arXiv:2301.01884v2 [cond-mat.mes-hall] 5 Oct 2023

腔体调控铁电性中的局域涨落

Jonathan B. Curtis[1, 2, *] Marios H. Michael,[3] 和 Eugene Demler[4]

[1] *College of Letters and Science, University of California, Los Angeles, CA 90095, USA*

[2] *Department of Physics, Harvard University, Cambridge, MA 02138, USA*

[3] *Max Planck Institute for the Structure and Dynamics of Matter, 22761 Hamburg, Germany*

[4] *Institute for Theoretical Physics, ETH Zurich, 8093 Zurich, Switzerland*（日期：2023年10月6日）

通过共振电磁腔调控量子物质，是实现对材料相及其功能进行调控的一条前景广阔的途径。量子顺电体绝缘体——即几乎具有铁电性的材料——是特别有希望的候选体系，因为它们具有强烈涨落的集体模，且这些集体模与电场直接耦合。在本研究中，我们探究了这种可能性，研究的体系由夹在两面高品质金属镜之间的量子顺电体构成，从而形成法布里–珀罗型腔体。通过建立完整的多模连续介质描述，我们得以针对多种系统尺寸和温度，以空间分辨的方式研究腔体的影响。令人惊讶的是，我们发现，一旦纳入横向模连续谱，腔体最终会抑制铁电关联。这种效应源于腔体边界对横向光子的屏蔽，因此局限于顺电样品的表面。我们还探究了这一效应的温度依赖性，发现它在高温下消失，这表明它是一种纯粹的量子力学效应。我们将这一结果与卡西米尔力和范德瓦耳斯力的计算联系起来，并指出它们与量子顺电体中的偶极涨落密切相关。我们的结果基于一种通用形式体系，预期具有广泛适用性，为研究包含多种材料和相的异质结构中的量子电动力学铺平了道路。

一、引言

通过光学手段调控量子材料的性质，有望设计和开发新型技术，并创造出原本难以获得和研究的物质相。理想情况下，我们希望将其视为在固体物理学工具箱中增添一个新的“调控旋钮”，就像温度、压力、外场和扭转角一样，从而能够探索新的物理系统和器件结构 [1]。例如，强电磁辐射可以诱导非平衡物质相并产生新的相图，有时这些相图在平衡态中并无对应物 [2–13]。然而，通过非平衡途径实现光学调控存在诸多缺点，阻碍了其实际应用，其中主要问题包括加热、光学访问以及复杂的理论建模。因此，人们希望在不脱离热平衡的情况下，实现类似程度的光学调控。最近有观点提出，可以通过使用光学腔、谐振器和超材料来塑造电磁涨落的环境，从而实现这一目标 [14, 15]。近期已有许多系统被认为适合以这种方式进行调控，包括超导体 [6, 16–18], 、激子绝缘体 [19],、反铁磁体 [20, 21], 、自旋液体 [22], 、半导体 [23],、量子霍尔流体 [24], 和铁电体 [25–29],；此外，还有更多系统被提出可实现材料激发与光学激发之间的强耦合 [30, 31]。近期关于 $1T$-TaS_2 金属-绝缘体转变的实验，似乎也观察到了腔体调控转变温度的有希望迹象 [32]。实验还发现，当非常规超导体与量子电磁浴强耦合时，会出现令人着迷的现象 [33, 34]。

铁电体是尤其有前景的候选体系，因为相关涨落——声子极化激元——即使在原子尺度上，也能通过电偶极跃迁与电磁场直接强烈耦合 [31, 35–37]。此外，还有不少颇具吸引力的候选体系，例如 $SrTiO_3$ [38–42] 以及各种莫尔材料和范德华材料 ́e [43–47] ，它们可能适用于原理验证实验。人们认为，本征 $SrTiO_3$ 是一种量子顺电体（QPE） [38–42], ，恰好处于铁电相的边界，其长程有序被量子涨落所抑制。已有研究表明，应变、化学处理和同位素取代都能使该体系越过临界点，进入有序相 [39], ；近期研究还发现，共振光激发晶格 [40, 48]似乎也能诱导体系转变至有序相 [49, 50], ，这使其成为展示腔体调控相图的理想候选体系 [25, 26, 28]。以往的理论研究大多局限于单模、偶极耦合和平移不变近似。本文将表明，超越这些简化假设会导致定性上截然不同的行为，因此，我们的方法对于描述真实实验是必要的 [51]。

在这项工作中，我们将对涨落量子顺电体的分析扩展至完全多模的 [23], 空间

* jon.curtis.94@gmail.com

分辨系统，超越标准偶极近似——即将电磁场视为在整个样品中均匀的标准光学近似。事实上，这是一个至关重要的技术进展，由此得出的多项预测与以往的简化模型截然不同。借助与卡西米尔-波尔德力和范德华力研究之间的联系，我们得以高效求解包含连续电磁模式的完整多模问题。这样做后，我们发现，腔体的存在实际上会抑制系统中的铁电涨落——这与基于单模或少数几模计算所得的预期恰恰相反。这一出人意料的结果对未来有关腔体控制铁电性以及潜在其他物质相的实验具有重要意义 [32–34]。

关键思路是利用涨落耗散关系，将问题重新表述为介电响应及其对材料参数的变分依赖，从而用广为人知的、随频率变化的电场关联函数来概括电磁涨落的影响。这种关联函数的行为已得到深入研究，其研究可追溯至关于卡西米尔力的开创性工作 [52–55]，如今已有详尽的文献记录，并经过实验验证。事实上，对材料中的量子压电效应涨落进行腔体调控，与利用腔体改变腔内虚偶极激发之间范德瓦耳斯力的问题密切相关 [56]。此外，我们认为，只要充分了解介电常数的色散关系 $\epsilon(\omega)$，就很容易将该方法扩展至纳入声子损耗、各向异性和模耦合；还可以进一步扩展至更复杂的异质结构几何，例如通过表征界面处的反射系数 [55]，研究量子顺电体与金属、空气或更奇特的二维系统之间的界面。从粗略的角度看，这个问题类似于计算卡西米尔力，但我们不计算能量随边界间距的变化，而是固定边界条件，直接计算腔体内的光子和声子涨落。

得到这些一般关系后，我们采用该方法计算 QPE 涨落的局域行为，考虑一个法布里–珀罗型系统，其中包含理想金属边界夹着一个 QPE，如图所示。1为横截面示意图。我们的关键结果是，实际上，样品边界附近的声子涨落 $\langle \mathbf{Q}^2(\mathbf{r}\ t)\rangle$ 会增大，导致软模横向频率 Ω_T 蓝移。这是由声子模的非谐耦合引起的，其特征可用局域位移场 $\mathbf{Q}(\mathbf{r}\ t)$描述。这会导致整体厚度依赖性；在较薄的腔体中，这种依赖可能十分显著，并使低频介电常数$\epsilon(0)$降低，表明软极性模发生硬化。

我们还发现，这种效应——表面涨落与体涨落之间的差异——在较高

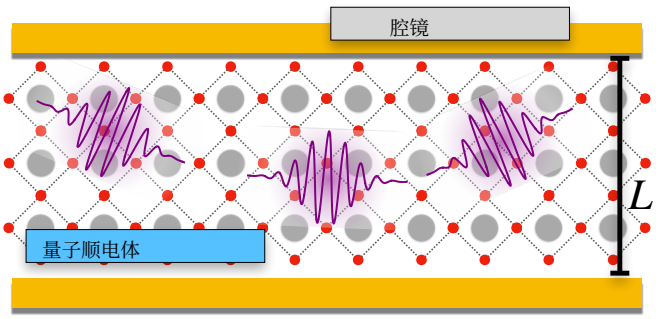

图 1. 腔体示意图。两块理想金属板位于 xy 平面，位置为 $z = \pm L/2$；电磁场与声子模共存于其内部。该系统在 xy 平面内具有平移对称性，因此面内动量 $\mathbf{q}$守恒，且可取其方向沿 $\mathbf{q} \parallel \hat{\mathbf{e}}_x$，并在 $z = \pm L/2$处满足理想金属边界条件。由于金属边界条件，波函数的光子部分在边界附近受到抑制，从而增强了声子涨落。

温度下会消失，这表明这种效应确实源于量子效应，并且在 $T \gtrsim \hbar\Omega_T/K_B$ 后应会减弱。对于 $SrTiO_3$，这类材料（Ω_T ∼2 太赫兹），这为实验温度设定了一个重要上限，大约为 100 开尔文。

本文其余部分的结构如下。在第II 节中，我们利用涨落耗散定理将声子涨落与材料的介电响应联系起来。我们首先在第IIA节采用实时间形式进行推导，随后在第IIB节将其改写为适用于有限温度计算的松原轴形式。在第III 节中，我们展示了对于体平移不变系统，我们的结果如何与基于声子极化激元的更熟悉方法相联系。具体而言，在第IIIA 节中，我们说明在高温下光子会解耦，这表明腔体调控是量子效应的一种体现。在第IV 节中，我们将这一技术应用于推导法布里-珀罗几何中的局域 QPE 涨落，该几何结构不保持平移对称性。最后，我们将在第V节讨论超越腔体-QPE 模型的结果的一般性方面，并指出未来研究的潜在方向。

II. 涨落耗散定理

以下我们将重点讨论局域的 [57], 各向同性极性声子模。特别是，由于声子群速度远低于光子速度，因此无色散声子模近似适用于研究电动力学效应。超越这一近似并纳入声子色散，是未来研究的一个有趣方向；在非常接近铁电临界点或处于有序相时，这一点可能尤为重要，而这些情况我们将在本文中

不作研究。

因此，我们考虑一个局域极性声子模**Q(r)**模型，其横向光学（TO）模频率为 Ω_T，有效电荷为 η，并与由**E** 和**B**描述的电磁场耦合。描述该系统最简单的方式是使用能够导出运动方程的拉格朗日量。我们有

$$\mathcal{L} = \mathcal{L}_{\rm EM} + \mathcal{L}_{\rm ph} + \mathcal{L}_{\rm int}. \tag{1}$$

麦克斯韦拉格朗日量为

$$\mathcal{L}_{\rm EM} = \frac{1}{2}\mathbf{E}^2 - \frac{1}{2}\mathbf{B}^2. \tag{2}$$

用规范势表示时，电磁场可写为

$$\mathbf{E} = -\nabla A_0 - \partial_t \mathbf{A} \tag{3a}$$
$$\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A}. \tag{3b}$$

此处及下文均采用 $\hbar = c = k_B = \epsilon_0 = 1$ 的单位制。

在不存在色散时，声子拉格朗日量是纯局域的，简单写为:

$$\mathcal{L}_{\rm ph} = \frac{1}{2}\left[(\partial_t \mathbf{Q})^2 - \Omega_0^2 \mathbf{Q}^2\right] - \frac{\lambda}{4}\left(\mathbf{Q}^2\right)^2, \tag{4}$$

其中 Ω_0 是裸 TO 模频率，λ 是声子-声子相互作用强度。由于对称性，在四次及以下阶、时间导数二阶及以下阶的项中，仅允许这些局域项。

最后，我们得到声子与电场之间的偶极耦合。声子位移场**Q** 产生极化，继而与**E**耦合，其形式为

$$\mathcal{L}_{\rm int} = +\eta \mathbf{Q} \cdot \left[-\nabla A_0 - \partial_t \mathbf{A}\right]. \tag{5}$$

这里，η 是光-物质相互作用常数，除其他因素外，它决定了纵向光学（LO）与横向光学频率之间的劈裂大小；这种劈裂源于电磁相互作用的库仑部分（即所谓的 LO-TO 劈裂）。在继续之前，为了进行计算，我们必须选定一种规范。本文采用“Weyl 规范”，其定义条件为 $A_0 = 0$。

接下来，我们在 Hartree 近似下处理声子非线性，使系统基本上呈线性，不过声子频率会发生重整化，成为

$$\Omega_T^2 = \Omega_0^2 + \lambda \langle \mathbf{Q}^2(\mathbf{r}, t)\rangle. \tag{6}$$

一般而言，我们允许**Q**存在空间变化的涨落，因此声子频率可能发生非均匀重整化，这正是本文研究的主题。

因此，我们的首要目标是计算空间分辨的声子涨落，$\langle \mathbf{Q}^2(\mathbf{r}\ t)\rangle$。我们通过熟悉的线性响应形式来实现，即通过求解对外部微扰的因果响应，获得**Q** 的平衡涨落。因此，我们引入源场 **F(**x**)**，它通过以下方式与声子模耦合:

$$\mathcal{L}_{\rm source} = \mathbf{F}(\mathbf{r}, t) \cdot \mathbf{Q}(\mathbf{r}, t), \tag{7}$$

使得

$$\hat{\mathbb{D}}^R(x, x') = -\left.\frac{\delta\langle \mathbf{Q}(x)\rangle}{\delta \mathbf{F}(x')}\right|_{\mathbf{F}=0} = -i\theta(t-t')\langle[\mathbf{Q}(x), \mathbf{Q}(x')]\rangle \tag{8}$$

因果响应函数。此处及下文中，只要不易引起混淆，我们将用 $x = (\mathbf{r}\ t)$ 表示时空四维坐标，而用 **r**表示空间三维坐标。由此，我们可以应用涨落耗散关系 [58] 得到

$$\langle \mathbf{Q}(x) \cdot \mathbf{Q}(x)\rangle = -\int \frac{d\omega}{2\pi} \coth\frac{\beta\omega}{2} \Im\left[\mathbf{tr}\hat{\mathbb{D}}^R(\mathbf{r}, \mathbf{r}; \omega)\right]. \tag{9}$$

这使我们能够表征声子涨落的**局域**密度。

A. 实时运动方程

相关的运动方程可以写出，其中包括作用于声子场的源项。由此可得频域中的方程

$$\left[-\omega^2 + \Omega_T^2\right]\mathbf{Q}(\mathbf{r}, \omega) = \eta \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) + \mathbf{F}(\mathbf{r}, \omega) \tag{10a}$$
$$+ i\omega \mathbf{B}(\mathbf{r}, \omega) = \nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) \tag{10b}$$
$$- i\omega\left[\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) + \eta \mathbf{Q}(\mathbf{r}, \omega)\right] = \nabla \times \mathbf{B}(\mathbf{r}, \omega) \tag{10c}$$

我们按如下方式计算**Q** 的响应函数。首先引入**Q(r** ω**)** 的裸响应函数:

$$\chi_0(\omega) = \frac{1}{-\omega^2 + \Omega_T^2}, \tag{11}$$

这样我们便能得到**Q** 的响应:

$$\mathbf{Q}(\mathbf{r}, \omega) = \chi_0(\omega)\left[\eta \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) + \mathbf{F}(\mathbf{r}, \omega)\right]. \tag{12}$$

我们的工作尚未完成，因为我们需要的是声子对**总** 力的响应，而不是对 η**E** +**F**的响应；我们只需要声子对**外部** 力**F**的响应，而该力部分受到电磁场的屏蔽。

这种屏蔽可通过求解电磁场的运动方程得到。我们有

$$+ i\omega \mathbf{B}(\mathbf{r}, \omega) = \nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) \tag{13a}$$
$$- i\omega\left(\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) + \eta\chi_0(\omega)\left[\eta \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) + \mathbf{F}(\mathbf{r}, \omega)\right]\right) = \nabla \times \mathbf{B}(\mathbf{r}, \omega) \tag{13b}$$

第二个方程包含对驱动场的依赖；我们可以消去磁场，推导出一个

关于**E**响应的闭合方程，并据此求出退极化场，进而找到外力作用于声子模所产生的有效力。

我们得到

$$\omega^2\epsilon(\omega)\mathbf{E}(\mathbf{r},\omega)-\nabla\times\nabla\times\mathbf{E}(\mathbf{r},\omega)=-\omega^2\eta\chi_0(\omega)\mathbf{F}(\mathbf{r},\omega). \tag{14}$$

这里我们引入了介电常数

$$\epsilon(\omega)=1+\eta^2\chi_0(\omega). \tag{15}$$

现在我们可以形式上利用它消去电场，得到

$$\mathbf{E}(\mathbf{r},\omega)=\int d^3r'\hat{\mathbb{G}}^R(\mathbf{r},\mathbf{r}';\omega)\left[-\eta\omega^2\chi_0(\omega)\mathbf{F}(\mathbf{r}',\omega)\right] \tag{16}$$

其中

$$\hat{\mathbb{G}}^R(\mathbf{r},\mathbf{r}';\omega)=\left[\omega^2\epsilon(\omega)\mathbb{1}-\nabla\times\nabla\times\right]^{-1}. \tag{17}$$

我们可以根据需要选择方式来计算这个格林函数；对于体系统，使用动量空间函数是合理的。

由光子修饰后的声子的完整响应，

$$\mathbf{Q}(\mathbf{r},\omega)=\int d^3r'\hat{\mathbb{D}}^R(\mathbf{r},\mathbf{r}';\omega)\mathbf{F}(\mathbf{r}',\omega), \tag{18}$$

表示为光子格林函数的函数：

$$\hat{\mathbb{D}}^R(\mathbf{r},\mathbf{r}';\omega)=\chi_0(\omega)\left[\delta^3(\mathbf{r}-\mathbf{r}')\mathbb{1}-\eta^2\omega^2\chi_0(\omega)\hat{\mathbb{G}}^R(\mathbf{r},\mathbf{r}';\omega)\right]. \tag{19}$$

在没有声子色散时，第一项完全局域，并在裸 TO 模频率处出现共振；第二项则涉及系统中声子极化激元的色散，因为其中包含$\epsilon(\omega)$，因此对腔体几何结构敏感。

值得注意的是，我们可以利用以下形式优雅地改写该式

$$-\eta^2\left(\chi_0(\omega)\right)^2=\frac{\delta\epsilon(\omega)}{\delta\Omega_T^2} \tag{20}$$

从而得到

$$\begin{aligned}\hat{\mathbb{D}}^R(\mathbf{r},\mathbf{r}';\omega)=&\chi_0(\omega)\delta^3(\mathbf{r}-\mathbf{r}')\mathbb{1}+\\&\omega^2\frac{\delta\epsilon(\omega)}{\delta\Omega_T^2}\hat{\mathbb{G}}^R(\mathbf{r},\mathbf{r}';\omega).\end{aligned} \tag{21}$$

B. 松原形式

这里给出的结果是通过实时线性响应形式推导得出的，这是最直观的表述方式。在附录A中，我们还用平衡态 Matsubara 频率表述等价地推导了这一结果，并在附录中介绍了第三种推导方法

该方法基于附录B中 Matsubara 自由能泛函的变分过程。

松原频率表示尤其有用，因为它可以将结果更高效地实现为关于松原频率的良态收敛求和。更多细节请参阅相关附录。不过，由于下文的结果会用到这里的最终公式，我们在此给出该公式。

介电函数经解析延拓至玻色子松原频率 $\omega\to i\omega_m=2\pi imT$ 后，形式如下

$$\epsilon(i\omega_m;\mathbf{r})=1+\frac{\eta^2}{\omega_m^2+\Omega_T^2(\mathbf{r})}, \tag{22}$$

从而允许横向光学模频率随位置变化。类似地，未屏蔽声子传播子变为

$$\hat{\mathscr{D}}_0(\mathbf{r},\mathbf{r}';\omega_m)=\frac{1}{\omega_m^2+\Omega_T^2(\mathbf{r})}\delta^3(\mathbf{r}-\mathbf{r}'), \tag{23}$$

而光子传播子变为

$$\hat{\mathscr{G}}(\mathbf{r},\mathbf{r}';\omega_m)=\left[\omega_m^2\epsilon(i\omega_m,\mathbf{r})+\nabla\times\nabla\times\right]^{-1}. \tag{24}$$

结合方程（9）、（21），即可计算局域声子涨落随温度的变化；用松原求和表示会更为简洁：

$$\begin{aligned}\langle\mathbf{Q}^2(\mathbf{r},t)\rangle=&T\sum_{\omega_m}\\&\mathbf{tr}\left[\hat{\mathscr{D}}_0(\mathbf{r},\mathbf{r};\omega_m)+\omega_m^2\frac{\partial\epsilon(i\omega_m,\mathbf{r})}{\partial\Omega_T^2}\hat{\mathscr{G}}(\mathbf{r},\mathbf{r};\omega_m)\right]\end{aligned} \tag{25}$$

请注意，

$$\frac{\partial\epsilon(i\omega_m,\mathbf{r})}{\partial\Omega_T^2}=-\frac{\eta^2}{(\omega_m^2+\Omega_T^2(\mathbf{r}))^2} \tag{26}$$

是负半定的，而方程中的其他项均为正半定。这自然表明，电场实际上会**降低**声子涨落，因为它会从原本未屏蔽的声子中扣除谱权重。我们还看到，该结果可以通过对非奇异项求和来实现，从而大大有助于对此表达式进行数值计算。这与文献 [28], 近期采用的方法有些相似，但此处将其扩展到了多模形式。尽管如此，在这一背景下应用$1/N$ 展开的概念也会很有用。

最终，我们可以将各个量表示为有效频率重整化相对于体相值的形式。

$$\delta\Omega_T^2(\mathbf{r})=\lambda\left[\langle\mathbf{Q}^2(\mathbf{r})\rangle-\langle\mathbf{Q}^2\rangle_{\text{bulk}}\right]. \tag{27}$$

对于每种构型，我们通过提取体相值来实现这一点，该值定义为系统尺寸趋于无穷大时计算得到的值。随后，我们可以直观地展示频率相对于体相值的空间偏差预测。现在，我们粗略估算耦合 λ、动量空间截断 Λ 以及其他相关参数的大小。

C. 参数

按照参考文献 [48], , 我们首先提取非谐势 $U^{(2)}$ 随离子位移坐标 $\mathbf{u}$变化的数值，对于 $SrTiO_3$, , 该值由光谱学估算得到，为 $\nu_T \sim 35$太赫兹^2/pm^2。该值通过非线性太赫兹光谱学测量 $\Omega_T^2(\mathbf{u}) \sim \Omega_T^2 + \nu_T \mathbf{u}^2 + O(\mathbf{u}^4)$ 得出。然而，这与长波长序参量 [59],并无直接联系；通常，该序参量涉及对微观自由度进行复杂的粗粒化。通过量纲分析可知，长波长耦合常数可以通过下式与一个微观参数联系起来： $\lambda \sim \nu_T V_{\text{eff}}/M_{\text{eff}}$其中 M_{eff}是有效质量尺度，V_{eff} 是有效体积尺度。对于我们的粗略模型，我们用单一有效质量来表征该模，并将其取为钛离子质量 $M_{\text{eff}} \sim M_{\text{Ti}} \sim 50$原子质量单位，

最后，按照实空间重整化群方法的思路，我们预期，在序参量与微观自由度之间的关系中出现的有效体积 V_{eff} 应与我们为模型设定的动量空间截断有关，$\Lambda \sim 1/a$ 其中 a 是粗粒化“块”的大小。因此，我们估算 $V_{\text{eff}} \sim 1/\Lambda^3 \sim a^3$。由此，我们将长波耦合识别为 $\lambda = a^3 \nu_T / M_{\text{Ti}}$。这给出了依赖截断的估算：

$$\lambda = 32 \times 10^4 \text{THz}^3 a^3, \tag{28}$$

本文采用这一估算。

最后，由于忽略梯度项 $\sim \nabla \mathbf{Q}$，我们的模型将声子涨落视为纯粹的局域涨落。实际上，我们预计，这一近似在低于某个长度尺度 a时会失效，该尺度大致与铁电序参量$\mathbf{Q(r)}$的关联长度有关。一方面，在临界点附近，随着关联在更长的长度尺度上发展，这一长度尺度可能会变大。另一方面，要研究长度尺度为 $l < a$ 的物理，需要采用比本文所建立的理论更复杂的理论。本文关注宏观物理，样品尺寸约为 $L \sim 50$微米或更大；因此，我们将采用 $a = 5$微米的截断。

未来，特别值得研究的是进一步接近临界点，此时 $a \sim L$，电动力学调控可能会更加重要。这是因为光子色散远快于声子，因此适用于腔体调控的倒易空间区域大致为$q^3_{\text{QED}} \sim (1$太赫兹$/c)^3 \sim (。3$毫米$)^{-3}$，这与存在涨落的布里渊区体积相比，后者大致按 $1/a^3$ 变化。因此，我们预计所讨论的物理现象对于接近铁电不稳定性的材料最为重要，此时 $a^{-1} \sim q_{\text{QED}}$。然而，在这一范围内，需要采用更精细的模型来考察声子色散和空间梯度的作用。显然，我们需要对相变建立更精细的标度理论，稍后我们会在第 V 节稍作展开。

最后，我们必须确定声子的横向光学模和纵向光学模频率。对于体相横向光学频率 Ω_T 和纵向光学模与横向光学模的频率劈裂 $\sim \eta$，我们取 $\Omega_T = .5$太赫兹来模拟铁电软模，并取 $\eta = 10$太赫兹，使得$\epsilon(0) \sim \eta^2/\Omega_T^2 \sim 400$ 较大，这与许多近化学计量比铁电体的情况一致。为简单起见，我们还忽略这些参数对温度的依赖，尽管若要模拟特定材料，可以更仔细地考虑这一点。

最后，出于数值计算的需要，我们将 Matsubara 频率截断设为 $\omega_c = 40$太赫兹，远高于所有其他频率尺度；只要该值足够大，预计它不会成为重要参数。为使计算更简单、结果更清晰，我们也不再要求横向光学频率满足自洽性，而是直接计算相对于体相值的微扰修正。原则上，这一点仍应加以处理；不过，如果频移较小，这种处理在定性上很可能是正确的。

III. 均匀系统

在继续进行主要计算之前，我们先简要说明一下具有完整平移对称性的系统中的计算方法。在这种情况下，动量在所有方向上都是一个好的量子数。于是我们可以转到平面波基。

利用

$$\nabla \times \nabla \to -\mathbf{q} \times \mathbf{q} \times = \mathbf{q}^2 \mathbb{1} - \mathbf{q} \otimes \mathbf{q} \tag{29}$$

我们发现，电磁关联函数分裂为两个相互解耦的子空间：横向模和纵向模，其中

$$\omega_m^2 \hat{\mathscr{G}}(\omega_m, \mathbf{q}) = \frac{\mathbf{q} \otimes \mathbf{q}}{\mathbf{q}^2} \frac{1}{\epsilon(i\omega_m)} + \left(\mathbb{1} - \frac{\mathbf{q} \otimes \mathbf{q}}{\mathbf{q}^2} \right) \frac{\omega_m^2}{\omega_m^2 \epsilon(i\omega_m) + \mathbf{q}^2}. \tag{30}$$

我们很容易将第一项识别为电场的动态库仑部分，而第二项则来自横向光子模。在这种情况下，未屏蔽的声子传播子是平凡的，其中

$$\hat{\mathscr{D}}_0(\omega_m, \mathbf{q}) = \frac{1}{\omega_m^2 + \Omega_T^2}. \tag{31}$$

我们发现，在动量 Λ 设有紫外截断时，总体结果为，

$$\langle \mathbf{Q}^2 \rangle = T \sum_{\omega_m} \int_{|\mathbf{q}|<\Lambda} \left[\frac{3}{\omega_m^2 + \Omega_T^2} + \frac{\partial \epsilon(i\omega_m)}{\partial \Omega_T^2} \left(\frac{1}{\epsilon(i\omega_m)} + \frac{2\omega_m^2}{\omega_m^2 \epsilon(i\omega_m) + \mathbf{q}^2} \right) \right]. \tag{32}$$

这可简化为一个纵向模和 $d-1$ 个横向模（其中 d 为空间维数），纵向模的贡献为（按每个动量空间模计）

$$T\sum_{\omega_m}\left[\frac{1}{\omega_m^2+\Omega_T^2}+\frac{\partial\epsilon(i\omega_m)}{\partial\Omega_T^2}\frac{1}{\epsilon(i\omega_m)}\right] = \frac{\coth(\beta\Omega_L/2)}{2\Omega_L}. \quad (33)$$

动量空间积分随后只会给出一个 $\Lambda^3/6\pi^2$因子，而三次发散则源于该模型无色散的性质。

横向模较难计算。计算松原求和并解析延拓至实频率后，可得包含纵向模和两个横向模的总结果为

$$\langle\mathbf{Q}^2\rangle = \int_{|\mathbf{q}|<\Lambda}\left[\frac{\coth(\beta\Omega_L/2)}{2\Omega_L} + 2\times\frac{\coth(\beta\Omega_{+,q}/2)}{2\Omega_{+,q}}\frac{\Omega_{+,q}^2-q^2}{\Omega_{+,q}^2-\Omega_{-,q}^2} + 2\times\frac{\coth(\beta\Omega_{-,q}/2)}{2\Omega_{-,q}}\frac{\Omega_{-,q}^2-q^2}{\Omega_{-,q}^2-\Omega_{+,q}^2}\right]. \quad (34)$$

上极化激元分支（$\Omega_{+,\ q}$）和下极化激元分支（$\Omega_{-,\ q}$）的色散为

$$\Omega_{\pm,q} = \sqrt{\frac{\Omega_L^2+q^2}{2}\pm\sqrt{\left(\frac{\Omega_L^2+q^2}{2}\right)^2-\Omega_T^2q^2}}. \quad (35)$$

这与通过玻戈留波夫变换并对准粒子哈密顿量进行对角化所预期的结果一致。

A. 高温极限

我们还可以考察这一效应对温度的依赖关系，特别是在高温下，化简各项后可得

$$\langle\mathbf{Q}^2\rangle = T\int_{|\mathbf{q}|<\Lambda}\left[\frac{1}{\Omega_L^2}+\frac{2}{\Omega_T^2}\right]. \quad (36)$$

这是精确的，且与动量 $\mathbf{q}$ 无关。

在这种情况下，我们看到电磁场的作用仅仅是使纵向模与横向模分离，随后它们基本上与电磁场涨落解耦。所有非平凡的电动力学效应最终都随 $1/T$ 消失，这可以理解为这些效应是真正的量子效应体现。这一点从考察相关的松原求和可以看出：它们在低频下最终按 ω_m^2/q^2 变化，因此在静态 $\omega_m = 0$

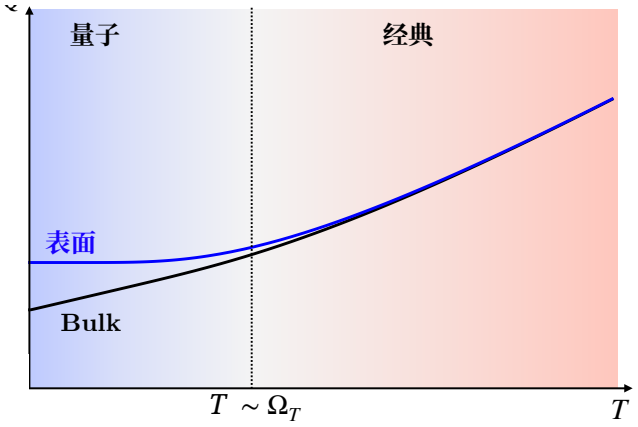

图 2. 体相中以及样品-腔体边界附近的声子涨落 $\langle\mathbf{Q}^2\rangle$ 随温度变化的示意图。在高温下，涨落与电动力学细节无关，因此不受靠近表面的影响。在较低温度下，电动力学贡献变得重要，导致表面附近的涨落比体相中的更加显著。

极限下消失。有限的松原频率则源于电磁场的动态量子涨落，而这些涨落归根结底是极化激元劈裂的来源。

我们强调，这并不意味着 $\langle\mathbf{Q}^2\rangle$ 的涨落会随着温度升高而减小，而是电磁场的贡献减弱了。因此，若对体相中的 $\langle\mathbf{Q}^2\rangle$ 进行高温展开，得到的将是 $\langle\mathbf{Q}^2\rangle_{\rm bulk} \sim a_{\rm bulk}T + b_{\rm bulk}/T + ...$，其中首项是经典能量均分结果，次级项则来自 $\coth(\omega\beta/2)$ 的高温展开（该函数是奇函数，因此级数只含温度的奇次幂）。对表面附近的涨落进行同样的展开（我们将证明，由于边界条件的作用，它不会与横向光子耦合），得到 $\langle\mathbf{Q}^2\rangle_{\rm surf} \sim a_{\rm surf}T + b_{\rm surf}/T + ...$，并发现 $a_{\rm bulk} = a_{\rm surf}$，因此边界条件的影响是 T 中的次级项，且源于真正的量子效应。如图 2 所示，高温下经典结果占主导，只有在低温下，与光子的相互作用才变得重要。

这让人联想到经典力学中的玻尔-范列文定理，也可以启发式地理解为声子的电流与位移正则共轭的结果。附录中对此进行了更技术性的详细探讨C；这里我们给出一个简单的启发式解释。从本质上说，光子并不直接与声子位移$\mathbf{Q}$耦合，而是与电荷分布中横向振荡所对应的位移电流 $\mathbf{J} \sim \partial_t\mathbf{Q}$ 耦合。该电流与所关注的对象正则共轭，即

相关对象是$\mathbf{Q}$，通过 $[\mathbf{Q}(\mathbf{r}),\mathbf{J}(\mathbf{r}')] \propto i\hbar\delta^3(\mathbf{r}-\mathbf{r}')$，因此在量子系统中（低温下），二者不会独立涨落。因此，改变电流$\mathbf{J}$ 的涨落，反过来也能引起$\mathbf{Q}$涨落的变化。然而，这种耦合纯粹源于两个场之间的正则对易关系，因此在高温下（即经典极限），这两个变量会独立涨落，正如经典系统中的 q 和 p 彼此独立一样。因此，光子与$\mathbf{Q}$的涨落解耦，因为此时它不再依赖于电流。我们还发现，纵向部分的情况并非如此：它会将静电势直接耦合到感生的声子电荷$\rho \sim \nabla\cdot\mathbf{Q}$，并且由这种相互作用引起的 LO-TO 劈裂在高温经典极限下确实不受影响。

总之，从这一计算中我们可以直接看出，电场耦合会降低声子的涨落，这既是通过修饰本征频率实现的，也是通过降低准粒子波函数在声子子系统上的投影实现的。因此，我们揭示出一种反直觉的经验规律：耦合到量子电磁场实际上会促进铁电有序，因为它降低了由涨落引起的声子频率偏移。在下一节中，我们将把这一形式体系应用于非均匀薄板结构，并展示这种效应如何可能表现为声子模频率的局域偏移。

IV. 平面几何

现在，我们计算求得频移所需的关联函数。具体而言，我们着重考察电磁格林函数，因为声子关联函数是局域的，求解起来很简单。此外，这一项本质上是体相背景贡献；而本文关注的是边界条件能够改变的自由度（光子）所带来的贡献。

在平面几何中，我们可以利用平面内的平移对称性，将问题化简为一个关于空间坐标的一维微分方程 z。事实证明，至少在介电常数均匀的情况下，仍可利用传递矩阵法对其进行解析求解；很久以前，人们最初便用这种方法计算卡西米尔–波尔德力（后来发现这是一个密切相关的问题）[53–55]。我们可以令动量沿 x方向，因此规范势的格林函数 $\mathscr{G}$ 可写为

$$\left[\omega_m^2\epsilon(i\omega_m)\mathbb{1} + \begin{pmatrix} -\partial_z^2 & 0 & iq\partial_z \\ 0 & q^2-\partial_z^2 & 0 \\ iq\partial_z & 0 & q^2 \end{pmatrix}\right]\mathscr{G}(z,z') = \mathbb{1}\delta(z-z'). \tag{37}$$

该系统的示意图见图1，图中展示了金属–顺电体–金属几何结构。在本文中，我们取金属等离子体频率趋于无穷大的物理合理极限，因此金属镜可用以下狄利克雷边界条件建模：对$\mathbf{E}$ 的切向分量以及$\mathbf{B}$的法向分量施加边界条件。我们设腔体极板位于 $z=\pm L/2$处，使得 L 为腔体的总尺寸，并且顺电体一直延伸至边界。

附录D中详细给出了求解过程，这里仅展示最终结果。我们发现，在空间点重合处计算得到的格林函数迹 $\mathbf{tr}\mathscr{G}(z,z)$可写成封闭形式：

$$\mathbf{tr}\mathscr{G}(z,z) = \frac{\sinh\kappa(L/2-z)\sinh\kappa(L/2+z)}{2\kappa\sinh\kappa L} + \frac{1}{\omega_m^2\epsilon(i\omega_m)}\delta(0). \tag{38}$$

这里，$\kappa = \sqrt{\omega_m^2\epsilon(i\omega_m)+q^2}$ 决定了在给定频率和面内动量下恢复至体相值的长度尺度。可以看到，其中包含发散量 $\delta(0)$，其定义为 $\lim_{z'\to z}\delta(z-z')$。该量实际上与系统尺寸和几何结构无关，因此最终会通过反项 Ω_0^2重整化消去。具体而言，我们只将此结果与 $L\to\infty$（其中 z 有限）所得的结果进行比较，最终得到腔体导致的声子频移重整化的封闭公式，该公式是位置的函数：

$$(\Delta\Omega_T(z))^2_{\mathrm{cav}} = \lambda T\sum_{\omega_m}\int^{\Lambda}\frac{d^2q_\parallel}{(2\pi)^2}\frac{\partial\epsilon(i\omega_m)}{\partial\Omega_T^2}\frac{\omega_m^2}{2\kappa}\left[\frac{\sinh\kappa(L/2-z)\sinh\kappa(L/2+z)}{\sinh\kappa L}-\frac{1}{2}\right]. \tag{39}$$

需要注意的是，这个表达式仍然依赖于截断$\Lambda=\pi/a$。虽然它比完整的格林函数容易计算得多，但由于被积函数在 $\omega_m\to 0$ 处的微妙行为，计算仍非易事；该行为决定了此效应的高温极限。Forall

对于非零松原频率，只需进行数值求和即可轻松求得；对于 $\omega_m=0$，如何取零频极限则存在问题：一方面，分子中包含 ω_m^2 的幂，因此在频率较小时会按二次方趋于零。另一方面，

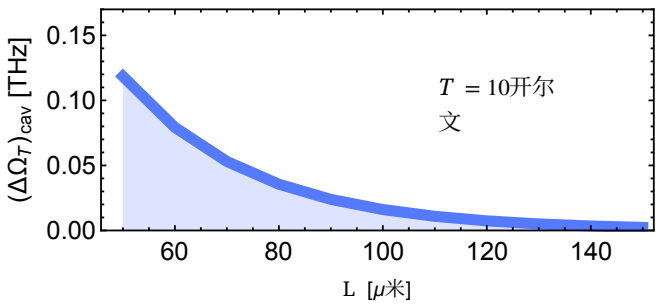

图 3. 在 $z = \pm L/2$ 时，腔体边界条件导致的声子频率一阶修正。这里将温度固定为 $T = 10K$，低于声子频率 $\Omega_T = .5$太赫兹的相干温度（请注意，相干频率涉及因子 2π，因此 $2\pi T \lesssim \Omega_T$）。我们明确指出，这是腔体导致的声子频率修正；具体而言，温度越低，频率蓝移越明显，这与通常的声子非谐性不同，后者在温度越高时蓝移越明显。在此处理方式中，非谐性导致的蓝移已被重整化消去；这里我们只绘制相同温度下体相与有限系统之间观察到的额外频移。

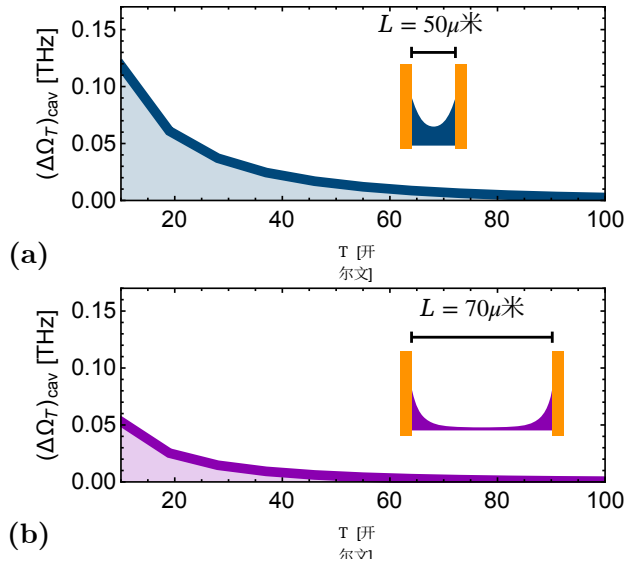

图 4. 腔体引起的声子频率一阶修正随温度 T 的变化。这里考虑两种情况：尺寸较小的系统，$L = 50$ 微米（a）；以及尺寸较大的系统，$L = 70$ 微米（b）。插图示意了重整化频率的空间分布，说明较小系统中的效应更强，因为表面效应仍占主导；而在较大系统中，频率则趋近于体相值。

另一方面，分母中包含 $\kappa\sinh\kappa L$，当 $q_\parallel \to 0$ 时也会按二次方趋于零，因为 $|\omega_m|\sinh|\omega_m|\sqrt{\epsilon(0)}L$。

仔细考察这一极限可知，分子最终占据主导地位，因此我们应当彻底舍弃零频贡献。这再次体现了该效应的量子力学起源，正如第 IIIA 节所述，并在附录 C中有更详细的说明。现在，我们可以高效地计算这一效应，从而不仅获得声子频移，还能得到其完整的空间依赖性。我们还指出，由于不等式 $\sinh\kappa(L/2-z)\sinh\kappa(L/2+z)/\sinh\kappa L \leq \frac{1}{2}$，这个表达式显然为正。因此我们发现，频移始终为正，其中 $\Delta\Omega_T^2(z) \geq 0$，这意味着腔体实际上会抑制铁电有序。我们稍后将对此作进一步讨论。

尤其值得分析的是，重整化频率对系统尺寸 L 和温度 T 的依赖关系（我们考察腔体中点处的数值）。结果见图3。我们确实看到，对于系统尺寸较大的“体系统” L，边界条件不会产生影响（这符合局域性的预期）。然而，对于较小的系统，随着表面效应开始显现，典型声子频率会显著蓝移。对于非常小的系统，整个系统本质上都成了“表面”，因此我们看到第一个特征性预测：薄样品的软模频率会显著蓝移。

接下来，我们确认这一效应的温度依赖性：在高温下，腔体的任何特征都应消失。图4对此作了明确展示。我们确实看到，在所有系统尺寸下，频
频移在高温下消失，与
系统尺寸 L无关。在较低温度下，声子频移开始出现，但对于较大的系统，这种效应较小，因为最终必须在 $L \to \infty$时恢复到体相。对于较小的系统，频移在腔体中点处可能会变得显著。

通过观察重整化频率 Ω 的空间分布$^2_T(z)$，如图 5 所示，可以最好地理解这些结果。对于尺寸为 100μm 的腔体，我们看到，在低温下，边界附近的声子频率显著蓝移；而在高温下以及腔体中心处，频率基本保持在体相值 $z \sim 0$)。这与我们先前提出的论点一致，即腔体重整化（i）是一种纯粹的量子效应，仅在 $2\pi T \sim \Omega_T$ 时出现；（ii）是对 $z = \pm L/2$ 处边界条件作出响应的一种表面效应。我们还总是观察到频率蓝移——这与许多先前的理论研究 [25, 26, 28, 29], 有些矛盾，这些研究似乎都发现腔体倾向于增强铁电有序。现在，我们将说明我们的计算结果如何与这些先前研究相协调。

我们认为，这种矛盾源于电磁涨落的紫外截断施加方式，以及最终如何将其缩放至连续极限（或不进行缩放）。具体而言，在真实的物理系统中（具有适当的紫外截断），电磁模式的数量与系统尺寸成正比；每单位体积内的模式数有限（例如晶格点数），尽管这些模式的频率可能很高，因而远离共振。

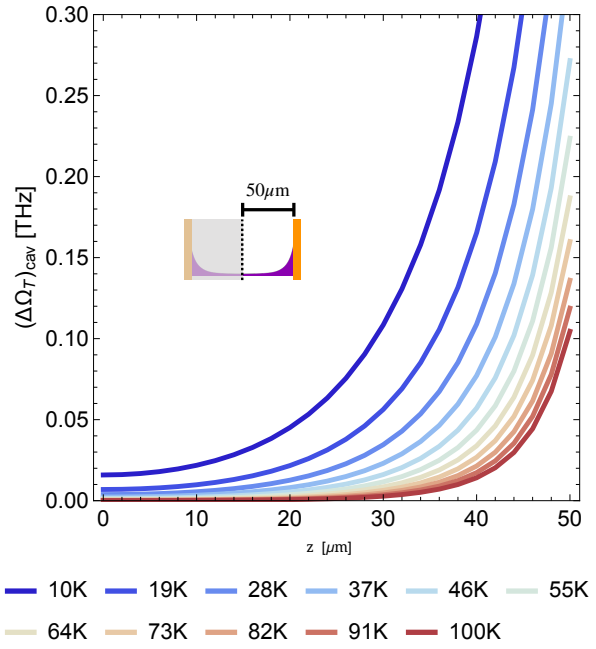

图 5. 微扰重整化后的声子频率 $\Omega_T(z)$，其中包含由腔体边界条件导致的电动力学修正，并以空间坐标 z为函数。系统尺寸固定为 $L = 100$微米，坐标 z 以中点为基准，如插图所示。温度从高温 $T = 100$开尔文（影响很小）降至低温 $T = 10$开尔文，此时边界处的局域声子频率显著蓝移。

我们再次强调，考虑电磁涨落的多模特性在定性上非常重要 [23, 60]。

在我们新的形式体系中，直到并包括式（39），问题都能得到解析精确解。紫外截断基本上按这种方式缩放，因此单位体积的模态密度保持恒定。这也与卡西米尔力方面已知且经实验验证的结果 [52–55]相符。相比之下，以往的研究基本上是对所取腔体本征函数的数量施加截断，选取最低的 N_c 个模纳入格林函数的本征模展开 $\mathscr{G}$，而不考虑系统尺寸。这一假设会导致一个不符合物理实际的结果：单位体积内电磁模式的数量 $\sim N_c/L^3$ 会随着体系统尺寸增大而趋于零！遗憾的是，结果表明，这恰恰与我们采用更复杂的解析解所得到的行为相反 [61]。

尽管我们的方法借鉴了卡西米尔力的相关思路，但它研究的是一种不同的现象，因此仍有必要通过实验加以验证。我们将在下一节简要讨论这方面的前景。

V. 讨论

正如我们在前几节所看到的，腔体的影响最终主要局限于材料表面，其净效应是在边界附近使软声子模发生蓝移。与体相值相比，这会使小尺寸样品的介电常数$\varepsilon(\omega = 0) \sim \eta^2/\Omega_T^2$ 表观降低。事实上，这种效应早已被观察到，并且作为“死层效应” [62]为人所知已有相当长的时间。经典的研究正是在这种系统中发现了这一效应：一层薄薄的 $SrTiO_3$ 夹在两个电极之间，形成一个电容器 [63]。历史上，死层效应主要被归因于两个界面之间的应变效应 [64] ，这种效应同样会使软模蓝移；不过，这一问题似乎尚未完全定论 [65]。因此，鉴于这项新研究及其阐释，重新开展研究并确定量子电动力学是否会产生相关影响，颇有意义。为此，实验不妨尝试使用会引起不同程度应变的金属界面，观察死层效应对应变程度的敏感性，并与其对介电环境的敏感性进行比较。事实上，探究电磁响应与周围介电环境 [66] 之间相互作用的实验已经展现出令人鼓舞的结果 [67–69]。从理论上说，这也值得进一步计算：针对 $SrTiO_3$ 层采用开放（空气）边界条件，而非金属界面条件。

我们的结果还揭示了另一种有趣的联系，将我们的研究与卡西米尔力研究联系起来 [52, 54, 55]。这一点在回看方程时尤为明显：39，它与卡西米尔力的研究结果十分相似（例如，参见文献 [55]）。这是合理的，因为我们的装置与卡西米尔最初研究的装置非常相似；但在本例中，涨落力作用于 QPE 的介电常数（该常数通过自洽方式确定），而不是腔体的极板 [41]。或许可以反过来思考，尝试利用卡西米尔力谱学，通过涨落对辐射力的影响来探测初生或临界铁电涨落。

一种密切相关的现象是范德瓦耳斯力，它同样是一种由虚电磁涨落引起的熵力。范德瓦耳斯力通常作用于可极化分子之间，并且具有显著的吸引性；由于与电磁场耦合，系统的总能量因此降低 [52–54]。类似地，红外活性声子场可以看作由可极化分子构成的晶格，这些分子发生虚极性涨落。两种情况的主要区别在于：声子极化激元中的分子排列成规则晶格，而流体中的分子在空间上无序。当置于腔体中时，金属边界会屏蔽电磁场，导致

与体系统相比，自由能净增加，因为被屏蔽掉的范德瓦耳斯力具有吸引性。

事实上，这个问题所具有的扩展多模性质至关重要。将我们的结果与单个涨落偶极子局域于金属表面附近这一较简单的情形进行对比，便可看出这一点。在局域情形下，单个偶极子与其像电荷之间的相互作用（这是腔体屏蔽的一种表现）具有吸引性，并降低了涨落偶极矩的能量代价。然而，当我们考虑偶极子的扩展分布（如体相顺电体中所实现的情形）时，结果则大不相同。特别是，可以验证，在长波长、纵向极化的 $\mathbf{q} \to 0$模不受屏蔽影响。为说明这一点，考虑一条纵向极化偶极子的无限线与其像相互作用；其像也是一条无限线，且偶极矩的面内分量方向相反。与局域情形不同，此时总相互作用为零，因为在横向间距较小时，首尾相接偶极子之间的吸引相互作用，会被远处偶极子之间的相互作用抵消，而远处的偶极子基本呈首首相对。这自然体现在我们的计算中：长波长模的 LO-TO 劈裂不受边界条件影响。另一方面，横向模确实会受到屏蔽效应的影响，而要最简单地诊断这一点，可以将问题重新表述为确定$\epsilon(\omega, \mathbf{r})$，而不是直接确定偶极子之间的相互作用；一旦纳入量子动力学，后者就会变得非常复杂。我们的结果也与近期关于腔体中超辐射的各种禁戒定理相一致 [70, 71]。

还可以将这种声子刚度的重整化视为动力学局域化概念的一种体现 [25, 26, 51]。这种重整化源于声子模振荡时也会与电磁真空发生线性耦合，因此，该模的能量和惯性也会受到附着在声子上的光子云的贡献。利用腔体抑制电磁场，本质上就是将声子与其光子云解耦，这一点会反映在针对给定几何结构计算的关联函数中。稍显出乎意料的是，这团光子云实际上会使声子模“变轻”，从而使声子坐标去局域化。

我们也可以由此理解该效应纯粹源于量子的原因。腔光子直接耦合到电流的横向分量$\mathbf{J} \sim \partial_t \mathbf{Q}$，而利用腔体可以改变电流涨落的辐射重整化。这只能通过正则对易关系影响实际的声子位移 $\langle \mathbf{Q}^2 \rangle$，因为正则对易关系将电荷与电流联系起来。因此，若能通过实验观测到这一现象，就真正证明了“量子材料的量子调控”这一原理。

如前文所述，在第 IIC 节中，鉴于我们对声子涨落所采用的近似具有局域性，我们预计理论在临界点附近并不十分接近时仍然有效。现在我们稍作阐述，说明这一近似可能如何失效，以及更完整的理论可能是什么样。具体而言，我们所作的关键近似是声子关联函数完全局域，即$\langle \mathbf{Q}(x)\mathbf{Q}(x') \rangle \sim \delta(\mathbf{r}-\mathbf{r}')$。因此，我们得以将声子积分消去，得到一个完全以局域介电响应 $\epsilon(i\omega_m)$ 表述的理论。这一近似的依据是：由于光子群速度远大于声子速度，光锥附近的所有声子色散都可以忽略。乍看之下，这是一个非常好的近似；但我们有理由认为，在临界点附近它会失效，因为在临界点处，晶格涨落的关联长度远大于朴素晶格估算所预示的长度，这正如临界现象的一般理论所预期的那样。

为了恰当地纳入这些关联，必须在模型中引入声子色散。对我们当前理论所做的最简单修改，可由虚时间拉格朗日量给出（采用本文其余部分所使用的相同约定）

$$\begin{aligned}\mathcal{L}_{\text{eff}} = &\frac{1}{2}\left(\frac{\partial \mathbf{Q}}{\partial \tau}\right)^2 + \frac{1}{2}\Omega_0^2 \mathbf{Q}^2 + \frac{\lambda}{4}(\mathbf{Q}^2)^2 + i\eta \mathbf{Q}\cdot\frac{\partial \mathbf{A}}{\partial \tau} \\ &+ \frac{1}{2}\left(\frac{\partial \mathbf{A}}{\partial \tau}\right)^2 + \frac{1}{2}(\nabla \times \mathbf{A})^2 \\ &+ \underbrace{\frac{1}{2}v_{\parallel}^2 (\nabla \cdot \mathbf{Q})^2 + \frac{1}{2}v_{\perp}^2 (\nabla \times \mathbf{Q})^2}_{\text{spatial correlations}}. \end{aligned} \tag{40}$$

我们着重指出了为纳入声子场的空间关联而需添加的新项。在各向同性介质中，根据对称性，这些关联由两个声速表征：横向模速度 $v_\perp$ 和纵向模速度 $v_\parallel$。遗憾的是，加入这些项会使本文采用的求解方法更难应用，因为该方法依赖于声子涨落的局域性质。原则上，由于只有在临界点附近才需要这一修正，我们所用的声子频移平均场处理也因此不再完全适用。为了继续推进，我们提出采用重整化群（RG）类型的流程来处理这一理论。这样便能够定量评估声子关联变得重要的程度，并可能探索腔体几何结构引起的长波长修正是否会改变临界现象；不过，这显然超出了本文的范围。从物理角度看，研究临界点附近腔体的存在是否会改变晶格结构因子和漫散射X射线，或许颇有意义，因为这可能反映初始晶格畸变空间关联范围的变化。

我们还讨论了本文提出的

以及近期实验之间的关系；这些实验似乎表明，利用强太赫兹驱动$_3$ 可在 SrTiO [49, 50]中诱导铁电性。看来，无论是在本文中，还是在太赫兹驱动实验 [49, 50],中，平衡态下存在强烈的极性软模前驱涨落都很重要。不过，由于目前尚无对这些体系中诱导铁电性的定论性理论解释，因此很难建立具体的联系。尤其是，由于光驱动材料中可达到的电场更强，非线性声子效应可能变得重要 [40] ，这可能会使情况更加复杂，因为它们会有效地诱导电场与软模涨落之间的高阶耦合。另一方面，由于腔涨落的振幅弱得多，预计它们会更有选择性地直接耦合到软模，并且主要通过线性极化激元相互作用实现。因此，除了两种机制都需要预先存在的涨落之外，很难确切判断太赫兹驱动调控的机制与我们在此概述的腔体调控机制有何关联。

总而言之，我们开发了一种研究与量子化腔电磁场相互作用的 QPE 中局域声子涨落的方法。我们没有采用单模近似或偶极近似，而是纳入了一个完整的模连续谱，所有模式都与 QPE 材料局域耦合。这使我们能够以空间分辨的方式研究声子模蓝移的变化，并发现靠近腔壁处的涨落会因腔体对电场的屏蔽而增强。随后，我们将这一方法与卡西米尔力和范德瓦耳斯力的研究联系起来；这两种力都是电磁涨落所诱导的力的体现。

未来，研究……将会非常有趣。

将这种方法扩展到更复杂的异质结构中，将会非常有趣；这类结构包含多种材料 [72,73] ，包括金属 [74], 、绝缘体 [75], 、超导体 [76, 77], 、半导体 [23], 、铁电体 [43–47],、磁体 [78–84], 以及多铁性材料 [85]——这些物质相都可以通过其与电磁场的耦合来表征，而且如今已可实现至二维极限 [86]。未来，研究不同堆叠相通过共享的量子电动力学环境相互耦合，将会很有意思。将这些计算扩展到有序相也很值得探讨，因为此时序参量及其涨落都变得重要。最后，未来研究中或许最重要的方向，是对这一理论进行实验实现和验证。为此，可能需要使用更精确获取的参数和电磁求解器。因此，我们设想将这一框架与第一性原理计算相结合，以获得微观参数 [87–89],，并结合有限元麦克斯韦方程求解器。从概念上讲，这相对直接，但在广泛应用之前，可能需要开展大量技术工作。

致谢

我们谨向 Yuto Ashida、Ankit Disa、Urs Staub、Prineha Narang、Ata¸c Imamo˘glu、David Hsieh、Pavel Dolgirev、Aaron Lindenberg、N. Peter Armitage、John Sous、Maximilian Daschner、Andrea Cavalleri、J´erˆome Faist、Dieter Jaksch、Misha Fogler、Ilya Esterlis 和 John Philbin 致以诚挚谢意，感谢他们给予的宝贵讨论。J.B.C. 是 HQI奖博士后研究员，并谨此感谢哈佛量子计划提供的支持。ED 感谢美国陆军研究办公室资助（项目编号 W911NF-21-1-0184）以及瑞士国家科学基金会项目 200021 212899 的支持。

[1] D. Basov、R. Averitt 和 D. Hsieh，量子材料按需调控的特性，Nature Materials **16**，1077（2017年）。[2] T. Oka 和 H. Aoki，石墨烯中的光伏霍尔效应，《物理评论B》**79**，081406(R)（2009）。[3] T. Kitagawa、E. Berg、M. Rudner 和 E. Demler，周期驱动量子系统的拓扑表征，《物理评论B》**235114**，82（2010）。[4] N. Lindner、G. Refael 和 V. Galitski，半导体量子阱中的 Floquet 拓扑绝缘体，Nature Physics **7**，490（2011）。[5] A. Cavalleri，光诱导超导性，Contemporary Physics **59**，31（2018）。[6] H. Gao、F. Schlawin、M. Buzzi、A. Cavalleri 和 D. Jaksch，驱动腔中的光诱导电子配对，《物理评论快报》**125**，053602（2020年）。[7] M. H. Michael、M. F¨orst、D. Nicoletti、S. R. U. Haque、Y. Zhang、A. Cavalleri、R. D. Averitt、D. Podolsky，

以及 E. Demler，受驱量子材料的广义菲涅耳–Floquet方程，《物理评论B》**105**，174301（2022年）。[8] M. H. Michael、A. von Hoegen、M. Fechner、M. F¨orst、A. Cavalleri 和 E. Demler，约瑟夫森等离激元波的参数共振：YBa 中光学放大层间超导性的理论$_2$Cu$_3$O$_{6+x}$，《物理评论B》**102**，174505（2020年）。[9] P. E. Dolgirev、M. H. Michael、A. Zong、N. Gedik 和 E. Demler，泵浦-探测实验中序参量涨落的自相似动力学，《物理评论B》**101**，174306（2020年）。[10] P. E. Dolgirev、A. Zong、M. H. Michael、J. B. Curtis、D. Podolsky、A. Cavalleri 和 E. Demler，由脉冲光学淬火诱导的超导体周期性动力学（2021年），arXiv:2104.07181。[11] K. Baumann、C. Guerlin、F. Brennecke 和 T. Esslinger，光学腔中超流气体的Dicke量子相变

光学腔，Nature 464，1301（2010年）。[12] M. Babadi、K. M.、I. Martin、G. Refael 和 E. Demler，参数放大电子-声子超导理论，《物理评论B》96，014512（2017年）。[13] S. Chaudhary、A. Haim、Y. Peng 和 G. Refael，受时空对称性保护的声子诱导Floquet拓扑相，《物理评论研究》2，043431（2020年）。[14] J. Bloch、A. Cavalleri、V. Galitski、M. Hafezi 和 A. Rubio，强关联电子-光子系统，《美国国家科学院院刊》118，e2105618118（2022年）。[15] F. Schlawin、D. Kennes 和 M. Sentef，腔量子材料，《应用物理评论》9，011312（2022年）。[16] M. Sentef、M. Ruggenthaler 和 A. Rubio，腔量子电动力学极化激元增强的电子-声子耦合及其对超导性的影响，《科学进展》4，eaau6969（2018年）。[17] J. Curtis、Z. Raines、A. Allocca、M. Hafezi 和 V. Galitski，超导性的腔量子Eliashberg增强，《物理评论快报》122，167002（2019年）。[18] F. Schlawin、A. Cavalleri 和 D. Jaksch，腔介导的电子-光子超导，《物理评论快报》122，133602（2019年）。[19] G. Mazza 和 A. Georges，超辐射量子材料，《物理评论快报》122，017401（2019年）。[20] J. Curtis、A. Grankin、N. Poniatowski、V. Galitski、P. Narang 和 E. Demler，铜酸盐母体化合物中的腔磁振子-极化激元，《物理评论研究》4，013101（2022年）。[21] T. Parvini、V. Bittencourt 和 S. Kusminskiy，反铁磁腔光磁学，《物理评论研究》2，022027（2021年）。[22] A. Chiochetta、D. Kiese、C. Zelle、F. Piazza 和 S. Diehl，腔诱导量子自旋液体，《自然·通讯》12，5901（2021年）。[23] I. Amelio、L. Korosec、I. Carusotto 和 G. Mazza，量子与经典腔电动力学描述下二维半导体电子响应的光学修饰，《物理评论B》104，235120（2021年）。[24] G. L. Paravicini-Bagliani、F. Appugliese、E. Richter、F. Valmorra、J. Keller、M. Beck、N. Bartolo、C. R¨ossler、T. Ihn、K. Ensslin、C. Ciuti、G. Scalari 和 J. Faist，由朗道极化激元态调控的磁输运，《自然·物理学》15，186（2019年），1805.00846。[25] Y. Ashida、A. ˙I mamo˘glu、J. Faist、D. Jaksch、A. Cavalleri 和 E. Demler，物质的量子电动力学调控：腔增强铁电相变，《物理评论X》10，041027（2020年），2003.13695。[26] S. Latini、D. Shin、S. Sato、C. Sch¨afer、U. De Gio- vanni、H. H¨ubener 和 A. Rubio，SrTiO 的铁电光致基态$_3$：腔材料工程，《美国国家科学院院刊》118，e2105618118（2021年）。[27] Q. Zhang、Z. Zhen、Y. Yang、G. Gan、D. Jariwala 和 X. Cui，用于红外光学调制的原子级薄范德瓦耳斯异质界面处的混合声子-极化激元，《光学快报》27，18585（2019年）。[28] K. Lenk、J. Li、P. Werner 和 M. Eckstein，单模腔中相互作用固体的集体理论（2022年），arXiv:2205.05559。[29] K. Lenk、J. Li 和 M. Eckstein，光子介导铁电相变的动力学平均场研究（2022年），arXiv:2209.04246。[30] D. Basov、A. Asenjo-Garcia、P. Schuck、X. Zhu 和 A. Rubio，《极化激元全景》，纳米光子学 10, 549 (2020)。[31] D. Juraschek、T. Neuman、J. Fick 和 P. Narang，《非线性声子学的腔体调控》，《物理评论研究》3, L032046 (2021)。[32] G. Jarc、S. Mathengattil、A. Montanaro、F. Giusti、E. Rigoni、F. Fassioli、S. Winnerl、S. Zilio、D. Mihailovic、P. Prelov˘sek、M. Eckstein 和 D. Fausti，《1T-TaS 中金属-绝缘体转变的腔体调控》$_2$ (2022)，arXiv:2210.02346。[33] A. Thomas、E. Devaux、K. Nagarajan、T. Chervy、M. Seidel、D. Hagenm¨uller、S. Sch¨utz、J. Schachenmayer、C. Genet、G. Pupillo 和 T. Ebbesen，《探索真空电磁场强耦合下的超导性》(2019)，arXiv:191101459。[34] A. Thomas、E. Devaux、K. Nagarajan、G. Rogez、M. Sei-del、F. Richard、C. Genet、M. Drillon 和 T. Ebbesen，《YBCO纳米颗粒集体强耦合下铁磁性的显著增强》，纳米快报 21, 4365 (2021)。[35] N. Rivera、T. Christensen 和 P. Narang，《二维材料中的声子极化激元学》，纳米快报 19, 2653 (2019)，1901.05308。[36] R. Berte、C. R. Gubbin、V. D. Wheeler、A. J. Giles、V. Gi-annini、S. A. Maier、S. D. Liberato 和 J. D. Caldwell，《利用局域表面声子极化激元传感亚纳米级薄氧化物薄膜》，ACS Photonics 5, 2807 (2018)。[37] S. Dai、W. Fang、N. Rivera、Y. Stehle、B.-Y. Jiang、J. Shen、R. Tay、C. Ciccarino、Q. Ma、D. Rodan-Legrain、P. Jarillo-Herrero、E. Teo、M. Fogler、P. Narang、J. Kong 和 D. Basov，《六方氮化硼单层中的声子极化激元》，Advanced Materials 31, 1806603 (2019)。[38] A. Yamanaka、M. Kataoka、Y. Inaba、K. Inoue、B. Hehlen 和 E. Courtens，《超拉曼散射光谱学揭示钛酸锶中存在竞争性有序》，Europhysics Letters 50, 688 (2000)。[39] S. E. Rowley、L. J. Spalek、R. P. Smith、M. P. M. Dean、M. Itoh、J. F. Scott、G. G. Lonzarich 和 S. S. Saxena，《铁电量子临界性》，《自然·物理学》10, 367 (2014)，0903.1445。[40] M. Kozina、M. Fechner、P. Marsik、T. v. Driel、J. M. Glownia、C. Bernhard、M. Radovic、D. Zhu、S. Bonetti、U. Staub 和 M. C. Hoffmann，《SrTiO 中太赫兹驱动声子上转换》$_3$,《自然·物理学》15, 387 (2019)，1807.10788。[41] L. P´alov´a、P. Chandra 和 P. Coleman，《量子临界顺电体与随时间变化的卡西米尔效应》，Physical Review B 79, 075101 (2009)，0803.1517。[42] T. Esswein 和 N. Spaldin，《铁电体、量子顺电体还是顺电体？利用离子的单粒子量子力学描述计算从 $BaTiO_3$ 到 $SrTiO_3$ 再到 $KTaO_3$ 的演化》，《物理评论研究》4, 033020 (2022)。[43] Z. Zheng、Q. Ma、Z. Bi、S. d. l. Barrera、M.-H. Liu、N. Mao、Y. Zhang、N. Kiper、K. Watanabe、T. Taniguchi、J. Kong、W. A. Tisdale、R. Ashoori、N. Gedik、L. Fu、S.-Y. Xu 和 P. Jarillo-Herrero，《莫尔异质结构中的非常规铁电性》，Nature 588, 71 (2020)。[44] M. V. Stern、Y. Waschitz、W. Cao、I. Nevo、K. Watanabe、T. Taniguchi、E. Sela、M. Urbakh、O. Hod 和 M. B. Shalom，《范德华滑移引发的界面铁电性》

，《科学》**372** ，1462（2021年），2010.05182。

[45] K. Yasuda、X. Wang、K. Watanabe、T. Taniguchi 和 P. Jarillo-Herrero，《双层氮化硼中由堆叠工程调控的铁电性》，《科学》372，1458（2021），2010.06600。[46]C. R. Woods、P. Ares、H. Nevison-Andrews、M. J. Holwill、R. Fabregas、F. Guinea、A. K. Geim、K. S. Novoselov、N. R. Walet 和 L. Fumagalli，《小角度扭转六方氮化硼中的电荷极化界面超晶格》，《自然·通讯》12，347（2021）。[47] S. Moore、C. Ciccarino、D. Halbertal、L. McGilly、N. Finney、K. Yao、Y. Shao、G. Ni、A. Sternbach、E. Telford、B. Kim、S. Rossi、K. Watanabe、T. Taniguchi、A. Pasupathy、C. Dean、J. Hone、P. Schuck、P. Narang 和 D. Basov，《六方氮化硼莫尔超晶格中的纳米尺度晶格动力学》，《自然·通讯》12，5741（2021）。[48] I. Katayama、H. Aoki、J. Takeda、H. Shimosato、M. Ashida、R. Kinjo、I. Kawayama、M. Tonouchi、M. Nagai 和 K. Tanaka，《利用强皮秒太赫兹脉冲将钛酸锶薄膜瞬态驱动至非简谐区间的铁电软模》，《物理评论快报》108，097401（2012）。[49] T. F. Nova、A. S. Disa、M. Fechner 和 A. Cavalleri，《光学应变钛酸锶中的亚稳态铁电性》，《科学》364，1075（2019），1812.10560。[50] X. Li、T. Qiu、J. Zhang、E. Baldini、J. Lu、A. M. Rappe 和 K. A. Nelson，《太赫兹场诱导量子顺电钛酸锶中的铁电性》，《科学》364，1079（2019），1812.10785。[51] Y. Ashida、A. İmamoğlu 和 E. Demler，《任意光-物质耦合强度下的腔量子电动力学》，《物理评论快报》126，153603（2021）。[52] H. Casimir 和 D. Polder，《迟滞对伦敦-范德华力的影响》，《物理评论》73，360（1948）。[53] E. Lifschitz，《固体间分子吸引力理论》，《苏联物理学·实验与理论物理学杂志》2，73（1956）。[54] I. Dzyaloshinskii、E. Lifshitz 和 L. Pitaevskii，《范德华力的一般理论》，《苏联物理学进展》4，153（1961）。[55] O. Kenneth 和 I. Klich，《异性相吸：关于卡西米尔力的一个定理》，《物理评论快报》160401，97（2006）。[56] J. Philbin、T. Haugland、T. Ghosh、E. Ronca、M. Chen、P. Narang 和 H. Koch，《腔量子电动力学中的分子范德华流体》（2022），arXiv:2202.07956。[57]这里的意思是，在动量空间的相关区域内，声子色散可以安全地近似为平坦，因此本征模可以局域在实空间中。[58] J. Rammer，*Quantum Field Theory of Non-equilibrium States* 2007（剑桥大学出版社，）。[59]这类似于金兹堡-朗道理论的情形：通常，态密度和准粒子能隙等微观参数与长波序参量并无直接关联。相反，只有某些耦合常数之比由微观参数确定。[60] G. Andolina、A. Pasquale、F. Pellegrino、I. Torre、F. Kop-pens 和 M. Polini，《深亚波长腔能否在二维材料中诱导安培型超导？》（2022），arXiv:2210.10371。[61] 作者特别感谢与 Yuto Ashida 就这一问题进行的私人通信。他耐心而细致地与我们一起梳理了这一微妙之处，并最终帮助揭示了这些差异的根源。与 Ata˙c ̇Imamo˘glu 的讨论在这方面也很有价值。[62] C. Zhou 和 D. Newns，《本征死层效应及其对铁电薄膜电容器性能的影响》，《应用物理杂志》82，3081（1997）。[63] A. A. Sirenko、C. Bernhard、A. Golnik、A. M. Clark、J. Hao、W. Si 和 X. X. Xi，《钛酸锶薄膜中的软模硬化》，Nature 404，373（2000）。[64] I. Katayama、H. Shimosato、D. S. Rana、I. Kawayama、M. Tonouchi 和 M. Ashida，《钛酸锶薄膜中铁电软模的硬化》，《应用物理快报》93，132903（2008）。[65] Q. Yang、J. Cao、Y. Zhou、L. Sun 和 X. Lou，《氧化物电极铁电薄膜中的死层效应及其消除》，Acta Mater. 112，216（2016）。[66] D. Welakuh 和 P. Narang，《强耦合诱导的对称性破缺所致中心对称系统中的非线性光学过程》（2022），arXiv:2202.11117。[67] M. Khatoniar、R. Bushati、A. Mekawy、F. Dirnberger、A. Al`u 和 V. M. Menon，《通过强光—物质耦合放宽范德华材料中非线性光学相互作用的对称性规则》，ACS Photonics 9，503 2022( )。[68] D. P. Kumah、A. Malashevich、A. S. Disa、D. A. Arena、F. J. Walker、S. Ismail-Beigi 和 C. H. Ahn，《表面终止对 LaNiO3薄膜电子性质的影响》，Physical Review Applied 2，054004（2014）。[69] E. Mannebach、C. Nyby、F. Ernst、Y. Zhao、J. Tolsma、Y. Li、M.-J. Sher、I.-C. Tung、Z. H.、Q. Zhang、K. Seyler、G. Clark、Y. Lin、D. Zhu、J. Glownia、M. Kozina、S. Song、S. Nelson、A. Mehta、Y. Yu、A. Pant、O. Aslan、A. Raja、Y. Guo、A. DiChiara、W. Mao、L. Cao、S. Tongay、J. Sun、D. Singh、T. Heinz、X. Xu、A. MacDonald、E. Reed、H. Wen 和 A. Lindenberg，《过渡金属二硫属化物中层间相互作用的动态光学调谐》，Nano Letters 17，7761（2017）。[70] G. Andolina、F. Pellegrino、V. Giovannetti、A. MacDonald 和 M. Polini，《空间变化电磁场中的光子凝聚理论》，《物理评论B》102，125137 2020( )。[71] G. Andolina、F. Pellegrino、A. Mercurio、O. Di Stefano、M. Polini 和 S. S.，《近似模型中光子凝聚的非微扰禁戒定理》，Eur. Phys. J. Plus 137，1348（2022）。[72] D. N. Basov、M. M. Fogler 和 F. J. G. d. Abajo，《范德华材料中的极化激元》，《科学》354，aag1992（2016）。[73] M. Liu、A. J. Sternbach 和 D. N. Basov，《强关联量子材料的纳米尺度电动力学》，Reports on Progress in Physics 80，014501（2016）。[74] R. Jing、Y. Shao、Z. Fei、C. F. B. Lo、R. A. Vitalone、F. L. Ruta、J. Staunton、W. J.-C. Zheng、A. S. Mcleod、Z. Sun、B.-y. Jiang、X. Chen、M. M. Fogler、A. J. Millis、M. Liu、D. H. Cobden、X. Xu 和 D. N. Basov，《单层和少层WTe2的纳米尺度太赫兹响应》，《自然·通讯》12，5594（2021）。[75] J. D. Caldwell、I. Aharonovich、G. Cassabois、J. H. Edgar，B. Gil，和 D. N. Basov，光子学与六方

氮化硼，Nature Reviews Materials 4, 552（2019年）。[76] X. Xi, Z. Wang, W. Zhao, J.-H. Park, K. Law, H. Berger, L. Forr´o, J. Shan 和 K. Mak，《超导 $NbSe_2$ 原子层中的伊辛配对》，Nature Physics 12, 139（2015年）。[77] Y. Yu, L. Ma, P. Cai, R. Zhong, C. Ye, J. Shen, G. Gu, X. Chen 和 Y. Zhang，《单层 $Bi_2Sr_2CaCuO_{8+\delta}$ 中的高温超导》，Nature 156, 575（2019年）。[78] D. Rizzo, A. McLeod, C. Carnahan, E. Telford, A. Dismukes, R. Wiscons, Y. Dong, C. Nuckolls, C. Dean, A. Pasupathy, X. Roy, D. Xiao 和 D. Basov，《CrSBr 中原子级层状磁性的可视化》，Advanced Materials 34, 2201000（2022年）。[79] B. Huang, G. Clark, D. Klein, D. MacNeill, E. Navarro-Moratalla, K. Seyler, N. Wilson, M. McGuire, D. Cobden, D. Xiao, W. Yao, P. Jarillo-Herrero 和 X. Xu，《双层 CrI 中磁性的电控》，Adv. Mater. 34, 2201000 3, 2018D（）。[80] K. Lee, A. Dismukes, E. Telford, R. Wiscons, J. Wang, X. Xu, C. Nuckolls, C. Dean, X. Roy 和 X. Zhu，《二维半导体 CrSBr 中的磁序与对称性》，Nano Letters 21, 3511（2021年）。[81] J. Klein, Z. Song, B. Pingault, F. Dirnberger, H. Chi, J. B. Curtis, R. Dana, R. Bushati, J. Quan, L. Dekanovsky, Z. Sofer, A. Al`u, V. M. Menon, J. S. Moodera, M. Lon˘car, P. Narang 和 F. M. Ross，《通过层状磁性半导体中的光活性缺陷探测局部磁环境》（2022年），arXiv:2207.02884。[82] J. Klein, B. Pingault, M. Florian, M.-C. Heißenb¨uttel, A. Steinhoff, Z. Song, K. Torres, F. Dirnberger, J. B. Cur- tis, T. Deilmann, R. Dana, R. Bushati, J. Quan, J. Luxa, Z. Sofer, A. Al`u, V. M. Menon, U. Wurstbauer, M. Rohlf- ing, P. Narang, M. Lon˘car 和 F. M. Ross，《体相范德华层状磁体 CrSBr 是一种准一维量子材料》（2022年），arXiv:2205.13456。[83] A. Bedoya-Pinto, J.-R. Ji, A. K. Pandeya, P. Gargiani, M. Valvidares, P. Sessi, J. M. Taylor, F. Radu, K. Chang 和 S. S. P. Parkin，《范德华单层中的本征二维 XY 铁磁性》，《科学》374, 616（2021年），2006.07605。[84] J. Klein, T. Pham, J. D. Thomsen, J. B. Curtis, M. Lorke, M. Florian, A. Steinhoff, R. A. Wiscons, J. Luxa, Z. Sofer, F. Jahnke, P. Narang 和 F. M. Ross，《范德华层状磁体 CrSBr 中按需形成的原子尺度自旋织构》（2021年），arXiv:2107.00037。[85] Q. Song, C. A. Occhialini, E. Erge¸cen, B. Ilyas, D. Amoroso, P. Barone, J. Kapeghian, K. Watanabe, T. Taniguchi, A. S. Botana, S. Picozzi, N. Gedik 和 R. Comin，《单层范德华多铁性材料的证据》，Nature 602, 601（2022年）。[86] K. Novoselov, A. Mishchenko, A. Carvalho 和 A. Cas- tro Neto，《二维材料与范德华异质结构》，《科学》353, aac9439（2016年）。[87] J. Flick, M. Ruggenthaler, H. Appel 和 A. Rubio，《量子电动力学密度泛函理论的 Kohn-Sham 方法：实空间中的精确含时有效势》，《美国国家科学院院刊》112, 15285（2015年）。[88] J. Flick, D. Welakuh, M. Ruggenthaler, H. Appel 和 A. Rubio，《非相对论量子电动力学中的光-物质响应》，ACS Photonics 6, 2757（2019年）。[89] M. Ruggenthaler, J. Flick, C. Pellegrini, H. Appel, I. Tokatly 和 A. Rubio，《量子电动力学密度泛函理论：连接量子光学与电子结构理论》，《物理评论A》**90**，012508（2014年）。[90] A. Abrikosov、L. Gor'kov 和 I. Dzyaloshinskii, *Methodsof Quantum Field Theory in Statistical Physics*（Dover Publications，1963年）。

附录 A：松原形式

在松原方法中，我们通过泛函积分引入配分函数

$$Z = \int \mathcal{D}[Q, A, \chi] e^{-S[Q,A,\chi]}. \tag{A1}$$

松原作用量在 Weyl 规范下写为$\phi = 0$。原则上，该规范并不唯一，需要进一步进行规范固定，因为矢势仍可作如下形式的静态梯度平移：$\mathbf{A} \rightarrow \mathbf{A} + \nabla\chi$ 其中 χ 与时间无关。不过，我们认为，这种残余的不确定性不会给路径积分的处理带来问题。尽管如此，今后仍应采用更严格、更精细的方法，例如法捷耶夫-波波夫方法。

在松原形式中书写电磁场时有一个微妙之处：电场 $\mathbf{E}$ 实际上是正则动量（它是坐标$\mathbf{A}$对时间的导数），因此与极化耦合时会多出一个因子 i。因此，作用量写作拉格朗日量对空间和虚时间的积分

$$\mathcal{L} = \frac{1}{2}\left[\left(\frac{\partial \mathbf{A}}{\partial \tau}\right)^2 + (\nabla \times \mathbf{A})^2 + \left(\frac{\partial \mathbf{Q}}{\partial \tau}\right)^2 + \Omega_0^2 \mathbf{Q}^2\right] + i\eta \mathbf{Q} \cdot \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial \tau} + i\frac{1}{2}\chi(x)\mathbf{Q}^2 + \frac{1}{4\lambda}\chi^2 \tag{A2}$$

$\tau \in [0, \beta]$。这里可以看到，回到实时间后，声子与光子通过电偶极耦合$\mathbf{Q} \cdot i\partial_\tau \mathbf{A} \rightarrow \mathbf{Q} \cdot \mathbf{E}$ 发生杂化。由于电磁场会发生色散（这是由磁感应造成的），它也必须满足边界条件；在本例中，这些边界条件与我们先前采用的理想金属边界条件相同。

最后一项是哈伯德-斯特拉托诺维奇项，用于在哈特里通道中解耦四次声子-声子相互作用。这里的因子 i反映了该相互作用具有排斥性。可以对 χ 积分，从而将理论恢复为关于$\mathbf{A}$ 和$\mathbf{Q}$ 的标准形式，其中包含非线性项 $\sim \lambda(\mathbf{Q}^2)^2$。定性而言，$\chi$ 表示声子频率从裸值Ω_0 重整化至物理值Ω_T，后者受到声子-声子相互作用的重整化。

现在我们将证明，直到单圈阶，这也会得到与上述涨落耗散定理计算相同的结果。具体而言，我们预期 χ 中的鞍点对应于

自洽哈特里近似。形式上，我们可以通过对现在以二次形式出现的声子和光子进行积分，精确地得到

$$\frac{\beta}{2\lambda}\chi(x)+\frac{\delta W[\chi]}{\delta\chi(x)}=0 \tag{A3}$$

含有泛函行列式

$$W[\chi]=\frac{1}{2}\mathbf{Tr}\log\mathbb{K}[A] \tag{A4}$$

其中，核可视为 Matsubara 作用量的高斯部分。

若作出试探形式，假设鞍点处的自能 χ 与时间无关，则这一表达式可得到简化。接着，我们可以对 $\mathbf{Q}$ 作位移以“配方”，并在频域中写为

$$\mathbf{Q}(x)=\delta\mathbf{Q}(x)-\frac{\eta\omega_m}{\omega_m^2+\Omega_0^2+i\chi(\mathbf{r})}\mathbf{A}(x). \tag{A5}$$

正如我们在第一节所论述的，第一项描述“未屏蔽”的涨落，而第二项描述由电磁场引起的屏蔽。写作 $\chi(\mathbf{r})$，意味着我们允许声子自能发生非均匀位移，这正是我们预期在系统边界附近出现的情况。

经过这一变换，核解耦为由 $\delta\mathbf{Q}(x)$ 引起的部分和由介电能引起的部分。我们还看到，对 χ 的变分可以表述为对缀饰声子频率的变分，因为二者的关系为

$$\Omega_T^2(\mathbf{r})=\Omega_0^2+i\chi(\mathbf{r})\Rightarrow\frac{\delta}{\delta\chi(\mathbf{r})}=i\frac{\delta}{\delta(\Omega_T^2(\mathbf{r}))}. \tag{A6}$$

完成变换后，我们发现该泛函包含两项；

$$W_0[\chi]=\frac{1}{2}\sum_{\omega_m}\mathbf{Tr}\log\left[\mathbb{1}\delta^3(\mathbf{r}'-\mathbf{r})\left(\omega_m^2+\Omega_T^2(\mathbf{r})\right)\right] \tag{A7}$$

来自未屏蔽响应（在没有声子色散的情况下，它是纯粹局域的，并随紫外截断发散，如 Λ^d ；以及

$$W_{scr}[\chi]=\frac{1}{2}\sum_{\omega_m}\mathbf{Tr}\log\left[\delta^3(\mathbf{r}'-\mathbf{r})\left(\epsilon(i\omega_m,\mathbf{r})\omega_m^2\mathbb{1}-\nabla^2+\nabla\nabla\cdot\right)\right] \tag{A8}$$

来自介电屏蔽。现在，所有对 χ 的依赖都通过

$$\epsilon(i\omega_m,\mathbf{r})=1+\frac{\eta^2}{\omega_m^2+\Omega_T^2(\mathbf{r})}. \tag{A9}$$

因此，我们可以很容易地用 Matsubara 格林函数来计算导数（请注意，此处的负号与通常的定义不同）

$$\mathscr{D}_0(\mathbf{r},\mathbf{r}';\omega_m)=\left[\mathbb{1}\delta^3(\mathbf{r}'-\mathbf{r})\left(\omega_m^2+\Omega_T^2(\mathbf{r})\right)\right]^{-1} \tag{A10a}$$

$$\mathscr{G}(\mathbf{r},\mathbf{r}';\omega_m)=\left[\delta^3(\mathbf{r}'-\mathbf{r})\left(\epsilon(i\omega_m,\mathbf{r})\omega_m^2\mathbb{1}-\nabla^2+\nabla\nabla\cdot\right)\right]^{-1} \tag{A10b}$$

(A10c)

as

$$\frac{\delta W[\chi]}{\delta\chi(\mathbf{r})}=i\frac{1}{2}\sum_{\omega_m}\mathbf{tr}\left[\mathscr{D}_0(\mathbf{r},\mathbf{r};\omega_m)+\omega_m^2\frac{\delta\epsilon(i\omega_m)}{\delta\Omega_T^2}\mathscr{G}(\mathbf{r},\mathbf{r};\omega_m)\right]. \tag{A11}$$

因此，我们得到一个关于 $i\chi(\mathbf{r})=\Omega_T^2(\mathbf{r})-\Omega_0^2$ 的方程

$$\begin{aligned}&\frac{1}{\lambda}\left(\Omega_T^2(\mathbf{r})-\Omega_0^2\right)\\&=T\sum_{\omega_m}\mathbf{tr}\left[\mathscr{D}_0(\mathbf{r},\mathbf{r};\omega_m)+\omega_m^2\frac{\delta\epsilon(i\omega_m,\mathbf{r})}{\delta\Omega_T^2}\mathscr{G}(\mathbf{r},\mathbf{r};\omega_m)\right].\end{aligned} \tag{A12}$$

Ω_0^2 是一个反项，其取值由重整化条件确定，使$\Omega_T^2(\mathbf{r})$在给定温度下与体相值相符。

若将右侧按 λ展开至最低阶（即不进行自洽计算），并令$\Omega_T^2(\mathbf{r})=\Omega_{TO}^2$取体纵向光学模频率，则可重新得到上一节的结果。此时，右侧就是以松原求和形式计算的 $\langle\mathbf{Q}(\mathbf{r},t)^2\rangle$ 。只要能够计算格林函数，就可以高效且无偏地进行求值。

附录 B：变分方法

作为最后的合理性检验，我们还给出了基于变分方法推导热力学自由能的过程。我们仍采用松原形式，但不使用哈伯德–斯特拉托诺维奇变换，而是采用费曼–吉布斯–博戈柳博夫不等式。为此，我们将配分函数写为

$$Z=\int\mathcal{D}[\mathbf{Q},\mathbf{A}]e^{-S}=\int\mathcal{D}[\mathbf{Q},\mathbf{A}]e^{-S_{\text{eff}}}e^{-(S-S_{\text{eff}})}. \tag{B1}$$

随后选择有效作用量作为变分试探形式。我们采用

$$S_{\text{eff}}^1=\int d^3r\sum_{\omega_m}\left[\frac{1}{2}\mathbf{Q}_{-\omega}(\omega_m^2+\Omega_T^2(\mathbf{r}))\mathbf{Q}_\omega+\eta\omega_m\mathbf{Q}_{-\omega}\cdot\mathbf{A}_\omega\right]+S_{\text{Maxwell}}, \tag{B2}$$

这实质上是用局域的有效横向光学频率取代裸横向光学频率和相互作用。请注意，这与文献 [25] 迄今为止的分析仅在于选择了局域变分横向光学频率，而非单一的全局参数。对于这种试探形式，可以利用上述框架轻松计算关联函数，因为试探形式中使用的有效作用量是二次且与时间无关的。

随后，我们通过费曼-博戈柳博夫不等式，得到自由能关于试探形式的一个上界：

$$W[\Omega_T^2(\mathbf{r})]\leq W_{\text{eff}}+\langle S-S_{\text{eff}}\rangle_{\text{eff}}. \tag{B3}$$

第一项只是非相互作用试探形式的自由能，而第二项则变为

$$\langle S-S_{\rm eff}\rangle_{\rm eff}=\int d^4x\left[\frac{\lambda}{4}\langle(\mathbf{Q}^2(x))^2\rangle+\frac{1}{2}(\Omega_0^2-\Omega_T^2(\mathbf{r}))\langle\mathbf{Q}^2(x)\rangle\right]. \tag{B4}$$

可以使用维克定理对其求值。现在，我们改变参数 $\Omega_T^2(\mathbf{r})$，以找到自由能的最佳近似。通过进行正则变换（如附录A中所做的那样），可以简化求值过程。我们将 $\mathbf{Q}=\delta\mathbf{Q}-\frac{\eta\omega_m}{\omega_m^2+\Omega_T^2(\mathbf{r})}\mathbf{A}$ 平移。这样便可将自由能导数表示为

$$\frac{\delta W_{\rm eff}}{\delta\Omega_T^2(\mathbf{r})}=\frac{1}{2}\sum_{\omega_m}\mathbf{tr}\hat{\mathscr{D}}_0(\mathbf{r},\mathbf{r};\omega_m)+\frac{\delta\epsilon(i\omega_m,\mathbf{r})}{\delta\Omega_T^2(\mathbf{r})}\omega_m^2\mathbf{tr}\hat{\mathscr{G}}(\mathbf{r},\mathbf{r};\omega_m) \tag{B5}$$

其中两个格林函数为

$$\hat{\mathscr{D}}_0(\mathbf{r},\mathbf{r}';\omega_m)=\langle\delta\mathbf{Q}_{-\omega}(\mathbf{r})\delta\mathbf{Q}_{\omega}(\mathbf{r}')\rangle_{\rm eff} \tag{B6}$$

and

$$\hat{\mathscr{G}}(\mathbf{r},\mathbf{r}';\omega_m)=\langle\mathbf{A}_{-\omega}(\mathbf{r})\mathbf{A}_{\omega}(\mathbf{r}')\rangle_{\rm eff} \tag{B7}$$

介电常数可表示为

$$\epsilon(i\omega_m,\mathbf{r})=1+\frac{\eta^2}{\omega_m^2+\Omega_T^2(\mathbf{r})}. \tag{B8}$$

此外，直接考察可知，

$$\frac{\delta W_{\rm eff}}{\delta\Omega_T^2(\mathbf{r})}=\int d\tau\frac{1}{2}\langle\mathbf{Q}^2(\mathbf{r})\rangle_{\rm eff}=\frac{1}{2}\sum_{\omega_m}\langle\mathbf{Q}_{-\omega}(\mathbf{r})\cdot\mathbf{Q}_{\omega}(\mathbf{r})\rangle_{\rm eff}, \tag{B9}$$

这意味着，局域 TO 频率是一个变分参数，它与局域声子涨落共轭。

现在我们可以证明，这与前述两种方法等价。首先，我们使用维克定理，将四次项表示为二次传播子的形式。在各向同性顺电相中，有

$$\langle Q^a(x)Q^aQ^b(x)Q^b(x)\rangle=\left(\langle\mathbf{Q}(x)^2\rangle\right)^2+\frac{2}{d}\left(\langle\mathbf{Q}(x)^2\rangle\right)^2, \tag{B10}$$

其中 d 是空间维数。在大 d 极限下，这仅仅是哈特里项，而福克项在该极限下是次领先的。

现在我们可以写出变分泛函，利用上文推导出的相互作用表达式，以及 $\langle\mathbf{Q}(x)^2\rangle$ 与 $W_{\rm eff}$ 的导数之间的关系，得到精确结果

$$W=W_{\rm eff}+\int d^3r'(\Omega_0^2-\Omega_T^2(\mathbf{r}))\frac{\delta W_{\rm eff}}{\delta\Omega_T^2(\mathbf{r}')}+\frac{u}{\beta}(1+\frac{2}{d})\left(\frac{\delta W_{\rm eff}}{\delta\Omega_T^2(\mathbf{r}')}\right)^2. \tag{B11}$$

现在，我们对参数 $\Omega_T^2(\mathbf{r})$ 求导。应用链式法则后，可得

$$\frac{\delta W}{\delta\Omega_T^2(\mathbf{r})}=F-F+\left[\Omega_0^2-\Omega_T^2(\mathbf{r})\right]\frac{\delta F}{\delta\Omega_T^2}+2\frac{u}{\beta}(1+\frac{2}{d})F\frac{\delta F}{\delta\Omega_T^2},$$

其中 $F=\frac{\delta W_{\rm eff}}{\delta\Omega_T^2(\mathbf{r})}$ 是局域声子涨落密度。前两项相互抵消，而声子密度的导数通常取决于 TO 频率，因此变分方程可简化为

as

$$\left[\Omega_0^2-\Omega_T^2(\mathbf{r})\right]+2uT(1+\frac{2}{d})\frac{\delta W_{\rm eff}}{\delta\Omega_T^2(\mathbf{r})}=0. \tag{B12}$$

我们注意到，除了有限 d 下福克修正带来的 $2/d$ 因子外，这与我们通过哈伯德-斯特拉托诺维奇方法得到的条件完全一致。

附录 C：高温行为

这里我们提供另一种论证，说明为何横向电磁模在高温下会解耦。我们从描述声子及其与电磁场耦合的量子有限温度拉格朗日量入手，并采用规范无关的形式

$$\mathscr{L}=\frac{1}{2}\left[\left(\frac{\partial\mathbf{Q}}{\partial\tau}\right)^2+\Omega_0^2\mathbf{Q}^2\right]+\frac{1}{2}\left[\left(\nabla\phi+\frac{\partial\mathbf{A}}{\partial\tau}\right)^2+(\nabla\times\mathbf{A})^2\right]+i\eta\mathbf{Q}\cdot\left(\frac{\partial\mathbf{A}}{\partial\tau}+\nabla\phi\right). \tag{C1}$$

如果对耦合项进行分部积分，将其直接表示为规范场，我们就能更清楚地说明这一点

$$\mathscr{L} = \frac{1}{2}\left[\left(\frac{\partial \mathbf{Q}}{\partial \tau}\right)^2 + \Omega_0^2 \mathbf{Q}^2\right] + \frac{1}{2}\left[\left(\nabla\phi + \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial \tau}\right)^2 + (\nabla \times \mathbf{A})^2\right] - i\eta\left[\phi \nabla \cdot \mathbf{Q} + \mathbf{A} \cdot \frac{\partial \mathbf{Q}}{\partial \tau}\right]. \tag{C2}$$

我们选择库仑规范，其中 $\nabla \cdot \mathbf{A} = 0$，因此$\mathbf{A}$ 显然会与声子模诱导的**横向** 电流耦合，因为这些电流是真正的辐射自由度。

于是我们可以将辐射耦合的纵向部分和横向部分分开，写为

$$\mathscr{L}_{\text{int}}^{\parallel} = \frac{1}{2}(\nabla\phi)^2 - i\eta\phi\nabla \cdot \mathbf{Q}^{\parallel}. \tag{C3}$$

这显然使 LO声子模具有长程库仑相互作用。它也显然与声子坐标$\mathbf{Q}$ 耦合，并且在经典极限下完全合理：此时 $\mathbf{Q}$ 和 ϕ 变为“与时间无关”，而对马茨巴拉时间的积分则简单地变为$\int_0^\beta d\tau \to 1/T$。

另一方面，横向模通过以下方式耦合：

$$\mathscr{L}_{\text{int}}^{\perp} = \frac{1}{2}\left(\frac{\partial \mathbf{A}}{\partial \tau}\right)^2 + \frac{1}{2}(\nabla \times \mathbf{A})^2 - i\eta \mathbf{A} \cdot \frac{\partial \mathbf{Q}^{\perp}}{\partial \tau}. \tag{C4}$$

我们注意到几点重要事项。首先，辐射电场既具有迟滞效应（源于第一项），也具有由第二项的感应响应引起的内禀动力学。其次，我们看到该电场与横向声子**电流** 耦合。在经典极限（高温极限）下，$(\partial_\tau \mathbf{A})^2$ 所导致的迟滞效应会消失，因为热隧穿事件 $\sim T$ 的代价受到抑制，最终得到

$$\mathscr{L}_{\text{int}}^{\perp} = \frac{1}{2}(\nabla \times \mathbf{A})^2 - i\mathbf{A} \cdot \mathbf{J}^{\perp}. \tag{C5}$$

在这种情况下，电流 $\mathbf{J}^{\perp} = \eta\partial_\tau \mathbf{Q}$ 本质上是与介电极化相关的正则动量，但在高温下，它与 $\mathbf{Q}$不再相关。因此，光子场确实会修饰声子电流涨落$\langle(\mathbf{J}^{\perp})^2\rangle$的期望值，但此时它与声子涨落 $\langle\mathbf{Q}^2\rangle$无关。由此可见，这是一种量子效应，因为光子仅通过声子位移与电流之间的对易关系 $[\mathbf{Q},\mathbf{J}] \neq 0$与声子位移耦合，而在高温下这种耦合消失。

附录 D：腔体中格林函数的计算

这里我们详细阐述板层几何中格林函数的计算细节。这主要遵循参考文献 [90], ，该文计算了几乎与我们所需相同的量，但只在法布里-珀罗几何的边界处求值；我们则希望在体相中进行局域求值。我们必须求得 Weyl 规范下矢势的 Matsubara 格林函数。它满足以下方程

$$\left[\omega_m^2 \epsilon(i\omega_m) + \begin{pmatrix} -\partial_z^2 & 0 & iq\partial_z \\ 0 & q^2 - \partial_z^2 & 0 \\ iq\partial_z & 0 & q^2 \end{pmatrix}\right] \hat{\mathbb{G}}(z, z') = \delta(z - z') \tag{D1}$$

其中 q 是面内动量，我们令其沿$\hat{\mathbf{e}}_x$ 方向（只要体系具有面内各向同性，这样做就是可行的）。

显然，该问题可分解为横向电场（TE）模，其满足

$$\left[\omega_m^2 \epsilon(i\omega_m) + q^2 - \partial_z^2\right] G_{yy}(z, z') = \delta(z - z') \tag{D2}$$

（它们的电场沿$\hat{\mathbf{e}}_y$ 方向极化，该方向与动量垂直），以及彼此耦合并满足方程的横向磁（TM）模和纵向（L）模

$$\left[\omega_m^2 \epsilon(i\omega_m) + \begin{pmatrix} -\partial_z^2 & iq\partial_z \\ iq\partial_z & q^2 \end{pmatrix}\right] \hat{\mathbb{G}}(z, z') = \delta(z - z'). \tag{D3}$$

我们还在 $\pm L/2$ 处对 x, y 分量施加边界条件。

我们先讨论 TE 模。利用匹配法可以解析求解这些模。我们几乎可以立即写出解（经过一番深入思考之后）。

$$G_{yy}(z, z') = \begin{cases} A \sinh\kappa(L/2 - z)\sinh\kappa(z' + L/2) & z > z' \\ A \sinh\kappa(L/2 - z')\sinh\kappa(z + L/2) & z < z'. \end{cases} \tag{D4}$$

我们已引入 $\kappa = \sqrt{\omega_m^2 \epsilon(i\omega_m) + q^2}$。现在剩下的就是在 $z = z'$ 处施加导数连续性条件。对奇点两侧积分并利用双曲三角恒等式，我们得到以下关系

$$A\kappa \sinh\kappa L = 1. \tag{D5}$$

因此，我们得到 TE 模格林函数的解析形式：

$$G_{yy}(z, z') = \frac{1}{\kappa \sinh\kappa L} \times \begin{cases} \sinh\kappa(L/2 - z)\sinh\kappa(z' + L/2) & z > z' \\ \sinh\kappa(L/2 - z')\sinh\kappa(z + L/2) & z < z'. \end{cases} \tag{D6}$$

其余两种模的情况更为复杂，尤其是由于方程为二阶耦合方程，

在消去变量后，可能会得到一个四阶方程。下面明确写出所有方程

$$(\omega_m^2\epsilon(i\omega_m)-\partial_z^2)G_{xx}(z,z')+iq\partial_z G_{zx}(z,z')=\delta(z-z') \tag{D7a}$$
$$\kappa^2 G_{zz}(z,z')+iq\partial_z G_{xz}(z,z')=\delta(z-z') \tag{D7b}$$
$$(\omega_m^2\epsilon(i\omega_m)-\partial_z^2)G_{xz}(z,z')+iq\partial_z G_{zz}(z,z')=0 \tag{D7c}$$
$$iq\partial_z G_{xx}(z,z')+\kappa^2 G_{zx}(z,z')=0. \tag{D7d}$$

我们可以在局域上消去 G_{zx} ，得到

$$G_{zx}(z,z')=-\frac{1}{\kappa^2}iq\partial_z G_{xx}(z,z') \tag{D8}$$

给出

$$(\omega_m^2\epsilon(i\omega_m)-\partial_z^2+\frac{q^2}{\kappa^2}\partial_z^2)G_{xx}(z,z')=\delta(z-z') \tag{D9}$$

对于面内分量。稍作简化后得到

$$(\kappa^2-\partial_z^2)G_{xx}(z,z')=\frac{\kappa^2}{\omega_m^2\epsilon(i\omega_m)}\delta(z-z') \tag{D10}$$

事实上，这可以像 TE 模那样轻易求解，因为我们只需替换常数前因子A。于是得到

$$G_{xx}(z,z')=\frac{\kappa}{\omega_m^2\epsilon(i\omega_m)\sinh\kappa L}\times\begin{cases}\sinh\kappa(L/2-z)\sinh\kappa(z'+L/2) & z>z'\\ \sinh\kappa(L/2-z')\sinh\kappa(z+L/2) & z<z'.\end{cases} \tag{D11}$$

总之，我们由此得到各项 $G_{xx}(z,z)+G_{yy}(z,z)$之和

$$\mathbf{tr}\mathbb{G}_{\parallel}(z,z)=\frac{\sinh\kappa(L/2-z)\sinh\kappa(L/2+z)}{\sinh\kappa L}\left[\frac{1}{\kappa}+\frac{\kappa}{\omega_m^2\epsilon(i\omega_m)}\right]. \tag{D12}$$

虽然这本身并不奇异，但我们仍需对 q 进行积分，而这通常会引入截止依赖性。

最后一步最为困难；我们必须确定 G的法向分量。按照参考文献 [90]，先求得非对角分量

$$G_{zx}(z,z')=-\frac{iq}{\kappa^2}\partial_z G_{xx}(z,z'). \tag{D13}$$

因此，Ref. [90],中似乎作出了一个假设，而我们似乎也必须作出这一假设，即格林函数具有互易性，也就是说，我们可以交换 G_{zx} 和 G_{xz}，从而使方程组闭合。只要系统保持时间反演对称性，或者更重要的是保持互易性，这一假设似乎就是成立的。

如果我们作此简化，就可以由 G_{zx}得到 G_{zz}，最终得到

$$\kappa^2 G_{zz}(z,z')=(\omega_m^2\epsilon(i\omega_m)-\partial_z^2)G_{xx}(z,z'). \tag{D14}$$

我们还可以利用关于 G_{xx} 的方程消去导数，因为该导数作用于格林函数时非常奇异。这样，我们便得到如下非齐次方程

$$\kappa^2 G_{zz}(z,z')=-q^2 G_{xx}(z,z')+\frac{\kappa^2}{\omega_m^2\epsilon(i\omega_m)}\delta(z-z'), \tag{D15}$$

使得我们有

$$G_{zz}(z,z')=-\frac{q^2}{\kappa^2}G_{xx}(z,z')+\frac{1}{\omega_m^2\epsilon(i\omega_m)}\delta(z-z'). \tag{D16}$$

事实上，最后一项是最严重奇异性的来源，因为格林函数本身在$z=z'$处是奇异的，而不仅仅是不可微。不过，值得庆幸的是，这一项本质上是常数，与几何结构无关。因此，我们得到局域矢势涨落的完整表达式：

$$\mathbf{tr}\mathbb{G}(z,z) = \frac{\sinh\kappa(L/2-z)\sinh\kappa(L/2+z)}{\sinh\kappa L} \times \left[\frac{1}{\kappa} + \frac{\kappa}{\omega_m^2\epsilon(i\omega_m)} - \frac{q^2}{\kappa\omega_m^2\epsilon(i\omega_m)}\right] + \frac{1}{\omega_m^2\epsilon(i\omega_m)}\delta(0). \quad \text{(D17)}$$

方括号中的量可以简化为

$$\left[\frac{1}{\kappa} + \frac{\kappa}{\omega_m^2\epsilon(i\omega_m)} - \frac{q^2}{\kappa\omega_m^2\epsilon(i\omega_m)}\right] = \frac{2}{\kappa}. \quad \text{(D18)}$$

因此，我们得到电场涨落的结果，其权重还额外乘以因子 ω_m^2。由此可得

$$\omega_m^2\mathbf{tr}\mathbb{G}(z,z) = \frac{\omega_m^2}{2\kappa}\frac{\sinh\kappa(L/2-z)\sinh\kappa(L/2+z)}{\sinh\kappa L} + \frac{1}{\epsilon(i\omega_m)}\delta(0). \quad \text{(D19)}$$

现在我们必须减去与几何结构或系统尺寸无关的部分。具体而言，卡西米尔公式关注的是

$$\Delta\langle EE\rangle = \omega_m^2\left[\mathbf{tr}\mathbb{G}(z,z) - \mathbf{tr}\mathbb{G}(0,0)\Big|_{L\to\infty}\right]. \quad \text{(D20)}$$

我们得到一个简单的结果：

$$\Delta\langle EE\rangle = \frac{\omega_m^2}{2\kappa}\left(\frac{\sinh\kappa(L/2-z)\sinh\kappa(L/2+z)}{\sinh\kappa L} - \frac{1}{2}\right). \quad \text{(D21)}$$

因此，结果相对简单（不过需要明确的是，我们仍需对 q 积分并对 ω_m 求和）。

不过，我们已经可以看出，与体相相比，表面处的结果将为正。具体而言，我们有

$$\Delta\langle EE\rangle(L/2) - \Delta\langle EE\rangle(0) = -\frac{\omega_m^2}{2\kappa}\sinh^2(\kappa L/2)/\sinh\kappa L. \quad \text{(D22)}$$

因此，这显然为负；现在，回想一下，由于介电常数的变化与声子频率成反比，总体贡献正比于 $-\langle E^2\rangle$，我们便发现这会导致边界处发生模硬化。

总之，我们发现，包含马祖巴拉求和与动量积分后的最终结果为

$$\Delta\Omega_T^2(z) = \lambda T\sum_{\omega_m}\int^{\Lambda}\frac{d^2q}{(2\pi)^2}\frac{\partial\epsilon(i\omega_m)}{\partial\Omega_T^2}\frac{\omega_m^2}{2\kappa}\left(\frac{\sinh\kappa(L/2-z)\sinh\kappa(L/2+z)}{\sinh\kappa L} - \frac{1}{2}\right). \quad \text{(D23)}$$

这需要通过数值计算求得。我们确实需要

需要小心，因为被积函数在较小的 q, ω 处是奇异的。因此，我们通过数值计算

$$\Delta\Omega_T^2(z) = \frac{\lambda}{2\pi}T\sum_{m=1}^{\frac{\omega_c}{2\pi T}}\left[-\frac{\omega_m^2\eta^2}{(\omega_m^2+\Omega_T^2)^2}\right]\int_{\sqrt{\omega_m^2\epsilon(i\omega_m)}}^{\sqrt{\omega_m^2\epsilon(i\omega_m)+\Lambda^2}} d\kappa\frac{1}{2\kappa}\left(\frac{\sinh\kappa(L/2-z)\sinh\kappa(L/2+z)}{\sinh\kappa L} - \frac{1}{2}\right) + \frac{\lambda}{4\pi T}\left[-\frac{\eta^2}{\Omega_T^4}\right]\lim_{\omega\to 0}\omega^2\int_{\omega\sqrt{\epsilon(0)}}^{\Lambda} d\kappa\frac{1}{2\kappa}\left(\frac{\sinh\kappa(L/2-z)\sinh\kappa(L/2+z)}{\sinh\kappa L} - \frac{1}{2}\right). \quad \text{(D24)}$$

前几项是量子修正，可通过对 $m = \pm1, \pm2 ...$ 马茨巴拉频率求和来计算，而且数值计算相对容易。最后一项是经典贡献

由于当$\omega \to 0$时存在奇异极限，因此难以求值。最后一项在此极限下确实趋于零。我们先通过 $x = \kappa L$ 对被积函数进行变形，再利用三角恒等式，得到

$$\lim_{\omega\to 0}\omega^2\int_{\omega\sqrt{\epsilon(0)}}^{\Lambda}d\kappa\frac{1}{2\kappa}\left(\frac{\sinh\kappa(L/2-z)\sinh\kappa(L/2+z)}{\sinh\kappa L}-\frac{1}{2}\right)=\lim_{\omega\to 0}\frac{\omega^2}{4}\int_{L\omega\sqrt{\epsilon(0)}}^{L\Lambda}\frac{dx}{x}\left[-1+\frac{\sinh x(\frac{1}{2}-s)\sinh x(\frac{1}{2}+s)}{\sinh x}\right]. \tag{D25}$$

现在可以对其应用洛必达法则，从而确定

该结果。应用一次后，我们得到

$$\lim_{\omega\to 0}\frac{\omega^2}{4}\int_{L\omega\sqrt{\epsilon(0)}}^{L\Lambda}\frac{dx}{x}\left[-1+\frac{\sinh x(\frac{1}{2}-s)\sinh x(\frac{1}{2}+s)}{\sinh x}\right]=\lim_{\omega\to 0}\frac{1}{2/\omega^3}\frac{1}{4}\frac{1}{x}\left[-1+\frac{\sinh x(\frac{1}{2}-s)\sinh x(\frac{1}{2}+s)}{\sinh x}\right]\Big|_{x=L\sqrt{\epsilon(0)}\omega}. \tag{D26}$$

括号中的第一项不具有奇异性，因此我们得到

$$\lim_{\omega\to 0}\frac{\omega^2}{4}\int_{L\omega\sqrt{\epsilon(0)}}^{L\Lambda}\frac{dx}{x}\left[-1+\frac{\sinh x(\frac{1}{2}-s)\sinh x(\frac{1}{2}+s)}{\sinh x}\right]=\lim_{\omega\to 0}\frac{\omega^2}{8}\frac{1}{L\sqrt{\epsilon(0)}}\left[\frac{\sinh x(\frac{1}{2}-s)\sinh x(\frac{1}{2}+s)}{\sinh x}\right]\Big|_{x=L\sqrt{\epsilon(0)}\omega}. \tag{D27}$$

为进一步推导，我们写作

$$\sinh x(\frac{1}{2}-s)\sinh x(\frac{1}{2}+s)=\frac{1}{2}(\cosh x-\cosh 2xs).$$

再次地，第一项的奇异性不足以抵消 ω^2 分子。因此，我们发现唯一可能的解决途径是计算

$$\lim_{\omega\to 0}\frac{\omega^2}{4}\int_{L\omega\sqrt{\epsilon(0)}}^{L\Lambda}\frac{dx}{x}\left[-1+\frac{\sinh x(\frac{1}{2}-s)\sinh x(\frac{1}{2}+s)}{\sinh x}\right]=\lim_{\omega\to 0}\frac{\omega^2}{16}\frac{1}{L\sqrt{\epsilon(0)}}\frac{\cosh 2\omega\sqrt{\epsilon(0)}z}{\sinh L\sqrt{\epsilon(0)}\omega}. \tag{D28}$$

由于 z 最终受 $L/2$ 限制，它也不可能随 z 增长得足够快，从而产生奇异极限。因此我们看到，再次应用洛必达法则后，这个极限将趋于零。因此，我们可以完全忽略经典分量，因为它没有贡献

于该量。

这表明，静电涨落最终并未产生贡献，而我们发现，结果完全是由量子涨落造成的相对于

$$\Delta\Omega_T^2(z)=\frac{\lambda}{2\pi}T\sum_{m=1}^{\frac{\omega_c}{2\pi T}}\left[-\frac{\omega_m^2\eta^2}{(\omega_m^2+\Omega_T^2)^2}\right]\int_{\sqrt{\omega_m^2\epsilon(i\omega_m)}}^{\sqrt{\omega_m^2\epsilon(i\omega_m)+\Lambda^2}}d\kappa\frac{1}{2\kappa}\left(\frac{\sinh\kappa(L/2-z)\sinh\kappa(L/2+z)}{\sinh\kappa L}-\frac{1}{2}\right). \tag{D29}$$