我们使用与第 S5 节相同的符号。我们用 $\tilde{u}$ 和 $\tilde{v}$ 分别表示受扰速度的 $x$ 和 $y$ 分量，用上横线表示基态量，用波浪号表示一阶扰动。受扰速度、涡量、应力和压力为：

$$\begin{aligned}[u^{\pm}(x,y),v^{\pm}(x,y)]&=[\bar{u}^{\pm}+\tilde{u}^{\pm}(x,y),\tilde{v}^{\pm}(x,y)],\\ \omega^{\pm}&=\bar{\omega}^{\pm}(y)+\tilde{\omega}^{\pm}(x,y),\\ \boldsymbol{\sigma}^{\pm}&=\bar{\boldsymbol{\sigma}}^{\pm}(y)+\tilde{\boldsymbol{\sigma}}^{\pm}(x,y),\\ q^{\pm}&=\tilde{q}^{\pm}(x,y).\end{aligned}$$

接下来，我们将界面 边界条件线性化。将应力平衡方程线性化至 $\epsilon$ 的一阶，得到 ：

$$[\tilde{\boldsymbol{\sigma}}^+(x,0)-\tilde{\boldsymbol{\sigma}}^-(x,0)]\hat{\boldsymbol{y}}=\tilde{g}_x(x)[\bar{\boldsymbol{\sigma}}^+(0)-\bar{\boldsymbol{\sigma}}^-(0)]\hat{\boldsymbol{x}}-\tilde{g}(x)[\bar{\boldsymbol{\sigma}}_y^+(0)-\bar{\boldsymbol{\sigma}}_y^-(0)]\hat{\boldsymbol{y}},$$

其中，下标表示偏导数。等价地，

$$\begin{aligned}\begin{bmatrix}\tilde{\sigma}_{xy}^+(x,0)-\tilde{\sigma}_{xy}^-(x,0)\\ \tilde{\sigma}_{yy}^+(x,0)-\tilde{\sigma}_{yy}^-(x,0)\end{bmatrix}&=\tilde{g}_x(x)\begin{bmatrix}\bar{\sigma}_{xx}^+(0)-\bar{\sigma}_{xx}^-(0)\\ \bar{\sigma}_{yx}^+(0)-\bar{\sigma}_{yx}^-(0)\end{bmatrix}\\ &-\tilde{g}(x)\partial_y\begin{bmatrix}\bar{\sigma}_{xy}^+(0)-\bar{\sigma}_{xy}^-(0)\\ \bar{\sigma}_{yy}^+(0)-\bar{\sigma}_{yy}^-(0)\end{bmatrix}.\end{aligned}$$

鉴于 $\tilde{\omega}^{\alpha}=\partial_x\tilde{v}^{\alpha}-\partial_y\tilde{u}^{\alpha}$和 $\bar{\omega}^{\alpha}=-\partial_y\bar{u}^{\alpha}$，简化后的法向和切向应力边界方程为

$$\eta(\tilde{u}_y^+-\tilde{u}_y^-)+\eta(\tilde{v}_x^+-\tilde{v}_x^-)-2(\eta_o^+\tilde{u}_x^+-\eta_o^-\tilde{u}_x^-)=2\tilde{g}_x(\eta_o^+\bar{u}_y^+-\eta_o^-\bar{u}_y^-)-\tilde{g}\eta(\bar{u}_{yy}^+-\bar{u}_{yy}^-), \tag{S4.12}$$

$$-(\tilde{q}^+-\tilde{q}^-)-2(\eta_o^+\tilde{v}_x^+-\eta_o^-\tilde{v}_x^-)+2\eta(\tilde{v}_y^+-\tilde{v}_y^-)=\tilde{g}_x[-\eta_R(\Omega^+-\Omega^-)+\eta(\bar{u}_y^+-\bar{u}_y^-)]. \tag{S4.13}$$

在受扰界面两侧，线性化运动学边界条件变为 $\tilde{v}^-(x,\ 0)=\tilde{g}_t+\tilde{g}_x\bar{u}^-(0)$。法向和切向速度连续方程 $\mathbf{u}^+|_{\partial D}=\mathbf{u}^-|_{\partial D}$ 在线性化后给出：

$$\tilde{u}^+(x,0)+\tilde{g}\partial_y\bar{u}^+(0)=\tilde{u}^-(x,0)+\tilde{g}\partial_y\bar{u}^-(0), \tag{S4.14}$$

$$\tilde{v}^+(x,0)=\tilde{v}^-(x,0). \tag{S4.15}$$

### D. 界面色散关系

由于系统沿 $x$ 方向具有平移不变性，速度和 $q$ 的一阶扰动可写成 $\tilde{u}(x,\ y,\ t) = \hat{u}(y)e^{ikx+st}$、$\tilde{v}(x,\ y,\ t) = \hat{v}(y)e^{ikx+st}$、$\tilde{q}(x,\ y,\ t) = \hat{q}(y)e^{ikx+st}$ 的形式。将线性化体相方程投影到波矢为 $k$ 的傅里叶模态上，可得

$$\begin{gathered}\eta(\partial_{yy}-k^2)\left[\hat{u},\hat{v}\right]^{\pm}-\Gamma\left[\hat{u},\hat{v}\right]^{\pm}-\left[ik,\partial_y\right]\hat{q}^{\pm}=\mathbf{0},\\ ik\hat{u}^{\pm}+\partial_y\hat{v}^{\pm}=0,\\ (\partial_{yy}-k^2)\hat{q}^{\pm}=0.\end{gathered}$$

求解上述体相方程，使速度场在 $\pm\infty$ 处为零，可得 $\hat{u}(y)$、$\hat{v}(y)$ 和 $\hat{q}(y)$

$$\tilde{q}^{+}=A^{+}e^{-|k|y}e^{ikx+st}, \tag{S4.16}$$

$$\tilde{q}^{-}=A^{-}e^{|k|y}e^{ikx+st}, \tag{S4.17}$$

$$[\tilde{u},\tilde{v}]^{+}=\left[-\frac{ik}{\Gamma}A^{+}e^{-|k|y}+B^{+}e^{-\chi y},\frac{|k|}{\Gamma}A^{+}e^{-|k|y}+\frac{ik}{\chi}B^{+}e^{-\chi y}\right]e^{ikx+st}, \tag{S4.18}$$

$$[\tilde{u},\tilde{v}]^{-}=\left[-\frac{ik}{\Gamma}A^{-}e^{|k|y}+B^{-}e^{\chi y},-\frac{|k|}{\Gamma}A^{-}e^{|k|y}-\frac{ik}{\chi}B^{-}e^{\chi y}\right]e^{ikx+st}, \tag{S4.19}$$

其中 $\chi=\sqrt{k^2+\lambda^{-2}}$。由于基态界面速度为 $\bar{u}_0=\bar{u}^{\pm}(0)=\frac{\eta_R}{2\eta}(\Omega^{+}-\Omega^{-})\lambda$。运动学边界条件变为

$$(s+ik\bar{u}_0)\hat{g}=-\frac{|k|}{\Gamma}A^{-}-\frac{ik}{\chi}B^{-}=\frac{|k|}{\Gamma}A^{+}+\frac{ik}{\chi}B^{+}.$$

将体相解方程 S4.16 代入界面力平衡方程 S4.12和速度连续性方程 S4.14，并将其与运动学边界条件方程 S4D结合，可得到一个线性方程组

$$\begin{bmatrix}\frac{2(i\eta k|k|-\eta_o^{+}k^2)}{\eta}\lambda^2 & \frac{2(i\eta k|k|+\eta_o^{-}k^2)}{\eta}\lambda^2 & -\frac{\eta k^2}{\chi}-2ik\eta_o^{+}-\eta\chi & -\frac{\eta k^2}{\chi}+2ik\eta_o^{-}-\eta\chi & 2ik\frac{\bar{u}_0}{\lambda}(\eta_o^{+}+\eta_o^{-})\\ -\frac{2(i\eta_o^{+}k|k|+\eta k^2)}{\eta}\lambda^2-1 & \frac{2(\eta k^2-i\eta_o^{-}k|k|)}{\eta}\lambda^2+1 & -2\eta ik+\frac{2k^2}{\chi}\eta_o^{+} & 2\eta ik+\frac{2k^2}{\chi}\eta_o^{-} & \frac{4ik\eta\bar{u}_0}{\lambda}\\ \frac{|k|}{\Gamma} & \frac{|k|}{\Gamma} & \frac{ik}{\chi} & \frac{ik}{\chi} & 0\\ -\frac{ik}{\Gamma} & \frac{ik}{\Gamma} & 1 & -1 & -\frac{2\bar{u}_0}{\lambda}\\ 0 & \frac{|k|}{\Gamma} & 0 & \frac{ik}{\chi} & s+ik\bar{u}_0\end{bmatrix}\begin{bmatrix}A^{+}\\A^{-}\\B^{+}\\B^{-}\\\hat{g}\end{bmatrix}=0.$$

令矩阵的行列式为零，即可得到界面色散关系。其在长波和短波极限下的渐近解析形式为

$$\mathrm{Im}[s(k)]\sim\begin{cases}-\frac{\eta_R(\Omega^{+}-\Omega^{-})}{4\eta}(\lambda k)^3 & \text{if } |k\lambda|\ll 1\\ -\bar{u}_0k+\frac{4\eta^2\bar{u}_0k}{\left[4\eta^2+(\eta_o^{+}-\eta_o^{-})^2\right]\lambda|k|} & \text{if } |k\lambda|\gg 1\end{cases}$$

$$\mathrm{Re}[s(k)]\sim\begin{cases}\frac{\eta_R(\Omega^{+}-\Omega^{-})(\eta_o^{+}-\eta_o^{-})}{2\eta^2}(\lambda|k|)^3 & \text{if } |k\lambda|\ll 1\\ \frac{2\eta(\eta_o^{+}-\eta_o^{-})\bar{u}_0}{\lambda\left[4\eta^2+(\eta_o^{+}-\eta_o^{-})^2\right]} & \text{if } |k\lambda|\gg 1\end{cases}$$

完整色散关系的虚部关于 $k$ 为奇函数。由于相速度 $c\equiv v_{\mathrm{ph}}=-\mathrm{Im}[s(k)]/k$，具有 $\pm k$ 的模态会沿同一方向传播，对应于单向界面波。

现在我们专门讨论两个完全反向旋转的相 $\Omega^{+}=-\Omega^{-}$，其奇黏度大小相等、方向相反$\eta_o^{+}=-\eta_o^{-}$。在这种情况下，长波长增长率与两个相中共有的乘积 $\eta_o^{\alpha}\Omega^{\alpha}$ 成正比。因此，$\eta_o^{\alpha}\Omega^{\alpha}<0$ 会产生负增长率并稳定界面，而 $\eta_o^{\alpha}\Omega^{\alpha}>0$ 则会使其不稳定。在过阻尼状态下通过格林–久保方法测得的符号，因此对应于稳定分支。当 $\Omega^{+}=-\Omega^{-}$ 时，系统具有镜像对称，此时不稳定性增长率在长波极限和短波极限下均与单组分自由表面的结果相同。长波长下，二元界面处的传播率因第二种手性流体的存在而降低；短波长下则产生频率偏移，同时保持 $k$中的相同奇宇称。

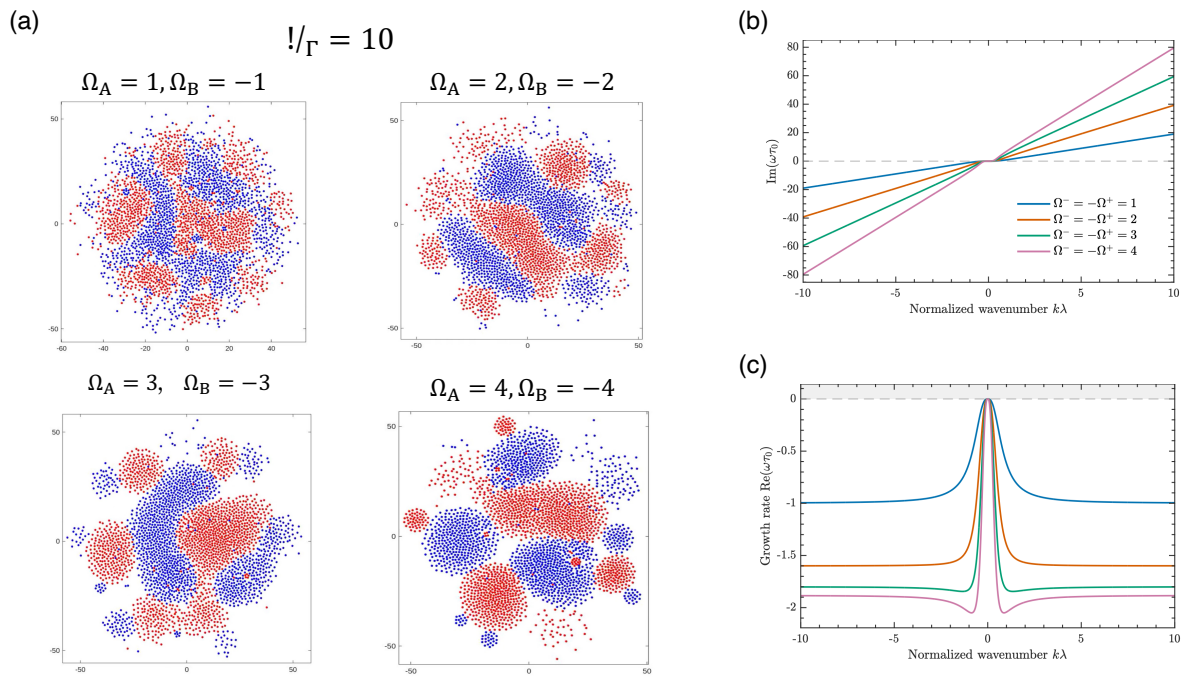


图 S6。**旋转频率对二元手性混合物界面动力学的影响**。（**a**）在 $t/\tau_\Gamma = 10$ 下，针对 $|\Omega| = 1$、2、3、4进行基于智能体的模拟，结果显示，随着 $|\Omega|$增加，反向旋转的旋转体之间的界面逐渐变得更加清晰，相分离也更加明显。（**b**）界面解析色散关系的虚部 Im$\omega$，显示对于所有 $|\Omega|$均存在单向传播。（**c**）增长率 Re$\omega$，随着 $|\Omega|$ 增加而变得更加负，表明界面稳定性增强。该趋势与面板（a）中的基于智能体的模拟结果一致。

为与基于智能体的模拟进行比较，我们将上半平面指定为物种 $B$，其沿顺时针方向旋转；将下半平面指定为物种A，其沿逆时针方向旋转。将逆时针旋转定义为正方向后，有 $\Omega^+ = \Omega_B < 0$ 和 $\Omega^- = \Omega_A > 0$。因此，所得色散关系预言了一个具有沿 $-x$ 方向单向传播的稳定界面，这与基于智能体的模拟中观察到的晚期动力学一致。

对于主文图 2 中的色散曲线，我们设定 $\eta = \Gamma = 1$、 $\eta_R = 2$、$\Omega^+ = -1$和 $\Omega^- = 1$，使得$\lambda = \sqrt{\eta/\Gamma} = 1$。我们为两个反向旋转相赋予大小相等、符号相反的奇黏度，$\eta_o \equiv \eta_o^- = -\eta_o^+$，并在 $\eta_o/\eta = 1$、0。5、$-0.5$、$-1$ 范围内改变归一化奇黏度，以研究奇黏度符号反转对界面稳定性的影响。色散关系在 $0 < k\lambda \leq 5$范围内进行评估。

在图 S6(b-c) 中，我们固定 $\eta_o^+ = -1$ 和 $\eta_o^- = 1$，这与在过阻尼状态下测得的奇黏度符号一致。随后，我们研究增大 $|\Omega|$ 对反向旋转手性流体之间界面波的影响。解析色散关系预测，对于所有 $|\Omega|$，界面波均会单向传播；而随着 $|\Omega|$ 增大，增长率变得越来越负。这一趋势与粒子模拟（图 S6(a)）后期阶段观察到的界面涨落受到更强抑制、粗化加快，以及随着 $|\Omega|$ 增大而两个相分离区域之间接触减少的现象一致。

### E. 不可压缩连续体模拟

我们采用与第S3B节中的自由表面界面模拟相同的无量纲化方法和用于捕捉移动界面的 THINC格式，来模拟不可压缩双流体模型。两个组分具有相同的剪切黏度 $\eta_A = \eta_B \equiv \eta$，以及相同的基底摩擦系数 $\Gamma_A = \Gamma_B \equiv \Gamma$。由于种间摩擦发生在两种物种同时存在时，我们对种间摩擦假设如下的密度依赖性

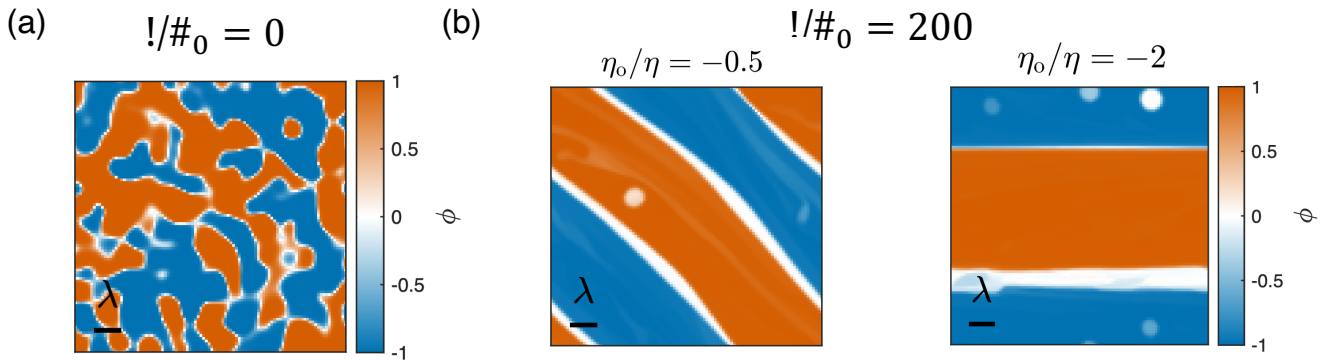


图 S7。**二元界面动力学的不可压缩连续介质模拟。（a）**在 $t/\tau_0 = 0$ 时的初始构型，由具有高斯协方差核的高斯随机场生成。**（b）**在 $t/\tau_0 = 200$ 时、对于 $\Omega > 0$，分别对应 $\eta_o/\eta = -0.5$ 和 $\eta_o/\eta = -2$ 的组分场。色标表示组分 $\phi = (n_A - n_B)/(n_A + n_B)$，取值范围为 $-1$ 至 1，其中 $n_A$ 为逆时针旋转的手性流体的密度，$n_B$ 表示顺时针旋转的手性流体的密度。

系数

$$\Gamma_f(n_A, n_B) = \Gamma_{f0}\frac{n_A n_B}{n_A + n_B}, \tag{S4.20}$$

在 $\Gamma_{f0} n_0/\Gamma = 50$ 的情况下，混合界面区域内的相对运动受到强烈抑制，从而近似实现尖锐界面模型中施加的速度连续条件。在尖锐界面极限下，将两个力平衡方程相加时，种间阻力项相互抵消；对界面两侧的整体力平衡进行积分，可得牵引力连续性。与单组分连续介质模拟一致，黏度取决于粒子数密度，并呈线性关系。为两种物种赋予大小相等、符号相反的自旋频率和奇黏度系数，其中 $\eta_o\Omega < 0$ 对应于过阻尼粒子模拟中测得的符号。

初始条件由空间相关随机组分场生成，其中 $n_B = 1 - n_A$，形成具有不规则界面以及界面附近较大密度梯度的分相构型。如图 S7所示，当 $|\eta_o|/\eta$ 且 $\eta_o\Omega < 0$ 增大时，界面得到稳定，并促进相分离区域发生粗化，这与上述基于智能体的模拟和界面稳定性分析所揭示的后期动力学一致。

### F. 交叉宇称破缺响应的粗粒化起源

在前几节中，界面线性稳定性分析和连续介质模拟表明，对于 $\eta_o\Omega < 0$，当相对滑移受到抑制时，反向旋转组分之间的界面会得到稳定，并且由两种物种形成的宏观定义区域会随时间发生粗化。我们注意到，即使在宏观均匀混合物中，局部组分的涨落仍会在更小的长度尺度上生成富含逆时针（$A$）或顺时针（$B$）旋转体的微畴。于是，一个自然的问题是：当局部结构趋近微观粒子长度尺度时，奇黏度驱动的界面稳定性这一相同的物理机制是否仍然具有相关性，以及其平均效应如何进入宏观混合态的连续介质描述。

有两项观察结果促成了这种联系。首先，在混合区域中观察到相反手性旋转体之间的相对运动受到抑制，这为尖锐界面理论中所采用的速度连续条件提供了局部类比。即使微畴接近粒子长度尺度，协同粒子运动仍会持续，并且局域于界面附近，正如文献 [S11] 所报道的那样。其次，在我们的连续介质理论中，对界面形变的响应本身也是空间局域的。速度场扰动会在远离界面时沿长度尺度 $k^{-1}$ 和 $\chi^{-1} = (k^2 + \lambda^{-2})^{-1} < k^{-1}$衰减，且两种衰减长度均为 $|k|^{-1}$ 的量级（对于 $|k\lambda| \gg 1$）。因此，当我们放大观察微畴时，A 区域与 B 区域之间的边界会在粒子尺寸量级的长度尺度上发生涨落，且该尺度不超过微畴的尺寸；此时，界面涨落便会在界面附近及微畴内部产生相应的局域响应。尽管这并不意味着

微畴尺寸仅为几个粒子大小时，尖锐界面连续理论仍能在该尺度上保持定量准确，但宇称破缺力——即产生奇黏度的微观机制——在这一长度尺度上仍然发挥作用，并将粒子之间的剪切流与法向力耦合起来。在微畴之间的界面附近，对界面涨落的响应是局域的；非线性响应的平均效应是一种能够稳定波动的力，而对无穷小界面扰动的线性响应平均为零。

事实上，如果我们考虑没有 A-B串扰的粗粒化连续模型，根据第 S2A节，$\eta_o\Omega < 0$ 会抑制密度变化。在微畴之间的界面附近，A 粒子会渗入富含 B 的微畴，反之亦然。因此，微畴界面处相互作用产生的跨物种耦合对于相分离至关重要。跨物种耦合的一种可能的微观起源如下。当富含 B 的微畴剪切经过邻近的 A 粒子时，位阻接触会使附近的 A-A对取向产生偏置。由于每个 A-A对中的旋转体会对彼此施加自旋依赖横向力，这种取向偏置会导致 A 中出现与 B 中剪切速率成正比的法向应力差。在粗粒化过程中，这种源于界面附近 A 与 B 之间相互作用的响应力，会将一个组分的剪切流与另一组分的法向应力耦合起来。

总而言之，我们提出如下物理图像。组分涨落会产生局部的 $A$-$B$ 界面，其稳定性由构成手性流体的奇黏性响应控制。我们假设，在这些界面处局部产生的流动所引起的非线性跨物种响应，会在粗粒化后改变混合物的本构关系。在连续介质层面，这一额外响应由宇称破缺系数 $\eta'_o$ 表示，该系数刻画了一个组分对另一组分流动的横向响应。在下一节中，我们将从微观应力中独立测量这一输运系数，考察其对体相稳定性分析的影响，并将所得预测与数值模拟进行比较。

## S5. 二元混合物体相模型与稳定性分析

### A. 二元混合物的连续介质模型

现在，我们将方程 S4.1 和 S4.2 中的双流体模型进行扩展，以纳入两个速度场之间的跨物种黏性耦合。如上文所述，这些有效耦合可能源于对手性混合物中微观区域界面涨落的响应。因此，将方程 S2.3-S2.5 推广为

$$\sigma_{ij,v,\alpha} = \eta_{\alpha\beta}\left(\partial_i u_{j,\beta} + \partial_j u_{i,\beta} - \frac{2}{d}\delta_{ij}\partial_k u_{k,\beta}\right) + \zeta_{\alpha\beta}\delta_{ij}\partial_k u_{k,\beta}, \tag{S5.1}$$

$$\sigma_{ij,o,\alpha} = \eta_{o,\alpha\beta}\left(\epsilon_{ik}\partial_j u_{k,\beta} + \epsilon_{jk}\partial_k u_{i,\beta}\right), \tag{S5.2}$$

$$\sigma_{ij,\tau,\alpha} = \eta_{R,\alpha}\Omega_\alpha n_\alpha \epsilon_{ij}, \tag{S5.3}$$

以纳入跨物种耦合。

对于由反向旋转手性活性流体组成的可压缩等组分二元混合物，我们引入跨物种剪切黏度 $\eta'$ 和横向黏度 $\eta'_o$。以下物理量满足联合宇称与物种交换对称性。对于代表逆时针旋转器的物种 $A$以及代表顺时针旋转子的物种 $B$，我们写作 $\Omega_A = -\Omega_B \equiv \Omega$ 和 $\eta_{o,AA} = -\eta_{o,BB} \equiv \eta_o$, $\eta_{o,AB} = -\eta_{o,BA} = -\eta'_o$。忽略体黏度 $\eta_{\alpha\beta}$后，体相模型变为

$$\partial_t n_A + \nabla\cdot(n_A\mathbf{u}_A) = 0, \tag{S5.4}$$

$$\partial_t n_B + \nabla\cdot(n_B\mathbf{u}_B) = 0, \tag{S5.5}$$

$$\eta\nabla^2\mathbf{u}_A + \eta'\nabla^2\mathbf{u}_B + \eta_R\nabla\cdot(\mathbf{\Omega}n_A) - \Gamma\mathbf{u}_A - n_A\nabla\mu_A + \eta_o\epsilon\nabla^2\mathbf{u}_A - \eta'_o\epsilon\nabla^2\mathbf{u}_B - \Gamma_f(\mathbf{u}_A - \mathbf{u}_B) = 0, \tag{S5.6}$$

$$\eta\nabla^2\mathbf{u}_B + \eta'\nabla^2\mathbf{u}_A - \eta_R\nabla\cdot(\mathbf{\Omega}n_B) - \Gamma\mathbf{u}_B - n_B\nabla\mu_B - \eta_o\epsilon\nabla^2\mathbf{u}_B + \eta'_o\epsilon\nabla^2\mathbf{u}_A - \Gamma_f(\mathbf{u}_B - \mathbf{u}_A) = 0. \tag{S5.7}$$

被动力密度可用化学势表示为 $-n_\alpha\nabla\mu_\alpha$，其中 $\mu_\alpha = \mu_{h,\alpha}(n_A, n_B) - \kappa\nabla^2 n_\alpha$，而 $\mu_{h,\alpha}$ 是均匀贡献。

### B. 二元混合物的体相不稳定性

我们考虑均匀稳态附近形式为 $n_\alpha = n_{0\,\alpha} + \delta\hat{n}_\alpha e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}+st}$ 和 $\mathbf{u} = \mathbf{0} + \delta\hat{\mathbf{u}}e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}+st}$ 的扰动，其中 $s$ 为复增长率。对均匀稳态（$n_{0\,A}$, $n_{0\,B}$）进行线性化得到被动 $\alpha =$,

力密度 $-n_\alpha\nabla\mu_\alpha = -(K_{\alpha\beta}\nabla\delta n_\beta) + \kappa n_{0,\alpha}\nabla(\nabla^2\delta n_\alpha)$至线性阶，其中 $K_{\alpha\beta} = (n_\alpha\partial\mu_{h,\alpha}/\partial n_\beta)|_{(n_{0,A},n_{0,B})}$。我们假设 $K$ 为正定且 $\kappa > 0$，从而被动项不会给均匀态引入热力学不稳定性。

在线性阶，连续性方程和力平衡方程变为

$$s\delta\hat{n}_A + in_{0,A}\boldsymbol{k}\cdot\delta\hat{\mathbf{u}}_A = 0, \tag{S5.8}$$

$$s\delta\hat{n}_B + in_{0,B}\boldsymbol{k}\cdot\delta\hat{\mathbf{u}}_B = 0, \tag{S5.9}$$

$$0 = -\big[(\eta k^2 + \Gamma + \Gamma_f)\mathbb{I} + \eta_o k^2\epsilon\big]\delta\hat{\mathbf{u}}_A - \big[(\eta' k^2 - \Gamma_f)\mathbb{I} - \eta'_o k^2\epsilon\big]\delta\hat{\mathbf{u}}_B + i\big[\eta_R\Omega\epsilon - (K_{11} + \kappa n_{0,A}k^2)\mathbb{I}\big]\boldsymbol{k}\delta\hat{n}_A - iK_{12}\boldsymbol{k}\delta\hat{n}_B, \tag{S5.10}$$

$$0 = -\big[(\eta k^2 + \Gamma + \Gamma_f)\mathbb{I} - \eta_o k^2\epsilon\big]\delta\hat{\mathbf{u}}_B - \big[(\eta' k^2 - \Gamma_f)\mathbb{I} + \eta'_o k^2\epsilon\big]\delta\hat{\mathbf{u}}_A - i\big[\eta_R\Omega\epsilon + (K_{22} + \kappa n_{0,B}k^2)\mathbb{I}\big]\boldsymbol{k}\delta\hat{n}_B - iK_{21}\boldsymbol{k}\delta\hat{n}_A. \tag{S5.11}$$

为简化记号，我们定义 $\alpha = \eta k^2 + \Gamma + \Gamma_f$, $\beta = \eta_o k^2$, $\alpha' = \eta' k^2 - \Gamma_f$, $\beta' = \eta'_o k^2$, $\gamma_A = -K_{11} - \kappa n_{0,A}k^2$, $\gamma_B = -K_{22} - \kappa n_{0,B}k^2$, $\nu = \eta_R\Omega_o$。于是，线性化力平衡方程可写为

$$\begin{pmatrix} -\alpha\mathbb{I} - \beta\epsilon & -\alpha'\mathbb{I} + \beta'\epsilon \\ -\alpha'\mathbb{I} - \beta'\epsilon & -\alpha\mathbb{I} + \beta\epsilon \end{pmatrix}\begin{pmatrix}\delta\hat{\mathbf{u}}_A \\ \delta\hat{\mathbf{u}}_B\end{pmatrix} = -\begin{pmatrix} (\gamma_A\mathbb{I} + \nu\epsilon)i\boldsymbol{k} & -K_{12}i\boldsymbol{k} \\ -K_{21}i\boldsymbol{k} & (\gamma_B\mathbb{I} - \nu\epsilon)i\boldsymbol{k}\end{pmatrix}\begin{pmatrix}\delta\hat{n}_A \\ \delta\hat{n}_B\end{pmatrix}. \tag{S5.12}$$

舒尔补给出矩阵 $M = \begin{pmatrix} A & B \\ C & D\end{pmatrix}$ 的逆：

$$M^{-1} = \begin{pmatrix} S^{-1} & -S^{-1}BD^{-1} \\ -D^{-1}CS^{-1} & D^{-1} + D^{-1}CS^{-1}BD^{-1}\end{pmatrix}, \tag{S5.13}$$

其中 $S = A - BD^{-1}C$。还需注意，对于 $A = a\mathbb{I} + b\epsilon$, $A^{-1} = \frac{a\mathbb{I} - b\epsilon}{a^2 + b^2}$。于是我们得到：

$$\begin{pmatrix}\delta\hat{\mathbf{u}}_A \\ \delta\hat{\mathbf{u}}_B\end{pmatrix} = -\frac{1}{(\alpha'^2 - \alpha^2) + (\beta'^2 - \beta^2)}\begin{pmatrix} \alpha\mathbb{I} - \beta\epsilon & -\alpha'\mathbb{I} + \beta'\epsilon \\ -\alpha'\mathbb{I} - \beta'\epsilon & \alpha\mathbb{I} + \beta\epsilon\end{pmatrix}\begin{pmatrix} (\gamma_A\mathbb{I} + \nu\epsilon)i\boldsymbol{k} & -K_{12}i\boldsymbol{k} \\ -K_{21}i\boldsymbol{k} & (\gamma_B\mathbb{I} - \nu\epsilon)i\boldsymbol{k}\end{pmatrix}\begin{pmatrix}\delta\hat{n}_A \\ \delta\hat{n}_B\end{pmatrix}. \tag{S5.14}$$

将此方程代入线性化连续性方程，得到：

$$s\begin{pmatrix}\delta\hat{n}_A \\ \delta\hat{n}_B\end{pmatrix} = \frac{1}{(\alpha^2 - \alpha'^2) + (\beta^2 - \beta'^2)}\begin{pmatrix} n_{0,A}(\alpha\gamma_A + \beta\nu + \alpha' K_{21})k^2 & n_{0,A}(-\alpha'\gamma_B + \beta'\nu - \alpha K_{12})k^2 \\ n_{0,B}(-\alpha'\gamma_A + \beta'\nu - \alpha K_{21})k^2 & n_{0,B}(\alpha\gamma_B + \beta\nu + \alpha' K_{12})k^2\end{pmatrix}\begin{pmatrix}\delta\hat{n}_A \\ \delta\hat{n}_B\end{pmatrix}, \tag{S5.15}$$

由于 $\boldsymbol{k}\cdot\mathbb{I}\boldsymbol{k} = k^2$, $\boldsymbol{k}\cdot\epsilon\,\boldsymbol{k} = 0$。求解该特征值问题可得到色散关系和失稳条件。

对于本文所考虑的等组成混合物，有 $n_{0,A} = n_{0,B} = n_0$；此外，由于物种交换对称性，$K_{AA} = K_{BB} \equiv K$和 $K_{AB} = K_{BA} \equiv K_c$。围绕均匀混合物对方程进行线性化，会将密度涨落解耦为对称特征模和反对称特征模。对于组分模$\delta n_A = -\delta n_B$ 和总密度模 $\delta n_A = \delta n_B$，增长率为：

$$s_+ = \frac{n_0 k^2\big[-\big((\eta - \eta')k^2 + \Gamma + 2\Gamma_f\big)\big(K + K_c + \kappa n_0 k^2\big) + \big(\eta_o + \eta'_o\big)\eta_R\Omega\, k^2\big]}{\big((\eta - \eta')k^2 + \Gamma + 2\Gamma_f\big)\big((\eta + \eta')k^2 + \Gamma\big) + \big(\eta_o^2 - \eta_o'^2\big)k^4}, \tag{S5.16a}$$

$$s_- = \frac{n_0 k^2\big[-\big((\eta + \eta')k^2 + \Gamma\big)\big(K - K_c + \kappa n_0 k^2\big) + \big(\eta_o - \eta'_o\big)\eta_R\Omega\, k^2\big]}{\big((\eta - \eta')k^2 + \Gamma + 2\Gamma_f\big)\big((\eta + \eta')k^2 + \Gamma\big) + \big(\eta_o^2 - \eta_o'^2\big)k^4}. \tag{S5.16b}$$

对所有波数 $k$ 进行最大化，可得到各模的失稳条件：

共同增长（$\delta n_A = \delta n_B$）：$(\eta_o + \eta'_o)\,\eta_R\Omega > D_+ \equiv \Big(\sqrt{(\eta - \eta')\,K_+} + \sqrt{\kappa n_0\,(\Gamma + 2\Gamma_f)}\Big)^2$, (S5.17a)

demixing ($\delta n_A = -\delta n_B$)：$(\eta_o - \eta'_o)\eta_R\Omega > D_- \equiv \Big(\sqrt{(\eta + \eta')K_-} + \sqrt{\kappa n_0\Gamma}\Big)^2$. (S5.17b)

我们注意到，$K_{\alpha\beta}$ 矩阵的正定性要求满足 $K_+ \equiv K + K_c > 0$ 和 $K_- \equiv K - K_c > 0$。耗散剪切响应也由对称昂萨格矩阵 $\boldsymbol{\eta} = \begin{pmatrix}\eta & \eta' \\ \eta' & \eta\end{pmatrix}$描述，其正定性要求

$\eta > |\eta'|$。上述条件根据无量纲坐标 $x = \eta_R\Omega\eta_o/D_-$ 和 $y = \eta_R\Omega\eta'_o/D_-$，定义了主图3(c)中的线性稳定性图。对于 $x - y > 1$，组分模 $\delta n_A = -\delta n_B$ 不稳定；而对于 $x + y > D_+/D_-$，总密度模 $\delta n_A = \delta n_B$ 不稳定。当这两个条件重叠时，两种模均不稳定；当两个条件均不满足时，均匀态在线性上稳定。对于相图，我们设定 $\eta = K = \kappa = n_0 = \Gamma = 1$、 $K_c = \Gamma_f = 0$和 $\eta' = 0.5$，使得 $K_+ = K_- = 1$ 和 $\eta > \eta' > 0$满足正定性条件。这些参数给出 $D_+/D_- = 0.59$ ，从而确定不稳定性边界$x + y = D_+/D_-$。

### C. 多组分黏度矩阵的格林-久保关系

本节将推导多组分黏度张量的Green-Kubo关系。首先从涉及所有粒子的Irving-Kirkwood总维里应力的推导入手，然后得到各组分维里应力的表达式。接着，我们推导热力学平衡下混合物的Green-Kubo关系，并讨论为研究主动手性系统的闭合关系所作的假设。

我们首先根据粒子之间的微观相互作用力推导各组分的应力。令$\mathbf{r}^{ij} = \mathbf{r}_i - \mathbf{r}^j$，令$\mathbf{F}^{ij} = \mathbf{F}_{ij}^{\mathrm{WCA}} + \mathbf{F}_{ij}^{\perp}$表示由 $j$施加在 $i$ 上的力，$\mathbf{F}^{ij} = -\mathbf{F}^{ji}$。我们首先考虑所有粒子之间相互作用产生的总应力。相互作用力密度 $f_\mu$，其中 $\mu$ 为空间指标，表达式为

$$f_\mu(\mathbf{x}) = \sum_i \sum_{j\neq i} F_{ij,\mu}\delta(\mathbf{x} - \mathbf{r}_i) = \sum_{i<j} F_{ij,\mu}(\delta(\mathbf{x} - \mathbf{r}_i) - \delta(\mathbf{x} - \mathbf{r}_j)). \tag{S5.18}$$

定义以下沿从$\mathbf{b}$ 到$\mathbf{a}$的直线局域化的归一化分布，

$$b_{\mathbf{ab}}(\mathbf{x}) = \int_0^1 d\lambda\, \delta(\mathbf{x} - \mathbf{b} - \lambda(\mathbf{a} - \mathbf{b})). \tag{S5.19}$$

其空间积分为 $\int b_{\mathbf{ab}}(\mathbf{x})d\mathbf{x} = 1$。我们有以下恒等式

$$\delta(\mathbf{x} - \mathbf{a}) - \delta(\mathbf{x} - \mathbf{b}) = \int_0^1 d\lambda \frac{d}{d\lambda}\delta(\mathbf{x} - \mathbf{b} - \lambda(\mathbf{a} - \mathbf{b})) = -(a_\nu - b_\nu)\partial_\nu b_{\mathbf{ab}}(\mathbf{x}). \tag{S5.20}$$

因此，力密度也可以写为

$$\begin{aligned} f_\mu(\mathbf{x}) &= \sum_{i<j} F_{ij,\mu}(\delta(\mathbf{x} - \mathbf{r}_i) - \delta(\mathbf{x} - \mathbf{r}_j)) = -\sum_{i<j} F_{ij,\mu} r_{ij,\nu}\partial_\nu b_{\mathbf{r}_i\mathbf{r}_j}(\mathbf{x}) \\ &= -\partial_\nu \sum_{i<j} F_{ij,\mu} r_{ij,\nu} b_{\mathbf{r}_i\mathbf{r}_j}(\mathbf{x}) = \sum_{i<j} \partial_\nu \sigma^{ij}_{\mu\nu}. \end{aligned}$$

其中

$$\sigma^{ij}_{\mu\nu}(\mathbf{x}) = -F_{ij,\mu} r_{ij,\nu} b_{\mathbf{r}_i\mathbf{r}_j}(\mathbf{x}). \tag{S5.21}$$

对模拟盒内的应力积分，得到维里应力

$$\overline{\sigma}_{\mu\nu} = -\frac{1}{V}\sum_{i<j} F_{ij,\mu} r_{ij,\nu}. \tag{S5.22}$$

其中 $V$ 是系统的体积。

为简化记号，我们定义 $\delta_{\mathbf{a}}(\mathbf{x}) = \delta(\mathbf{x} - \mathbf{a})$ 和 $\delta_i = \delta_{\mathbf{r}_i}$。对于异类粒子对 $i \in A, j \in B$，我们定义它们之间的中点 $\mathbf{m}_{ij} = (\mathbf{r}_i + \mathbf{r}_j)/2$ ，并将粒子 $i$ 和 $j$ 对力密度的贡献写为

$$\begin{aligned} \mathbf{F}_{ij}\delta_i &= \mathbf{F}_{ij}(\delta_i - \delta_{\mathbf{m}_{ij}}) + \mathbf{F}_{ij}\delta_{\mathbf{m}_{ij}}, \\ -\mathbf{F}_{ij}\delta_j &= \mathbf{F}_{ij}(\delta_{\mathbf{m}_{ij}} - \delta_j) - \mathbf{F}_{ij}\delta_{\mathbf{m}_{ij}}. \end{aligned}$$

应用方程（S5.20）可将上式改写为

$$\begin{aligned} \mathbf{F}_{ij}\delta_i &= -\nabla\cdot\boldsymbol{\sigma}_A^{ij} + \mathbf{q}_A^{ij}, \\ -\mathbf{F}_{ij}\delta_j &= -\nabla\cdot\boldsymbol{\sigma}_B^{ij} + \mathbf{q}_B^{ij}. \end{aligned}$$

其中

$$\boldsymbol{\sigma}_A^{ij}(\mathbf{x}) = -\mathbf{F}_{ij} \otimes (\mathbf{r}_i - \mathbf{m}_{ij}) b_{\mathbf{r}_i \mathbf{m}_{ij}}(\mathbf{x}), \tag{S5.23}$$

$$\boldsymbol{\sigma}_B^{ij}(\mathbf{x}) = -\mathbf{F}_{ij} \otimes (\mathbf{m}_{ij} - \mathbf{r}_j) b_{\mathbf{m}_{ij} \mathbf{r}_j}(\mathbf{x}), \tag{S5.24}$$

$$\mathbf{q}_A^{ij} = -\mathbf{q}_B^{ij} = \mathbf{F}_{ij} \delta_{\mathbf{m}_{ij}}, \tag{S5.25}$$

其中 $\otimes$ 表示两个向量的外积。该总和定义为

$$\boldsymbol{\sigma}_A = \sum_{i \in A, j \neq i} \boldsymbol{\sigma}_A^{ij} \qquad \boldsymbol{\sigma}_B = \sum_{i \in B, j \neq i} \boldsymbol{\sigma}_B^{ij} \tag{S5.26}$$

$$\mathbf{q}_A = \sum_{i \in A, j \neq i} \mathbf{q}_A^{ij} \qquad \mathbf{q}_B = \sum_{i \in B, j \neq i} \mathbf{q}_B^{ij}. \tag{S5.27}$$

对同类粒子对的应力求和时，中点项相互抵消，应力的形式与方程S5.21相同。因此

$$\boldsymbol{\sigma}_A = -\sum_{i \in A, j \in A, j \neq i} \mathbf{F}_{ij} \otimes (\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j) b_{\mathbf{r}_i \mathbf{r}_j}(\mathbf{x}) - \sum_{i \in A, j \in B} \mathbf{F}_{ij} \otimes (\mathbf{r}_i - \mathbf{m}_{ij}) b_{\mathbf{r}_i \mathbf{m}_{ij}}(\mathbf{x}) \tag{S5.28}$$

$$\boldsymbol{\sigma}_B = -\sum_{i \in B, j \in B, j \neq i} \mathbf{F}_{ij} \otimes (\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j) b_{\mathbf{r}_i \mathbf{r}_j}(\mathbf{x}) - \sum_{i \in A, j \in B} \mathbf{F}_{ij} \otimes (\mathbf{m}_{ij} - \mathbf{r}_j) b_{\mathbf{m}_{ij} \mathbf{r}_j}(\mathbf{x}). \tag{S5.29}$$

对同类粒子对的交换力求和时，交换力会相互抵消。交换力只出现在异类粒子对中。因此

$$\mathbf{q}_A = -\mathbf{q}_B = \sum_{i \in A, j \in B} \mathbf{F}_{ij} \delta_{\mathbf{m}_{ij}}. \tag{S5.30}$$

A 和 B 上的力密度可写为

$$\mathbf{f}_\alpha = \nabla \cdot \boldsymbol{\sigma}_\alpha + \mathbf{q}_\alpha. \tag{S5.31}$$

现在我们对空间中的应力进行积分，$\underline{\boldsymbol{\sigma}^\alpha} = V^{-1} \int \boldsymbol{\sigma}^\alpha dV$。注意，当 $i \in A$ 和 $j \in B$时，$\mathbf{r}_i - \mathbf{m}^{ij} = \mathbf{m}^{ij} - \mathbf{r}^j = \mathbf{r}_{ij}/2$，因此

$$\overline{\boldsymbol{\sigma}}_A = \overline{\boldsymbol{\sigma}}_{(AA)} + \tfrac{1}{2}\overline{\boldsymbol{\sigma}}_{(AB)}, \qquad \overline{\boldsymbol{\sigma}}_B = \overline{\boldsymbol{\sigma}}_{(BB)} + \tfrac{1}{2}\overline{\boldsymbol{\sigma}}_{(AB)}, \tag{S5.32}$$

$$\overline{\boldsymbol{\sigma}}^{(\alpha\beta)} = -\frac{1}{V} \sum_{i \in A, j \in B, j \neq i} \mathbf{F}_{ij} \otimes \mathbf{r}_{ij}. \tag{S5.33}$$

在下文中，提及维里应力时，我们省略其上划线。

接下来，我们推导双流体黏度的格林-久保公式。设 $X$ 为微观状态，$P(X)$ 表示状态 $X$ 的概率。设 $L_0$ 为控制概率密度时间演化的算子，$L_0 P_{\rm ss} = 0$ 其中 $P_{\rm ss}$ 为稳态概率密度。振幅为 $h_b^\beta(t)$ 的小扰动会将算子变为 $L = L_0 + \sum_{\beta,\ b} h_b^\beta(t) L_{\beta b} + O(h^2)$。在我们的情形中，我们对物种 $\beta$施加应变率 $b$，$h_b^\beta = \dot{e}_b^\beta$。将概率密度 $\partial_t P = LP$ 的演化在稳态附近展开至一阶，得到

$$(\partial_t - L_0)\delta P(t) = \sum_{\beta, b} h_b^\beta(t) L_{\beta b} P_{\rm ss}, \tag{S5.34}$$

$$\delta P(t) = \sum_{\beta, b} \int_{-\infty}^{t} dt'\, h_b^\beta(t') e^{(t-t')L_0} L_{\beta b} P_{\rm ss}, \tag{S5.35}$$

其中 $\delta P$ 是受扰动的概率密度。可观测量是物种 $\alpha$ 的应力 $a$，$\langle s_a^\alpha \rangle_h(t) = \int dX\, s_a^\alpha(X) P(X,\ t)$。注意，在我们的系统中，应力是微观力的函数，并不显式依赖于粒子速度，因此也不显式依赖于应变率。受扰动的应力为

$$\delta \langle s_a^\alpha \rangle(t) = \int dX\, s_a^\alpha(X) \delta P(X,t). \tag{S5.36}$$

将式（S5.35）代入式（S5.36）的第一项：

$$\int dX\, s_a^\alpha \delta P(X,t) = \sum_{\beta,b} \int_{-\infty}^{t} dt'\, h_b^\beta(t') R_{ab}^{\alpha\beta}(t-t') \tag{S5.37}$$

其中线性响应核为

$$R_{ab}^{\alpha\beta}(\tau) = \int dX\, s_a^\alpha(X)[e^{\tau L_0} L_{\beta b} P_{\rm ss}](X). \tag{S5.38}$$

我们将共轭观测量 $B_b^\beta$ 定义为 $B_b^\beta(X) = P_{\rm ss}^{-1}(X) L_{\beta b} P_{\rm ss}(X)$。令算子 $e^{\tau L_0^\dagger}$ 为 $e^{\tau L_0}$的伴随算子，后者使可观测量随时间演化。我们得到

$$R_{ab}^{\alpha\beta}(\tau) = \langle \delta s_a^\alpha(\tau) B_b^\beta(0) \rangle_{\rm ss}. \tag{S5.39}$$

其中 $\langle\rangle_{\rm ss}$ 表示对稳态分布的平均，$\delta s_a^\alpha$ 表示涨落应力。当从 $t=0$开始施加恒定应变率时，对于 $t>0$，$h_b^\beta(t>0) = h_0$，应力响应为

$$\lim_{h_0\to 0} \frac{\delta\langle s_a^\alpha\rangle(t)}{h_0} = \int_0^t R_{ab}^{\alpha\beta}(\tau)\, d\tau. \tag{S5.40}$$

长时间极限即为零频黏度，

$$\eta_{ab}^{\alpha\beta} = \int_0^\infty d\tau\, \langle \delta s_a^\alpha(\tau) B_b^\beta(0)\rangle_{\rm ss}. \tag{S5.41}$$

公式（S5.41）是针对指定剪切扰动的稳态线性响应恒等式.

我们将两个独立的剪切定义为 $\mathbf{E}_1 = \mathbf{e}_x\mathbf{e}_x - \mathbf{e}_y\mathbf{e}_y$ 和 $\mathbf{E}_2 = \mathbf{e}_x\mathbf{e}_y + \mathbf{e}_y\mathbf{e}_x$。对物种$\beta$ 施加剪切速率 $b$ 会给物种 $\beta$的粒子添加仿射漂移 $h_b^\beta\, \mathbf{E}_b\mathbf{r}_i$。因此，一阶扰动对算子 $L$的影响作用于概率分布时为

$$L_{\beta b} P = -\sum_{i\in\beta} \partial_{\mathbf{r}_i} \cdot [(\mathbf{E}_b\mathbf{r}_i) P], \tag{S5.42}$$

因此，根据 $B_b^\beta$ 的定义，我们有

$$B_b^\beta = -\sum_{i\in\beta} (\mathbf{E}_b\mathbf{r}_i)\cdot \partial_{\mathbf{r}_i} \ln P_{\rm ss}. \tag{S5.43}$$

我们首先考虑被动平衡和过阻尼极限，$P_{\rm eq} \propto \exp[-U/(k_BT)]$。因此，$k_BT\partial_{\mathbf{r}_i} \ln P_{\rm eq} = \mathbf{F}_i = \sum_{j\neq i} \mathbf{F}_{ij}$。可以采用与构造维里应力类似的方式计算 $B_b^\beta$。具体而言，通过定义

$$M_b = \sum_{i\in A, j\in B} \mathbf{F}_{ij}\cdot \mathbf{E}_b\mathbf{m}_{ij}. \tag{S5.44}$$

对同一组分的一对粒子，将 $\mathbf{E}_b\mathbf{r}_i \cdot \mathbf{F}_{ij}$ 求和可得 $\mathbf{E}_b\mathbf{r}_{ij}\cdot\mathbf{F}_{ij}$。对于异类粒子对，两个贡献分别为 $-\mathbf{F}_{ij}\cdot\mathbf{E}_b\mathbf{r}_i = -\frac{1}{2}\mathbf{F}_{ij}\cdot\mathbf{E}_b\mathbf{r}_{ij} - \mathbf{F}_{ij}\cdot\mathbf{E}_b\mathbf{m}_{ij}$和 $\mathbf{F}_{ij}\cdot\mathbf{E}_b\mathbf{r}_j = -\frac{1}{2}\mathbf{F}_{ij}\cdot\mathbf{E}_b\mathbf{r}_{ij} + \mathbf{F}_{ij}\cdot\mathbf{E}_b\mathbf{m}_{ij}$。因此，我们可以证明

$$k_BTB_b^A = Vs_b^A - M_b, \qquad k_BTB_b^B = Vs_b^B + M_b. \tag{S5.45}$$

其中 $s_b^\alpha = \mathrm{tr}(\boldsymbol{\sigma}_\alpha \mathbf{E}_b)$ 是物种 $b$的剪切应力 $\alpha$。对于单个条目 $\eta_{ab}^{\alpha\beta}$，当 $\int_0^\infty dt\, \langle \delta s_a^\alpha(t)\delta M_b(0)\rangle_{\rm eq} = 0$ 时，交换项会消失。在均匀体相中，$M_b$ 在方程 S5.44 中也可以等价地写成

$$M_b = \int_V (\mathbf{E}_b\mathbf{x})_k q_{A,k}(\mathbf{x}) dV. \tag{S5.46}$$

其中 $\mathbf{q}_A$ 是式（S5.30）中定义的力密度。定义 $G_{ak}^\alpha(\mathbf{x}\ t) = \langle \delta s_a^\alpha\ (t)\ \delta q_{A,\ k}(\mathbf{x},\ \mathbf{0})\rangle_{\rm eq}$，其中 $s_a^\alpha$是在体积上取平均，$\langle\rangle_{\rm eq}$ 表示平衡系综平均。在周期性边界条件下，对所有粒子进行平移不会改变系统，并使$\mathbf{q}_A$ 发生平移，因此 与$\mathbf{x}$无关。在旋转 下，剪切应力保持不变，而交换力作为矢量进行变换。平衡系综和动力学在该旋转下的不变性给出 $(\mathbf{x}t)\ \delta q_A(\mathbf{x})$。结合这两个恒等式可得，因此

对所有粒子进行平移会使其保持不变，并使$\mathbf{q}_A$发生平移，因此 $G$ 与$\mathbf{x}$无关。在旋转 $\pi$ 下，剪切应力保持不变，而交换力作为矢量进行变换。平衡系综和动力学在该旋转下的不变性给出 $G^{\alpha}_{ak}(\mathbf{x}\ t) = -G^{\alpha}_{ak}(-\mathbf{x}\ t)$。结合这两个恒等式可得 $G=0$，因此

$$\langle \delta s^{\alpha}_{a}(t)\delta M_b(0)\rangle_{\rm eq} = \int_V (\mathbf{E}_b\mathbf{x})_k G^{\alpha}_{ak}(\mathbf{x},t)dV = 0. \tag{S5.47}$$

这一论证适用于任一物种，且不要求交换对称性。因此，黏度系数为

$$\eta^{\alpha\beta}_{ab} = \frac{V}{k_BT}\int_0^{\infty} dt\,\langle \delta s^{\alpha}_{a}(t)\delta s^{\beta}_{b}(0)\rangle_{\rm eq}. \tag{S5.48}$$

对于活性混合物，我们假设，由于自旋产生横向力，粒子可以有效地建模为漂移和热噪声。热扩散率为 $D = k_BT_{\rm eff}\Gamma^{-1} > 0$。构型空间中的概率连续性方程为 $\partial_t P = -\sum_i \partial_{\mathbf{r}_i}\cdot\mathbf{J}_i$，其中 $\mathbf{J}_i = \Gamma^{-1}\mathbf{F}_i P - D\partial_{\mathbf{r}_i}P$。在稳态下 $\sum_i \partial_{\mathbf{r}_i}\cdot\mathbf{J}^{\rm ss}_i = 0$，其中 $J^{\rm ss}_i$为稳态概率通量，且 $k_BT_{\rm eff}\partial_{\mathbf{r}_i}\ln P_{\rm ss} = \mathbf{F}_i - \Gamma\frac{\mathbf{J}^{\rm ss}_i}{P_{\rm ss}}$。代入公式（S5.43）得到

$$k_BT_{\rm eff}B^{\beta}_b = -\sum_{i\in\beta}(\mathbf{E}_b\mathbf{r}_i)\cdot\mathbf{F}_i + \Gamma\sum_{i\in\beta}(\mathbf{E}_b\mathbf{r}_i)\cdot\frac{\mathbf{J}^{\rm ss}_i}{P_{\rm ss}}. \tag{S5.49}$$

第一项产生与平衡情形相同的结果，而第二项则是由稳态概率通量引起的修正。我们通过保留部分应力关联的贡献，并忽略时间积分的应力-流关联对黏度的贡献，来近似零频黏度矩阵。因此，活性手性混合物的格林-久保公式变为

$$\eta^{\alpha\beta}_{ab} = \frac{V}{k_BT_{\rm eff}}\int_0^{\infty} dt\,\langle \delta s^{\alpha}_{a}(t)\delta s^{\beta}_{b}(0)\rangle. \tag{S5.50}$$

我们通过将所得黏度与第S5D节中根据速度涨落谱推断出的黏度进行比较，来评估该闭合关系。

如正文所述，具有宇称交换对称性的等组分混合物中的应力-应变关系为

$$\begin{pmatrix} s^A_1\\ s^A_2\\ s^B_1\\ s^B_2\end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \eta & \eta_{\rm o} & \eta' & -\eta'_{\rm o}\\ -\eta_{\rm o} & \eta & \eta'_{\rm o} & \eta'\\ \eta' & \eta'_{\rm o} & \eta & -\eta_{\rm o}\\ -\eta'_{\rm o} & \eta' & \eta_{\rm o} & \eta\end{pmatrix}\begin{pmatrix} \dot e^A_1\\ \dot e^A_2\\ \dot e^B_1\\ \dot e^B_2\end{pmatrix}. \tag{S5.51}$$

该矩阵将 $\eta^{\alpha\beta}_{ab}$ 与 $\eta_{\rm o}$ 和 $\eta'_{\rm o}$ 联系起来。

这里，我们详细说明应力关联所满足的对称性。记作 $C^{\alpha\beta}_{ab} = \langle s^{\alpha}_a(t)s^{\beta}_b(0)\rangle$，其中为简化记号，我们用$s^{\alpha}_a$ 表示涨落应力。当旋转 $45^o$、 $s^{\alpha}_1 \to -s^{\alpha}_2$、 $s^{\alpha}_2 \to s^{\alpha}_1$ 时，由于旋转不变性，我们得到

$$\langle s^{\alpha}_1(t)s^{\beta}_2(0)\rangle = -\langle s^{\alpha}_2(t)s^{\beta}_1(0)\rangle = -\langle s^{\alpha}_2(0)s^{\beta}_1(-t)\rangle \tag{S5.52}$$

其中最后一个等式源于时间平移不变性。因此，我们有 $C^{\alpha\beta}_{12}(t) = -C^{\alpha\beta}_{21}(t) = -C^{\beta\alpha}_{12}(-t) = C^{\beta\alpha}_{21}(-t)$。当两个组分以相同的角速度沿相反方向旋转时，我们还具有 $\mathcal{P}\times A \to B$ 的对称性，其中 $\mathcal{P}$ 表示镜像反射（关于 $x$ 轴或 $y$ 轴），而 $A \to B$ 表示交换组分 A 和 B。在镜像反射下， $s^{\alpha}_1 \to s^{\alpha}_1$, $s^{\alpha}_2 \to -s^{\alpha}_2$，因此我们有$\langle s^A_1(t)s^B_2(0)\rangle = -\langle s^B_1(t)s^A_2(0)\rangle$，或 $C^{AB}_{12}(t) = -C^{BA}_{12}(t)$。出于同样的原因， $C^{AB}_{21}(t) = -C^{BA}_{21}(t)$。因此，结合这两种对称性，我们有 $C^{AB}_{12}(t) = C^{AB}_{12}(-t)$、 $C^{AB}_{21}(t) = C^{AB}_{21}(-t)$，它们相对于时间延迟反演是偶的。类似地，我们可以证明，对于偶相关性， $C^{\alpha\alpha}_{ii}(t) = C^{\alpha\alpha}_{ii}(-t)$ 对 $i=1$ 也成立；2 以及 $\alpha = A,B$,$C^{AB}_{ii}(t) = C^{BA}_{ii}(t) = C^{AB}_{ii}(-t) = C^{BA}_{ii}(-t)$ 对 $i=1$ 也成立；2， $C^{AB}_{12}(t) = C^{BA}_{21}(t) = -C^{AB}_{21}(t) = -C^{BA}_{12}(t) = C^{AB}_{12}(-t) = C^{BA}_{21}(-t) = C^{AB}_{21}(-t) = C^{BA}_{12}(-t)$；而对于奇相关性， $C^{AA}_{12}(t) = -C^{AA}_{21}(t) = -C^{BB}_{12}(t) = C^{BB}_{21}(t) = -C^{AA}_{12}(-t) = C^{AA}_{21}(-t) = C^{BB}_{12}(-t) = -C^{BB}_{21}(-t)$。

我们从反对称关联函数 $C^{\alpha\beta}_{\rm o}(t) = \frac{1}{2}(C^{\alpha\beta}_{12}(t) - C^{\alpha\beta}_{21}(t))$ 中得到奇黏度张量的各个分量，

$$\eta_{{\rm o},\alpha\beta} = \frac{V}{k_BT_{\rm eff}}\int_0^{\infty} C^{\alpha\beta}_{\rm o}(t)\,dt = \frac{1}{2}\epsilon_{ab}\eta^{\alpha\beta}_{ab}. \tag{S5.53}$$

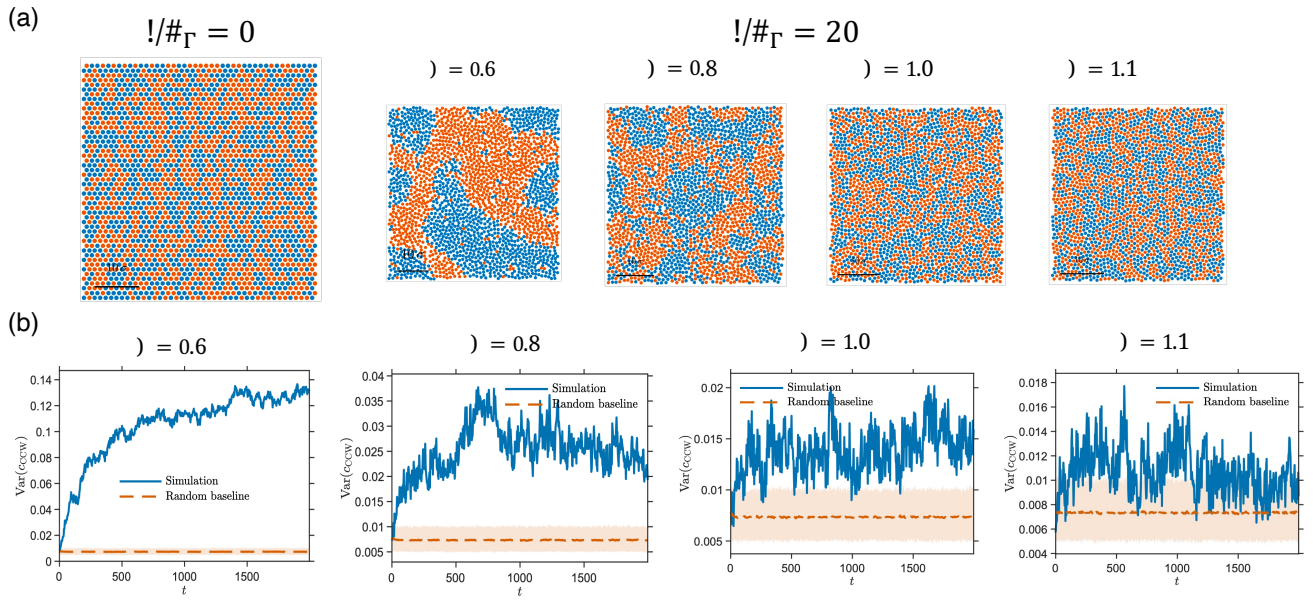


图 S8。**Green–Kubo 分析中均匀状态的选择。（a）**从相同的随机初始构型出发，在不同堆积分数 $\rho$ 下的 $t/\tau_\Gamma = 20$ 粒子构型。混合物在整个演化过程中始终近似均匀。**（b）**对于每个堆积分数，局部逆时针浓度 $c_{\mathrm{CCW}} = n_A/(n_A + n_B)$ 的方差落在随机混合物基线范围内的晚期构型所占比例。在 $\rho = 1.1$ 下，相当一部分构型的方差与随机基线一致；而在其他堆积分数下，轨迹的大部分区段所呈现的方差都超过其上界。因此，我们选择 $\rho = 1.1$ 进行 Green–Kubo 分析。

因此，我们可以将 $\eta'_{\mathrm{o}}$ 定义为 $\boldsymbol{\eta}_{\mathrm{o}}$ 矩阵（公式6），对于受宇称交换对称性约束的混合物，其形式为 $\eta'_{\mathrm{o}} = \frac{1}{2}(\eta_{\mathrm{o},\,BA} - \eta_{\mathrm{o},\,AB})$。此外，每个单独物种的奇黏度 $\alpha$ 由其在物种空间中的对角分量 $\eta_{\mathrm{o},\,\alpha\alpha}$ 给出，即 $\eta_{\mathrm{o}} = \frac{1}{2}(\eta_{\mathrm{o},\,AA} - \eta_{\mathrm{o},\,BB})$。剪切黏度矩阵的对角和非对角分量由自相关函数 $C^{\alpha\beta}(t) = \frac{1}{2}(C^{\alpha\beta}_{11} + C^{\alpha\beta}_{22}(t))$ 计算得到，

$$\eta_{\alpha\beta} = \frac{V}{k_B T_{\mathrm{eff}}} \int_0^\infty C^{\alpha\beta}(t)\, dt = \frac{1}{2}\delta_{ab}\eta^{\alpha\beta}_{ab}. \tag{S5.54}$$

因此，对于物种空间中的剪切黏度矩阵，我们通过测量得到

$\eta = \frac{1}{2}\eta_{AA} + \eta_{BB}$ $\eta' = ($ $)$ 和交叉黏度 $($ $)$。

$\frac{1}{2}\eta_{BA} + \eta_{AB}$

为了获得均匀混合物的黏度，我们扫描堆积分数 $\rho$，直至进入均匀状态。我们将 500 次独立运行中识别出的粒子随机打乱，并以此为基准，将 64 个空间区块中的局部组分方差与之比较，据此评估均匀性。我们报告了局部测得的 $c_{\mathrm{CCW}} = n_A/(n_A + n_B)$ 方差超过该基准上界的晚期构型比例。对于 $\rho = 0.6, 0.8, 1.0$，该比例接近 1；而在 $\rho = 1.1$ 时，该比例降至 $< 50\%$，这与均匀混合物的情况一致，如图 S8所示。因此，Green–Kubo测量是在 $\rho = 1.1$ 下进行的。由于粒子之间存在软排斥作用，此处允许堆积分数大于 1。

所有其他参数均与正文图2(a)中使用的参数相同。模拟以 $\Delta t$ =0.05 的间隔进行采样，覆盖 $t \in [0, 1000]$；每条轨迹的前 20% 被舍弃，视为瞬态动力学阶段，因此关联函数是在剩余的稳态数据上计算的。对每条轨迹分别使用梯形积分计算格林–久保积分，随后对 80 条独立轨迹的结果取平均，并根据轨迹计算 95%置信区间。积分截止点 $\tau_c$ 取为奇应力相关函数的 95%置信区间包含零时的第一个非零时间延迟。

通过 Green–Kubo 分析得到的归一化跨物种剪切黏度为 $\eta'/\eta = 0.686 \pm 0.021$，满足 $\eta > \eta' > 0$，符合对称剪切黏度矩阵正定性的要求。对角

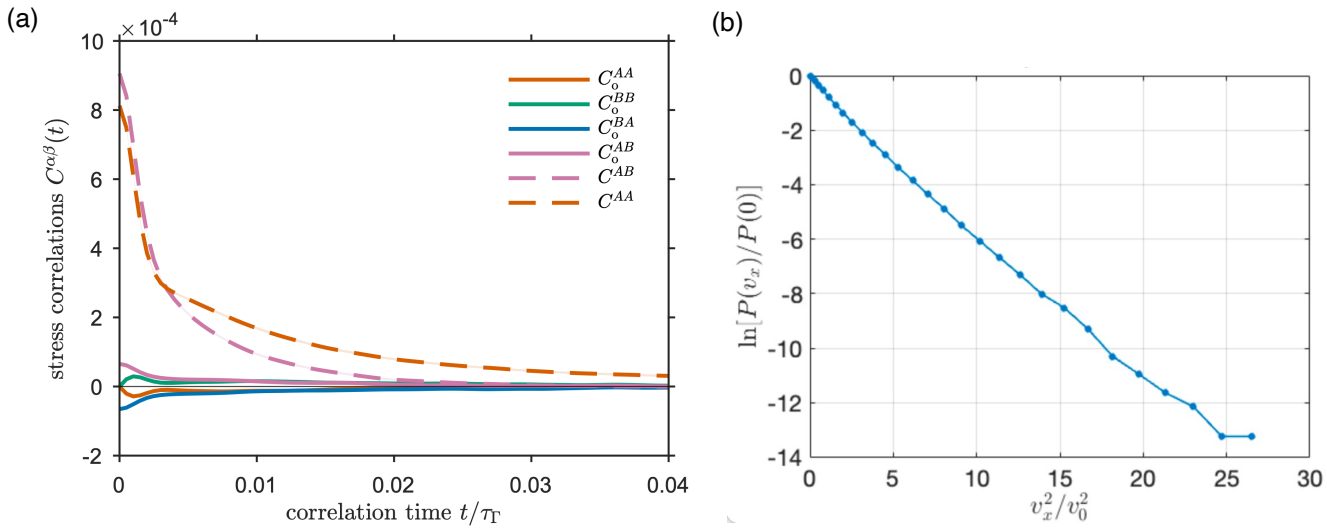


图 S9。**二元手性活性混合物的 Green–Kubo 应力关联和速度统计。(a)** 对 80 条相互独立的粒子轨迹取平均得到的应力关联，包括决定广义剪切黏度矩阵的自相关函数 $C^{\alpha\beta}(\tau)$，以及决定广义奇黏度矩阵的反对称关联函数 $C_o^{\alpha\beta}(\tau)$。它们的时间积分给出进入多组分黏度矩阵的剪切黏度系数和横向黏度系数 $\eta$、$\eta'$、$\eta_o$ 和 $\eta'_o$。这些关联表现出预期的对称性关系。**(b)** 归一化速度分布 $P(v_x)/P(0)$ 相对于 $v_x^2/v_0^2$ 的半对数图，数据取自同样的 80 条轨迹，其中 $v_0^2 = \langle v_x^2 \rangle$ 用于归一化。分布中心范围内的线性行为与高斯速度统计一致，而在长尾极限出现偏离。

和非对角宇称破缺黏度响应在统计不确定性范围内均呈现出预期的对称性：

$$(\eta_{o,AA} + \eta_{o,BB})/(2\eta) = 0.010 \pm 0.011, \tag{S5.55}$$
$$(\eta_{o,BA} + \eta_{o,AB})/(2\eta) = -0.007 \pm 0.011. \tag{S5.56}$$

对于正文中报告的输运量的 Green–Kubo测量，我们定义并测量 $\eta'_o/\eta = (\eta_{o,BA} - \eta_{o,AB})/2\eta$ 和 $\eta_o/\eta = (\eta_{o,AA} - \eta_{o,BB})/2\eta$，用于二元混合物。用于确定黏度的应力关联函数见图 S9。虽然 $\eta_o$ 出现在黏度张量的反对称分量中，因此是无耗散的 [S2、S12]，$\eta'_o$ 出现在黏度张量的对称分量中，并且可能对耗散产生贡献。相应地，正如前文所述，其应力关联在时间反演下为偶函数，并且在 $\tau = 0$ 时仍可保持有限。因此，$\eta'_o$ 被称为交叉宇称破缺黏度，而不是奇黏度；按照定义，奇黏度是无耗散的。

作为对非平衡稳态统计性质的进一步一致性检验，我们在图 S9(b) 中考察了单个粒子的速度分布。中心范围内 $\ln[P(v_x)/P(0)]$ 与 $v_x^2/v_0^2$ 呈线性关系，这与高斯速度分布相一致，但在长尾部分存在偏离。这证实了我们系统中的粒子速度大多遵循麦克斯韦-玻尔兹曼分布，这与文献 [S1] 中关于表现出有效热力学行为和格林-久保关系的手性活性流体的观察结果相似。这一观察结果支持在有限范围内存在类平衡速度统计。

### D. 涨落流体力学与速度关联

本节将建立适用于活性手性混合物的涨落流体力学理论。通过将理论和模拟中的速度关联进行比较（方程 S5.50），旨在检验 Green-Kubo关系对非平衡多组分系统的有效性。涨落流体动力学理论通过在确定性动量平衡（方程 S4.2）中加入随机应力和力构建而成。为研究涨落，我们对连续性方程和动量平衡方程进行线性化。线性化连续性方程为

$$\partial_t \delta n_\alpha + n_\alpha^0 \nabla \cdot \mathbf{u}_\alpha = 0, \tag{S5.57}$$

其中 $\delta n_\alpha$ 是围绕均匀密度状态 $n_\alpha^0$ 的涨落密度场，且 $\mathbf{u}_\alpha$ 是围绕稳态基态的涨落速度。根据应力的本构定律（方程 S5.1-S5.3），加入噪声后的线性化动量平衡方程为

$$\eta_{\alpha\beta}\nabla^2\mathbf{u}_\beta + \zeta_{\alpha\beta}\nabla(\nabla\cdot\mathbf{u}_\beta) + \eta_{\mathrm{o},\alpha\beta}\epsilon\nabla^2\mathbf{u}_\beta - K_{\alpha\beta}\nabla\delta n_\beta + \epsilon\eta_R\Omega_\alpha\nabla\delta n_\alpha - \Lambda_{\alpha\beta}\mathbf{u}_\beta + \nabla\cdot\boldsymbol{\sigma}_\alpha^R + \boldsymbol{\xi}_\alpha = 0 \quad \text{(S5.58)}$$

其中，$K_{\alpha\beta} = n_\alpha^0\frac{\partial\mu_\alpha}{\partial n_\beta}$、$\boldsymbol{\sigma}_\alpha^R$和 $\boldsymbol{\xi}_\alpha$ 分别为随机涨落的应力和力。对于阻力$-\Gamma_\alpha\mathbf{u}_\alpha - \Gamma_f(\mathbf{u}_\alpha - \mathbf{u}^{\beta\neq\alpha})$，半正定阻尼矩阵为 $\Lambda_{\alpha\beta} = (\Gamma_\alpha + \Gamma_f)\delta_{\alpha\beta} - \Gamma_f(1-\delta_{\alpha\beta})$，因此动量方程中的摩擦项为 $-\Lambda_{\alpha\beta}\mathbf{u}^\beta$。

对于由反向旋转粒子组成的等组成混合物（$n_A^0 = n_B^0 = n_0$），如上一节所述，空间反射与组分交换共同约束物种空间中的偶输运矩阵和奇黏度张量，使其满足

$$\mathbf{X} = \begin{pmatrix} X_d & X_x \\ X_x & X_d \end{pmatrix}, \quad X \in \{K, \eta, \zeta, \Lambda\}, \qquad \boldsymbol{\eta}_\mathrm{o} = \begin{pmatrix} \eta_\mathrm{o} & -\eta_\mathrm{o}' \\ \eta_\mathrm{o}' & -\eta_\mathrm{o} \end{pmatrix}. \quad \text{(S5.59)}$$

我们将 $X_\pm = X_d \pm X_x$ 定义为偶物种矩阵，将$\boldsymbol{\eta}_{\mathrm{o},s} = (\boldsymbol{\eta}_\mathrm{o} + \boldsymbol{\eta}_\mathrm{o}^T)/2$ 和$\boldsymbol{\eta}_{\mathrm{o},a} = (\boldsymbol{\eta}_\mathrm{o} - \boldsymbol{\eta}_\mathrm{o}^T)/2$ 定义为物种空间中奇黏度的对称部分和反对称部分。

我们采用一个满足对称性要求的随机应力最简模型，并遵循文献 [S1],利用式中引入的黏度矩阵，将随机应力关联推广到二维系统S5.51，

$$\langle\sigma_i^{R,\alpha}(\mathbf{r},t)\sigma_j^{R,\beta}(\mathbf{r}',t')\rangle = 2k_BT_\mathrm{eff}\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r}')\left(\eta_{ij,\mathrm{sym}}^{\alpha\beta}\delta(t-t') + \eta_{ij,\mathrm{anti}}^{\alpha\beta}\psi(t-t')\right) \quad \text{(S5.60)}$$

其中 $\eta_{ij}^{\alpha\beta}$ 、对称 $= \eta_{ji}^{\beta\alpha}$ 、对称，$\eta_{ij}^{\alpha\beta}$ 、反对称 $= -\eta_{ji}^{\beta\alpha}$ 、反对称。我们假设空间上不具关联的白噪声 $\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r}')$，当微观应力关联长度相对于所关注的流体动力学长度尺度足够小时，该假设成立。对于时间关联，对于时间延迟反演下为偶的关联，我们假设时间上不具关联的白噪声 $\delta(t-t')$，当微观应力关联时间相对于所关注的流体动力学时间尺度足够小时，该假设成立。对于时间延迟反演下为奇的关联，我们选择 $\psi(t) = -\delta'(t)/\omega_0$ 作为奇关联短记忆展开中首个非零项，因为狄拉克δ函数的一阶导数是最低阶的奇关联。这里，$\omega_0$ 是表征这些关联的第一个时间矩的特征关联频率参数。我们定义 $\tilde{\omega} = \omega/\omega_0$。关联的振幅 $2k_BT_\mathrm{eff}\eta_{ij}^{\alpha\beta}$ 由与所提出的 Green-Kubo关系（式 S5.50）的一致性确定。类似地，与该阻尼相关的随机力满足

$$\langle\xi_{i,\alpha}(\mathbf{r},t)\xi_{j,\beta}(\mathbf{r}',t')\rangle = 2k_BT_\mathrm{eff}\Lambda_{\alpha\beta}\delta_{ij}\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r}')\delta(t-t'), \quad \text{(S5.61)}$$

其中我们假设所有随机应力和力共享相同的有效温度 $T_\mathrm{eff}$。

我们采用以下约定来定义傅里叶逆变换 $f(\mathbf{r},t) = \int\frac{d^d\mathbf{k}}{(2\pi)^d}\int\frac{d\omega}{2\pi}\hat{f}(\mathbf{k},\omega)e^{i(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}+\omega t)}$，并使用帽号表示傅里叶振幅，则傅里叶空间中的随机应力协方差变为

$$\langle\hat{\sigma}_{ij,\alpha}^R(\mathbf{k},\omega)\hat{\sigma}_{kl,\beta}^{R,*}(\mathbf{k}',\omega')\rangle = 2k_BT_\mathrm{eff}(2\pi)^d\delta(\mathbf{k}-\mathbf{k}')\delta(\omega-\omega')\left(\eta_{\alpha\beta}(\delta_{ik}\delta_{jl}+\delta_{il}\delta_{jk}) + (\zeta_{\alpha\beta}-\eta_{\alpha\beta})\delta_{ij}\delta_{kl}\right.$$
$$\left. + (\epsilon_{il}\delta_{jk}+\epsilon_{jk}\delta_{il})(-i\tilde{\omega}\eta_{\mathrm{o},s,\alpha\beta} + \eta_{\mathrm{o},a,\alpha\beta})\right) \quad \text{(S5.62)}$$

其中对于我们的系统，$\eta_{\mathrm{o},\ s,\ \alpha\beta} = \eta_{\mathrm{o},\ \alpha\beta}\delta_{\alpha\beta}$，以及 $\eta_{\mathrm{o},\ a,\ \alpha\beta} = -\epsilon^{\alpha\beta}\eta_\mathrm{o}'$。

现在我们使用一致的傅里叶约定计算速度关联。引入纵向速度和横向速度 $\hat{u}_L^\alpha = \hat{\mathbf{k}}\cdot\hat{\mathbf{u}}_\alpha$、$\hat{u}_{T,\alpha} = (\boldsymbol{\epsilon}\hat{\mathbf{k}})\cdot\hat{\mathbf{u}}_\alpha$，定义 $\mathbf{u}_L = (u_L^\alpha, u_L^\beta)^T$、$\mathbf{u}_T = (u_T^\alpha, u_T^\beta)^T$、$\delta\mathbf{n} = (\delta n_A, \delta n_B)^T$、$N_{\alpha\beta} = n_0\delta_{\alpha\beta}$，以及 $\tau_{\alpha\beta} = \eta_R\Omega_\alpha\delta_{\alpha\beta}$。对于相反的力矩，$\boldsymbol{\tau} = \mathrm{diag}(\tau, -\tau)$，其中 $\tau = \eta_R\Omega$。投影随机应力为 $\hat{\sigma}_{L,\alpha} = \hat{\mathbf{k}}\cdot(\hat{\boldsymbol{\sigma}}_\alpha^R\hat{\mathbf{k}})$ 和 $\hat{\sigma}_{T,\alpha} = (\boldsymbol{\epsilon}\hat{\mathbf{k}})\cdot(\hat{\boldsymbol{\sigma}}_\alpha^R\hat{\mathbf{k}})$，其中 $\hat{\xi}_{L,\alpha} = \hat{\mathbf{k}}\cdot\hat{\boldsymbol{\xi}}_\alpha$ 以及 $\hat{\xi}_{T,\alpha} = \hat{\mathbf{k}}_\perp\cdot\hat{\boldsymbol{\xi}}_\alpha$。我们定义 $\hat{\boldsymbol{\sigma}}_L = (\hat{\sigma}_{L,A}, \hat{\sigma}_{L,B})^T$、$\hat{\boldsymbol{\sigma}}_T = (\hat{\sigma}_{T,A}, \hat{\sigma}_{T,B})^T$、$\hat{\boldsymbol{\xi}}_L = (\hat{\xi}_{L,A}, \hat{\xi}_{L,B})^T$，以及 $\hat{\boldsymbol{\xi}}_T = (\hat{\xi}_{T,A}, \hat{\xi}_{T,B})^T$。于是，傅里叶空间中的线性化连续性方程和动量方程为

$$\begin{pmatrix} i\omega\mathbf{I} & ik\mathbf{N} & 0 \\ -ik\mathbf{K} & -(\boldsymbol{\eta}+\boldsymbol{\zeta})k^2 - \boldsymbol{\Lambda} & k^2\boldsymbol{\eta}_\mathrm{o} \\ ik\boldsymbol{\tau} & -\boldsymbol{\eta}k^2 - \boldsymbol{\Lambda} & -k^2\boldsymbol{\eta}_\mathrm{o} \end{pmatrix}\begin{pmatrix} \delta\mathbf{n} \\ \hat{\mathbf{u}}_L \\ \hat{\mathbf{u}}_T \end{pmatrix} + ik\begin{pmatrix} 0 \\ \hat{\boldsymbol{\sigma}}_L \\ \hat{\boldsymbol{\sigma}}_T \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} 0 \\ \hat{\boldsymbol{\xi}}_L \\ \hat{\boldsymbol{\xi}}_T \end{pmatrix} = 0. \quad \text{(S5.63)}$$

我们将线性化方程中的 6×6 矩阵记为$\mathbf{M}$。

我们可以消去密度涨落，从而得到一个仅关于速度的 4×4 矩阵方程。结果为

$$\begin{pmatrix} -(\boldsymbol{\eta}+\boldsymbol{\zeta})k^2 - \boldsymbol{\Lambda} + ik^2\omega^{-1}\mathbf{K}\mathbf{N} & \boldsymbol{\eta}_{\mathrm{o}}k^2 \\ -k^2\boldsymbol{\eta}_{\mathrm{o}} - ik^2\omega^{-1}\boldsymbol{\tau}\mathbf{N} & -\boldsymbol{\eta}k^2 - \boldsymbol{\Lambda} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \hat{\boldsymbol{\sigma}}_L \\ \hat{\boldsymbol{\sigma}}_T \end{pmatrix} + ik \begin{pmatrix} \hat{\boldsymbol{\sigma}}_L \\ \hat{\boldsymbol{\sigma}}_T \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} \hat{\boldsymbol{\xi}}_L \\ \hat{\boldsymbol{\xi}}_T \end{pmatrix} = 0 \tag{S5.64}$$

上式中的矩阵记为$\mathbf{M}_u$。

为计算$\hat{\sigma}_L$与$\hat{\sigma}_T$之间的协方差，我们以如下情况为例：

$$\begin{aligned}\langle \hat{\sigma}_{L,\alpha}(\mathbf{k},\omega)\hat{\sigma}^*_{T,\beta}(\mathbf{k}',\omega')\rangle &= \hat{k}_i\hat{k}_j\hat{k}^{\perp}_k\hat{k}_l\langle \hat{\sigma}^R_{ij,\alpha}(\mathbf{k},\omega)\hat{\sigma}^{R,*}_{kl,\beta}(\mathbf{k}',\omega')\rangle \\ &= (-i\tilde{\omega}\eta_{\mathrm{o},\alpha\beta}\delta_{\alpha\beta} + \epsilon_{\alpha\beta}\eta'_{\mathrm{o}})\hat{k}_j\hat{k}^{\perp}_k\epsilon_{jk} = i\tilde{\omega}\eta_{\mathrm{o},\alpha\beta}\delta_{\alpha\beta} - \epsilon_{\alpha\beta}\eta'_{\mathrm{o}}\end{aligned} \tag{S5.65}$$

$$\begin{aligned}\langle \hat{\sigma}_{T,\alpha}(\mathbf{k},\omega)\hat{\sigma}^*_{L,\beta}(\mathbf{k}',\omega')\rangle &= \hat{k}^{\perp}_i\hat{k}_j\hat{k}_k\hat{k}_l\langle \hat{\sigma}^R_{ij,\alpha}(\mathbf{k},\omega)\hat{\sigma}^{R,*}_{kl,\beta}(\mathbf{k}',\omega')\rangle \\ &= (-i\tilde{\omega}\eta_{\mathrm{o},\alpha\beta}\delta_{\alpha\beta} + \epsilon_{\alpha\beta}\eta'_{\mathrm{o}})\hat{k}^{\perp}_i\hat{k}_l\epsilon_{il} = -i\tilde{\omega}\eta_{\mathrm{o},\alpha\beta}\delta_{\alpha\beta} + \epsilon_{\alpha\beta}\eta'_{\mathrm{o}}\end{aligned} \tag{S5.66}$$

其中$\hat{k}^{\perp}_i = \epsilon_{ij}\hat{k}_j$。当$\alpha \neq \beta$满足$\langle\hat{\sigma}_{T,\alpha}(\mathbf{k},\omega)\hat{\sigma}^*_{L,\beta}(\mathbf{k}',\omega')\rangle = \langle\hat{\sigma}_{L,\beta}(\mathbf{k},\omega)\hat{\sigma}^*_{T,\alpha}(\mathbf{k}',\omega')\rangle^*$时，跨物种协方差为。总之，定义$\hat{\boldsymbol{\sigma}} = (\hat{\boldsymbol{\sigma}}_L, \hat{\boldsymbol{\sigma}}_R)^T$、$\hat{\boldsymbol{\xi}} = (\hat{\boldsymbol{\xi}}_L, \hat{\boldsymbol{\xi}}_R)$，噪声的协方差为

$$\begin{aligned}\langle \hat{\boldsymbol{\sigma}}\hat{\boldsymbol{\sigma}}^{\dagger}\rangle &= 2k_BT_{\mathrm{eff}}(2\pi)^{d+1}\delta(\mathbf{k}-\mathbf{k}')\delta(\omega-\omega')\begin{pmatrix} \boldsymbol{\eta}+\boldsymbol{\zeta} & i\tilde{\omega}\boldsymbol{\eta}_{\mathrm{o},s} - \boldsymbol{\eta}_{\mathrm{o},a} \\ -i\tilde{\omega}\boldsymbol{\eta}_{\mathrm{o},s} + \boldsymbol{\eta}_{\mathrm{o},a} & \boldsymbol{\eta} \end{pmatrix}, \\ \langle \hat{\boldsymbol{\xi}}\hat{\boldsymbol{\xi}}^{\dagger}\rangle &= 2k_BT_{\mathrm{eff}}(2\pi)^{d+1}\delta(\mathbf{k}-\mathbf{k}')\delta(\omega-\omega')\begin{pmatrix} \boldsymbol{\Lambda} & 0 \\ 0 & \boldsymbol{\Lambda} \end{pmatrix},\end{aligned} \tag{S5.67}$$

密度和速度分量的协方差可以通过矩阵$\mathbf{M}$的逆矩阵以及噪声协方差得到：

$$\langle \begin{pmatrix} \delta\mathbf{n} \\ \hat{\mathbf{u}}_L \\ \hat{\mathbf{u}}_T \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \delta\mathbf{n} \\ \hat{\mathbf{u}}_L \\ \hat{\mathbf{u}}_T \end{pmatrix}^{\dagger} \rangle = \mathcal{D}\mathbf{M}^{-1} \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & (\boldsymbol{\eta}+\boldsymbol{\zeta})k^2 + \boldsymbol{\Lambda} & (i\tilde{\omega}\boldsymbol{\eta}_{\mathrm{o},s} - \boldsymbol{\eta}_{\mathrm{o},a})k^2 \\ 0 & (-i\tilde{\omega}\boldsymbol{\eta}_{\mathrm{o},s} + \boldsymbol{\eta}_{\mathrm{o},a})k^2 & \boldsymbol{\eta}k^2 + \boldsymbol{\Lambda} \end{pmatrix} (\mathbf{M}^{-1})^{\dagger} \tag{S5.68}$$

其中$\mathcal{D} = 2k_BT_{\mathrm{eff}}(2\pi)^{d+1}$。或者，如果我们只关注速度关联，则可以使用$\mathbf{M}_u$的逆矩阵以及噪声协方差：

$$\langle \begin{pmatrix} \hat{\mathbf{u}}_L \\ \hat{\mathbf{u}}_T \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \hat{\mathbf{u}}_L \\ \hat{\mathbf{u}}_T \end{pmatrix}^{\dagger} \rangle = \mathbf{M}_u^{-1} \begin{pmatrix} (\boldsymbol{\eta}+\boldsymbol{\zeta})k^2 + \boldsymbol{\Lambda} & (i\tilde{\omega}\boldsymbol{\eta}_{\mathrm{o},s} - \boldsymbol{\eta}_{\mathrm{o},a})k^2 \\ (-i\tilde{\omega}\boldsymbol{\eta}_{\mathrm{o},s} + \boldsymbol{\eta}_{\mathrm{o},a})k^2 & \boldsymbol{\eta}k^2 + \boldsymbol{\Lambda} \end{pmatrix} (\mathbf{M}_u^{-1})^{\dagger} \tag{S5.69}$$

基于粒子模拟数据，我们将傅里叶空间中的速度投影到纵向和横向方向上，并通过对 80 条相互独立的模拟轨迹取平均来计算它们的关联。对于每个波矢$\mathbf{k}$和频率 $\omega$，关联矩阵计算如下：

$$C^{\alpha\beta}_{\gamma\delta}(\mathbf{k},\omega) = \frac{1}{N_{\mathrm{traj}}}\sum_{r=1}^{N_{\mathrm{traj}}} \hat{u}^{\alpha,(r)}_{\gamma}(\mathbf{k},\omega)\hat{u}^{\beta,(r)*}_{\delta}(\mathbf{k},\omega), \tag{S5.70}$$

其中$\gamma, \delta = \{L, T\}$表示速度分量，$r$表示不同的轨迹。图 S10 展示了在$\omega\tau_\Gamma = 15.7$和 31处速度关联的实部和虚部。4. 结果证实了各向同性和宇称交换对称性，这要求速度关联$C^{\alpha\beta}_{\gamma\delta}$具有旋转不变性，并且仅取决于$|\mathbf{k}|$、$C^{AA}_{LL} = C^{BB}_{LL}$、$C^{AA}_{TT} = C^{BB}_{TT}$、$C^{AB}_{LL} = C^{BA}_{LL}$和$C^{AB}_{TT} = C^{BA}_{TT}$为实数，而$C^{AA}_{LT} = -C^{BB}_{LT}$和$C^{AB}_{LT} = -C^{BA}_{LT}$为复数。

我们使用公式（S5.64）和（S5.69）将模拟得到的速度关联拟合到涨落流体动力学模型，并满足公式（S5.59中的对称性约束。在与图 S10 相同的频率下，物种空间中的所得速度关联如图 S11所示。由于谱在响应系数和噪声振幅同时进行缩放时保持不变，我们通过设定$\Lambda_{AA} = \Lambda_{BB} = 1$来固定总体尺度，同时拟合$\Lambda_{AB} = \Lambda_{BA}$。为确保$\mathbf{K}$的正定性，我们要求$\boldsymbol{\eta}$、$\boldsymbol{\zeta}$和$\boldsymbol{\Lambda}$满足$K_{\pm}$、$\eta_{\pm}$、$\zeta_{\pm} > 0$、$|\Lambda_{AB}| < 1$。我们还要求$\tau$、$\omega_0$。我们要求噪声协方差在拟合所覆盖的波矢和频率范围内具有半正定性。我们将拟合限制在满足$\omega\tau_\Gamma < 100$的最低时间频率，以聚焦于较低频率

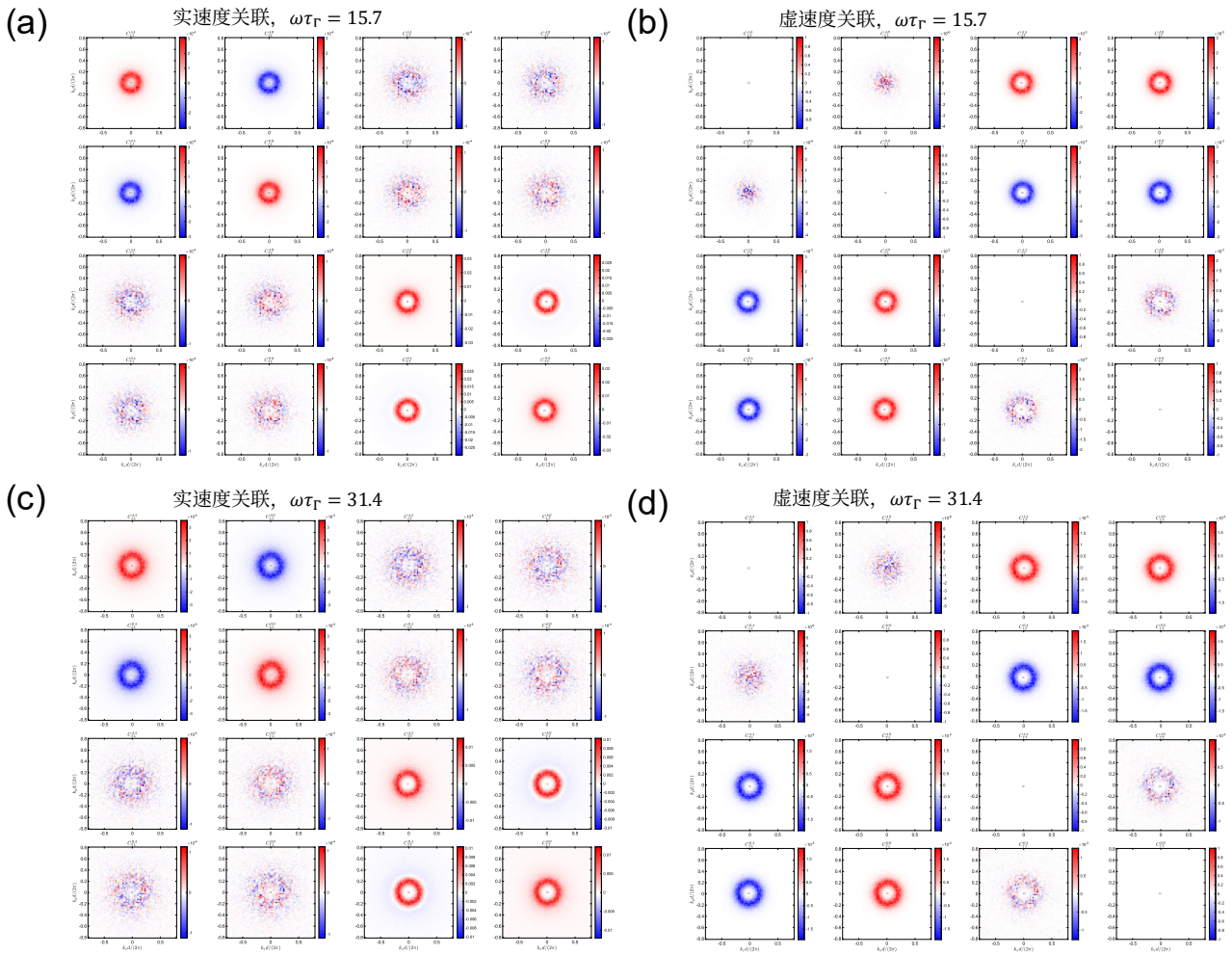


图 S10. **微观模拟测得的速度关联。**（**a**）$\omega\tau_\Gamma = 15.7$处速度关联的实部。行和列依次标示第一个速度和共轭的第二个速度，顺序为$\hat{u}_L^A$、$\hat{u}_L^B$、$\hat{u}_T^A$、$\hat{u}_T^B$。所示波矢坐标为 $k_x\sigma/(2\pi)$和 $k_y\sigma/(2\pi)$，每个热图色条均采用各自的刻度。（**b**） $\omega\tau_\Gamma = 15.7$处速度关联的虚部。（**c**） $\omega\tau_\Gamma = 31.4$处速度关联的实部。（**d**） $\omega\tau_\Gamma = 31.4$处速度关联的虚部。

区间的涨落流体动力学模型。理论谱和测量谱分别对每个径向分箱中采样的波数 $k_l < |\mathbf{k}| < k_{l+1}$进行平均。厄米相关矩阵的全部16个独立分量都纳入加权最小二乘拟合，最小化 $J(\theta) = \sum_{i,\ j,\ \ell} w_j[\hat{y}_{ij\ell}(\theta) - y_{ij\ell}]^2$，其中 $y_{ij\ell}$和 $\hat{y}_{ij\ell}(\theta)$分别表示波数 $i$、关联通道 $j$和时间频率 $\ell$下的测量关联与预测关联， $\theta$表示拟合参数。通道权重 $w_j$ 保持不变，并根据相应的对角关联尺度进行归一化。

通过对优化过程使用100个独立初始猜测得到的最佳拟合，其无权全矩阵相对误差为 $E = \|\hat{y} - y\|/\|y\| = 0.259$，其中范数包含所有拟合波数、频率和相关分量。我们通过在1000个自助法样本上重复优化来估计参数不确定性：随机重新抽样时间频率和相关通道，同时保留所有波数。所报告的拟合参数95%百分位区间由997次收敛拟合得到，反映了对所选谱的敏感性。完整数据的最佳拟合值为 $\eta_o/\eta = -0.029$、 $\eta'_o/\eta = -0.090$和 $\eta_o/\eta'_o = 0.324$。在收敛的自助法样本上拟合得到的参数平均值为 $\eta_o/\eta = -0.022$、 $\eta'_o/\eta = -0.094$、 $\eta_o/\eta'_o = 0.25$。95%自助法百分位区间

$$\frac{\eta_o}{\eta} \equiv \frac{\eta^o_{AA}}{\eta_{AA}} \in [-0.039,\ 0], \qquad \frac{\eta'_o}{\eta} \equiv -\frac{\eta^o_{AB}}{\eta_{11}} \in [-0.143,\ -0.057], \qquad \frac{\eta_o}{\eta} = -\frac{\eta^o_{AA}}{\eta^o_{AB}} \in [0, 0.570] \tag{S5.71}$$

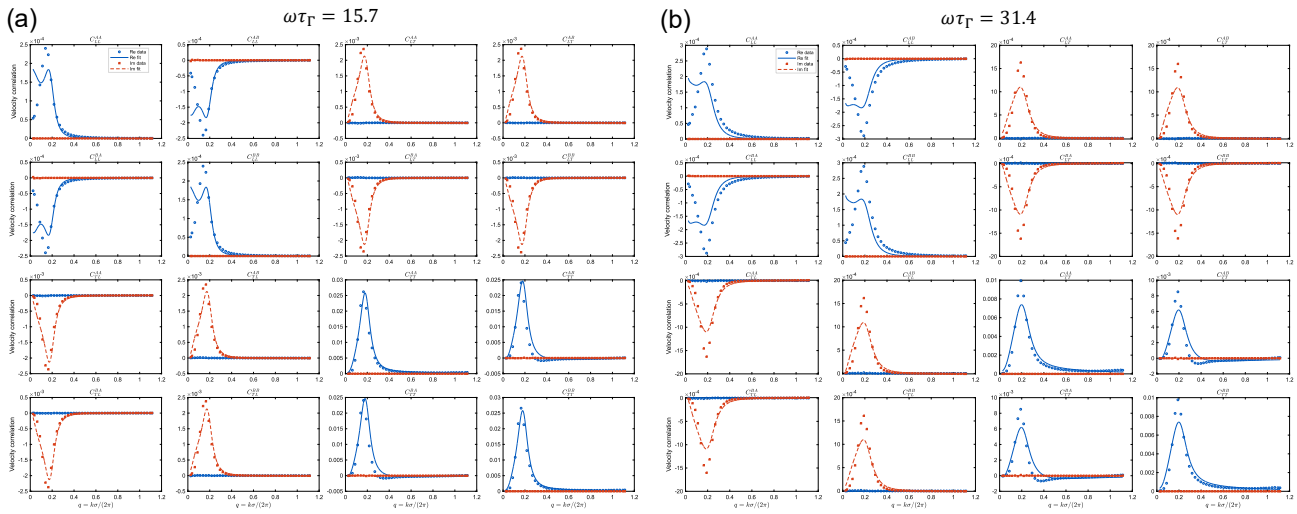


图 S11。**将微观模拟结果与理论预测的速度关联进行拟合。（a）**在 $\omega\tau_\Gamma = 15.7$ 处的径向平均速度关联。蓝色圆点/实线曲线表示实部；橙色方块/虚线曲线表示虚部。圆点和方块来自模拟。实线和虚线曲线来自拟合理论。**（b）**在 $\omega\tau_\Gamma = 31.4$ 处相应的径向比较，使用相同的拟合参数。

图 S12 显示 $K_{AA}$ 与 $K_{AB}$、$\eta_{AA}$ 与 $\eta_{AB}$，以及 $\zeta_{AA}$ 与 $\zeta_{AB}$之间存在很强的关联，并且 $K_{AA} \approx K_{AB}$、$\eta_{AA} \approx \eta_{AB}$、$\zeta_{AA} \approx \zeta_{AB}$。$K_{AA} \approx K_{AB}$ 表明，被动自由能不会促进或抑制A和B的混合；这符合预期，因为被动A和B是相同的，并且不存在促进A和B混合的热噪声。$\eta_{AA} \approx \eta_{AB}$（$\eta \approx \eta'$）和 $\zeta_{AA} \approx \zeta_{AB}$ 表明，被动应力响应由两个组分的集体模态控制。请注意，格林-久保分析还显示，自剪切黏度与交叉剪切黏度之比始终较大 $\eta'/\eta = 0.686$。

### E. 二元混合物的连续介质模拟

为考察体相分相的开始过程，我们使用广义黏度张量对完整的双流体模型进行模拟。不同于第S4E 节中的不可压缩连续介质模拟（其从具有预先存在界面的分离态开始），在这里的完整模拟中，我们去除不可压缩假设，使密度变化能够从初始均匀混合物中发展出来。

我们采用基于理想混合熵的简单自由能模型。定义无量纲密度 $\tilde{n}_\alpha = n_\alpha/\bar{n}$，其中 $\bar{n}$ 为最大密度，则自由能密度为 $f(n) = A\left(\tilde{n}_A \ln \tilde{n}_A + \tilde{n}_B \ln \tilde{n}_B + (1-\tilde{n}_A-\tilde{n}_B)\ln(1-\tilde{n}_A-\tilde{n}_B)\right) + \frac{\kappa}{2}\left(|\nabla\tilde{n}_A|^2 + |\nabla\tilde{n}_B|^2\right)$。每种物种的自黏度$\alpha$ 随局部密度线性变化，其中为 $\eta_{\alpha\alpha} = \bar{\eta}_{\alpha\alpha}\tilde{n}_\alpha$、$\eta_{\mathrm{o},\alpha\alpha} = \bar{\eta}_{\mathrm{o},\alpha\alpha}\tilde{n}_\alpha$，其中为 $\bar{\eta}_{AA} = \bar{\eta}_{BB}\bar{\eta}$、$\bar{\eta}_{\mathrm{o},AA} = -\bar{\eta}_{\mathrm{o},BB} = \bar{\eta}_{\mathrm{o}}$。我们假设交叉黏度取决于两种组分的局部重叠，

$$\eta' = \bar{\eta}'\frac{\tilde{n}_A\tilde{n}_B}{\tilde{n}_A+\tilde{n}_B}, \quad \eta'_{\mathrm{o}} = \bar{\eta}'_{\mathrm{o}}\frac{\tilde{n}_A\tilde{n}_B}{\tilde{n}_A+\tilde{n}_B}. \tag{S5.72}$$

我们采用与第 S2B 节相同的无量纲化，其中特征长度尺度为 $\lambda$，速度为 $u_0$，参考活性力矩系数为 $\Pi_0 = \eta_R\Omega_0$。相应的时间、黏度和摩擦尺度为 $\tau_0 = \lambda/u_0$，$\eta_0 = \Pi_0\bar{n}\lambda/u_0$，以及 $\Gamma_0 = \eta_0/\lambda^2$。我们设定 $\lambda = 0.1$，$u_0 = 1$，以及 $\Pi_0 = 1$，得到 $\tau_0 = 0.1$，$\eta_0 = 0.1$，以及 $\Gamma_0 = 10$。改变材料系数时，这些参考尺度保持不变。

对于图 S13 中的模拟，两个组分具有相同的自剪切黏度系数和基底摩擦系数，其中 $\bar{\eta}/\eta_0 \equiv \bar{\eta}_{AA}/\eta_0 = \bar{\eta}_{BB}/\eta_0 = 1.5$ 且 $\Gamma\lambda^2/\eta_0 = 5$。体黏度和显式种间阻力均为零，其中 $\Gamma_{f0}\bar{n}/\Gamma = 0$。主动转矩大小相等、方向相反，其无量纲强度为 $\Omega_A/\Omega_0 = +10$和 $\Omega_B/\Omega_0 = -10$。自由能参数为 $A/\Pi_0 = 0.8$ 和 $\kappa\bar{n}/(A\lambda^2) = 0.3125$。

模拟从一个受到微弱扰动的均匀混合物开始初始化，其中 $\tilde{n}_A = 0.4+\delta n_A$ 和 $\tilde{n}_B = 0.4-\delta n_B$，其中 $\delta n_A$ 和 $\delta n_B$ 是均值为零且最大幅值为 0。01 的不相关随机空间场。在 $\tilde{n}_A = 0.4$ 和 $\tilde{n}_B = 0.4$的均匀态下，奇黏度固定为 $\eta_{\mathrm{o}}/\eta \equiv \eta_{\mathrm{o,AA}}/\eta_{AA} = -\eta_{\mathrm{o,BB}}/\eta_{BB} =$

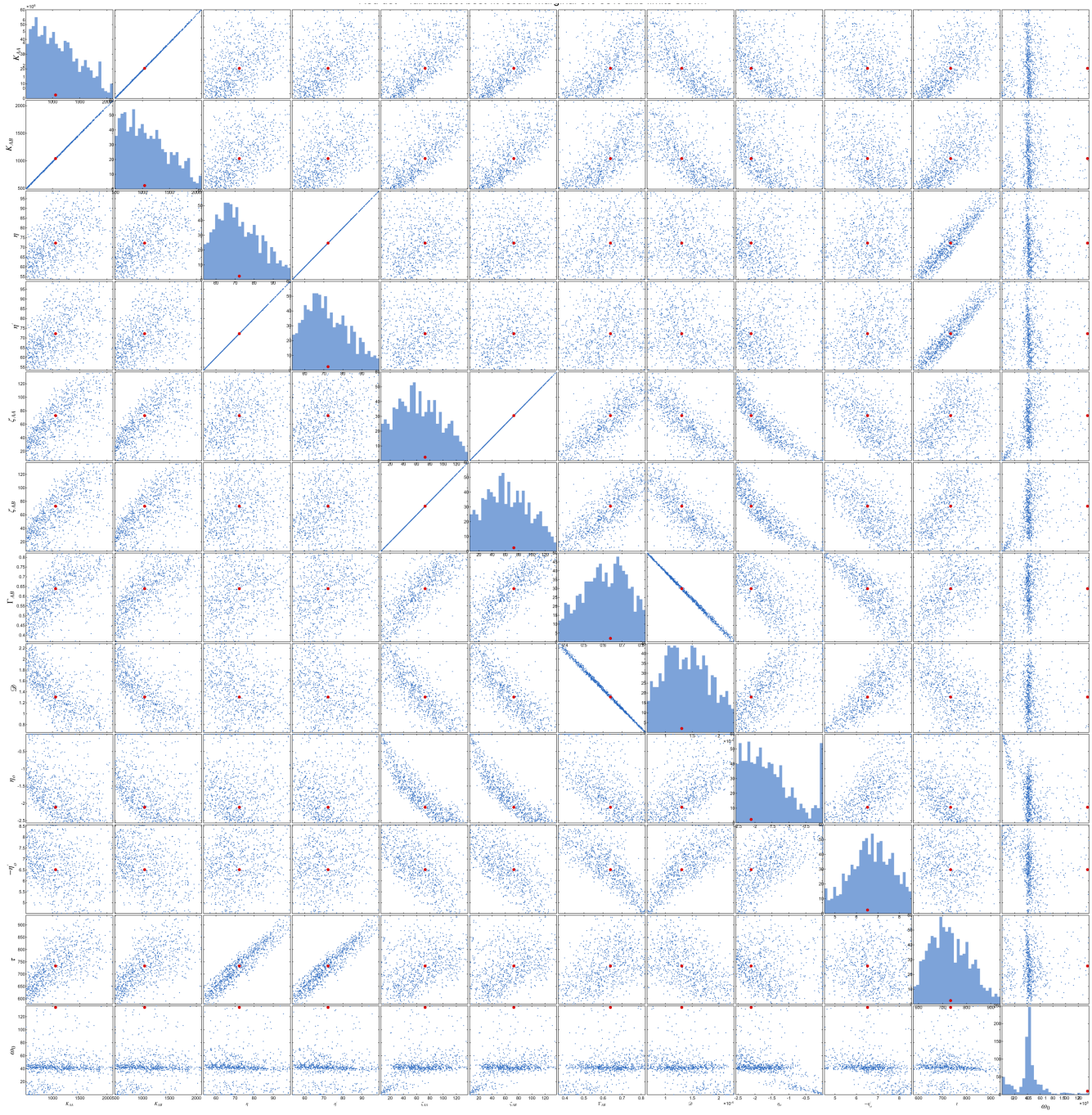

图 S12. **拟合参数的自助法分布**。所示分布采用了997组收敛的优化结果。红点标示全数据的最佳拟合估计。每个坐标轴均限定在各自的边际第5–95百分位数范围内。

$-0.583$，而 $\eta'/\eta = 0.333$。我们改变无量纲交叉宇称破缺系数 $\bar{\eta}'_{\mathrm{o}}/\bar{\eta}_0 = 0$、$-3.75$、$+3.75$，分别对应于初始均匀态下的 $\eta'_{\mathrm{o}}/\eta = 0$、$-1.25$、$+1.25$，同时保持所有其他参数不变。

如图S13所示，$\eta'_{\mathrm{o}}/\eta = 0$ 和 $+1.25$条件下均匀态保持稳定，而在 $\eta'_{\mathrm{o}}/\eta = -1.25$条件下，组分涨落增大并发展出相分离。在不稳定情形下，

$$\eta_{\mathrm{o}} - \eta'_{\mathrm{o}} > 0, \tag{S5.73}$$

正如线性稳定性分析所得的分相条件所要求的那样。重要的是，这也是从粒子系统的 Green–Kubo测量中独立获得的关系，其中二者 $\eta_{\mathrm{o}}$

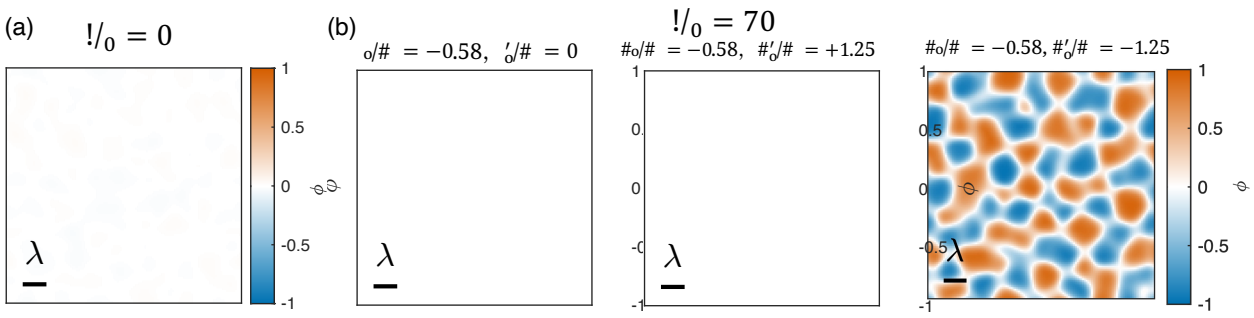


图 S13。**二元体相动力学的可压缩连续介质模拟。（a）** $t/\tau_0 = 0$处的初始构型，由经过微扰的均匀二元态生成，其中 $n_A = 0.4 + \delta n$ 和 $n_B = 0.4 - \delta n$。**（b）** $t/\tau_0 = 70$ 处的组分场，对于 $\eta_o'/\eta = 0$、$+1.25$、$-1.25$，其中 $\Omega > 0$ 组分的 $\eta_o/\eta = -0.583$ 保持不变。对于$|\eta_o'|/\eta = -1.25$会发生分相，此时 $\eta_o$、$\eta_o' < 0$ 和 $|\eta_o'| > |\eta_o|$，与 Green–Kubo测量和线性失稳条件一致。色标表示组分 $\phi = (n_A - n_B)/(n_A + n_B)$，其中正值和负值分别对应顺时针组分和逆时针组分的富集。

和 $\eta_o'$ 具有相同的符号，而 $|\eta_o'| > |\eta_o|$。由此产生的组分涨落增长为相分离畴，在定性上与基于智能体的模拟中观察到的分相起始过程一致。总的来说，这些结果表明，从微观动力学中推断出的宇称破缺黏度$\eta_o$、$_{\alpha\beta}$ 在连续介质模型中产生了体相去混合失稳开始所需的关系，这与第S4节的不可压缩模拟结果相互补充；后者刻画了后期动力学。

[S1] M. Han、M. Fruchart、C. Scheibner、S. Vaikuntanathan、J. J. de Pablo 和 V. Vitelli，《自然·物理》17，1260（2021年）。[S2] M. Fruchart、C. Scheibner 和 V. Vitelli，《凝聚态物理年度评论》14，471（2023年）。[S3] D. Loi、S. Mossa 和 L. F. Cugliandolo，《物理评论E》77，051111（2008）。[S4] M. Fruchart、M. Han、C. Scheibner 和 V. Vitelli，《奇异理想气体：由非厄米动理学理论得出的霍尔黏度和热导率》（2022），arXiv:2202.02037 [cond-mat.stat-mech]。[S5] Q. Yang、H. Zhu、P. Liu、R. Liu、Q. Shi、K. Chen、N. Zheng、F. Ye 和 M. Yang，《物理评论快报》126，198001（2021年）。[S6] Y. Ding、B. Wang、Q. Yang、Z. Zhao、S. Komura、R. Seto、M. Yang 和 F. Ye，《研究》7，0356（2024年）。[S7] V. Soni、E. S. Bililign、S. Magkiriadou、S. Sacanna、D. Bartolo、M. J. Shelley 和 W. T. M. Irvine，《自然·物理》15，1188（2019年）。[S8] U. Marini Bettolo Marconi、A. Petrini、R. Maire 和 L. Caprini，《新物理学杂志》28，064401（2026年）。[S9] L. Neville、J. Eggers 和 T. B. Liverpool，《物理评论快报》137，088302（2026年）。[S10] S. Wang 和 A. M. Ardekani，《物理评论E》87，063010（2013）。[S11] N. H. P. Nguyen、D. Klotsa、M. Engel 和 S. C. Glotzer，《物理评论快报》112，075701（2014年）。[S12] T. Khain、C. Scheibner、M. Fruchart 和 V. Vitelli，《流体力学杂志》934，A23（2022年）。