arXiv:2302.01105v2 [quant-ph] 6 Oct 2023

《光子关联中的声子特征》

Ben S. Humphries，[1] Dale Green，[1] Magnus O. Borgh，[2]、* 以及 Garth A. Jones[1]，†[1]化学学院，东英吉利大学，诺里奇研究园，诺里奇，*NR4 7TJ*，英国[2]物理学，理学院，东英吉利大学，诺里奇 *NR4 7TJ*，英国

我们表明，热浴中振动电子分子发射的声子和光子的二阶双时关联函数分别呈现聚束和反聚束（纯粹的量子效应）。光子-光子关联中揭示了与环境中的声子交换有关的特征。我们证明，交叉关联函数强烈依赖于探测顺序，从而让我们得以了解声子动力学如何影响光发射。这项工作为研究凝聚相分子系统中的量子效应提供了新的机会。

光子发射的关联测量是展示量子效应的有力工具。最引人注目的例子之一，是实验发现荧光原子的光子发射存在反聚束 [1, 2],，这首次直接展示了光的量子性质 [3]。反聚束 [4]是指紧接着第一个光子发射的第二个光子的发射受到抑制这一现象。在t和$t+\tau$时探测到两个光子的联合概率，由二阶关联函数 [5]量化。在经典发射中，该函数可能在 $\tau = 0$处达到最大值；而随 $\tau \to 0$衰减的二阶关联只能作为纯粹的量子现象出现。因此，二阶关联函数构成了一种强有力的统计工具，已被用于研究光子发射和光子介导相互作用的基本性质，例如波导 [6]中的传输以及等离激元纳米结 [7], 中的发射所呈现的聚束和反聚束、光诱导成核 [8], 中的图案形成、光学腔 [10–14] 中的光子阻塞效应 [9] （包括强耦合 [15]时响应的改变）、原子阵列 [16, 17], , 以及量子发射体 [17, 18]集合中的超原子行为。更高阶关联 [19]还可以揭示双光子阻塞。

在上述所有示例中，关联都体现于发射的光中。然而，量子关联函数的用途并不局限于光子研究。类似技术也已用于描述光机械 [20, 21]和自旋机械 [22, 23]系统中的声子阻塞。值得注意的是，非同一粒子与准粒子之间的二阶交叉关联函数可以揭示诸如耦合微腔的亚铁磁材料中的光子-磁振子阻塞 [24], , 以及强耦合下量子比特-声子-等离激元系统中的光子-声子聚束和反聚束 [25]。

近年来，人们对分子系统中凝聚相共振能量转移的电子相干性和振动相干性的本质表现出浓厚兴趣 [26,27]。然而，其确切性质究竟是经典还是量子，仍存在争议 [28, 29]。这是因为用于研究这一问题的实验通常测量由诱导的宏观极化产生的光学响应，而宏观极化是一种经典性质 [30]。量子光学技术，例如关联测量 [31, 32], , 为研究提供了一条途径——直接探测分子系统中真正的量子效应。

在此，我们建立了一个开放量子系统模型，用于描述由连续单色激光场驱动的振电分子（图1）。模型纳入了振动和电子自由度，以及与热环境的耦合。我们计算了分子循环泵浦并发生振动弛豫（VR）期间的光子-光子、声子-声子和光子-声子关联。关键结果是：声子-声子关联揭示了声子与环境交换的特征，而这些特征可通过测量光发射获得。通过考察光子-声子交叉关联函数 [24, 25, 32–34], , 我们阐明了声子动力学如何影响光的发射。对这些特征的测量有助于揭示振动激发对光-物质相互作用过程量子性质的影响，适用系统涵盖亚波长分子阵列 [35] 到大型有机分子 [36]。

我们考虑一个模型系统，它由一个具有两个电子能级的简单分子组成，每个能级都包含一组N个振动态，并与无限个过阻尼量子谐振子模态组成的集合耦合 [37–39]。此前已有研究使用类似模型，探究振动环境对分子开放量子系统动力学的作用 [40, 41]。

总哈密顿量是以下各项的形式和

$$\hat{H}_{\text{tot}} = \hat{H}_S + \hat{H}_B + \hat{H}_{SB} + \hat{H}_{SF}, \tag{1}$$

它描述系统、热浴和系统-热浴相互作用，以及系统与光子场之间的耦合。分子受连续单色激光场 $\boldsymbol{E}_l = \mathrm{E}_0\mathrm{e}$ [$\exp(\mathrm{i}\omega_{eg}\mathrm{t}/\hbar) + \exp(-\mathrm{i}\omega_{eg}\mathrm{t}/\hbar)$], 驱动，其偏振为 e，频率 ω_{eg} 与基态^ (|g⟩) 和激发态 (|e⟩) 电子能级之间的基态跃迁共振，因此 $\mathrm{H}_{SF} = -\hat{\boldsymbol{\mu}} \cdot \boldsymbol{E}_l(\mathrm{r}, \mathrm{t})$。这里，$\hat{\boldsymbol{\mu}} = \mu_{eg}\mathrm{d}(|\mathrm{e}\rangle\langle \mathrm{g}| + |\mathrm{g}\rangle\langle \mathrm{e}|)$ 是跃迁偶极矩，其大小为 μ^{eg}，方向为 d，因此 $\hat{\mathrm{H}}_{SF} = \mathrm{E}_0\mu_{eg}\mathrm{e} \cdot \mathrm{d}[\exp(\mathrm{i}\omega_{eg}\mathrm{t}/\hbar) + \exp(-\mathrm{i}\omega_{eg}\mathrm{t}/\hbar)][\,|\mathrm{e}\rangle\langle \mathrm{g}| + |\mathrm{g}\rangle\langle \mathrm{e}|\,]$ [42]。激光驱动会产生受激光子发射，从而形成正频分量为 $\hat{\mathrm{E}}^{+}_{\mathrm{sc}} \sim \exp(\mathrm{i}\omega_{eg}\mathrm{t}/\hbar)\,|\mathrm{e}\rangle\langle \mathrm{g}|$ [43] 的散射电场。

振动自由度由以下方式描述：

$$\hat{H}_S = |g\rangle\hat{h}_g\langle g| + |e\rangle\hat{h}_e\langle e|. \tag{2}$$

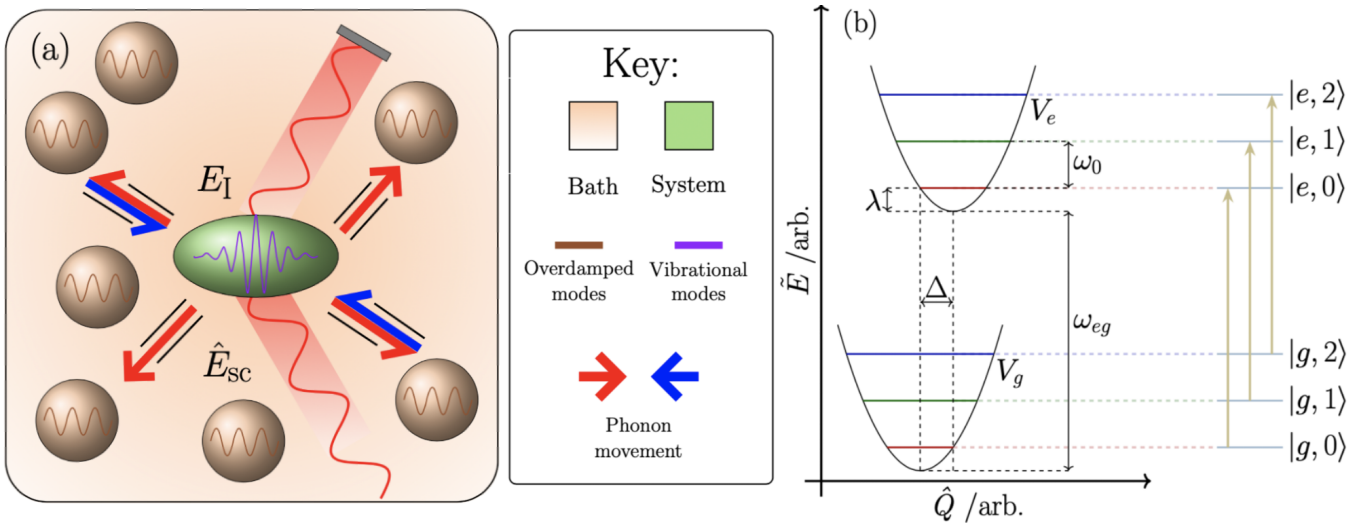

图 1。（a）分子与浴模耦合并受激光场 E_I 驱动的示意图，由此产生散射场 $\hat{E}_{sc}$。箭头表示系统与环境之间的声子运动。（b）透热能级，其中包括激发态位移 Δ、系统重组能 λ、基频跃迁频率 ω_{eg} 和系统模频率 ω_0。最右侧为相应的绝热能级。

基态和激发电子态的核哈密顿量分别定义为：

$$\hat{h}_g = \hbar\omega_0\left(\hat{b}^\dagger\hat{b} + \tfrac{1}{2}\right), \quad (3)$$

$$\hat{h}_e = \hbar(\omega_{eg} + \lambda) + \hbar\omega_0\left(\hat{b}^\dagger\hat{b} - \sqrt{\frac{\lambda}{\omega_0}}(\hat{b} + \hat{b}^\dagger) + \tfrac{1}{2}\right), \quad (4)$$

其中 ω_0 为系统模频率，$\hat{b}^\dagger$ 和 $\hat{b}$为系统声子产生与湮灭算符，分别对应于分子的振动态，而 λ 为系统重组能 [44]。该模型在透热（D）基组中构建，将振动态与电子态分离，从而产生显式的非对角耦合。因此，电子激发态，即式（4），相对于电子基态发生了 $\Delta = \sqrt{2\lambda\omega_0^{-1}}$的位移 [，另~~见图~~1（b）]。该位移体现了电子激发态平衡几何构型的变化。请注意，系统重组能 λ的增加对应于位移 Δ的增大。激发态势能还会发生能量偏移 $\hbar\omega_{eg}$，对应于基态跃迁。

不同于前文为清晰阐述哈密顿量的构建而采用的透热基，我们可以通过幺正变换 $\hat{H}^A_{tot} = (\hat{U}^{AD})^\dagger \hat{H}^D_{tot} \hat{U}^{AD}$ [41, 45] 对 $\hat{H}_{tot}$ 进行对角化，从而得到绝热（A）本征态 $|g,0\rangle, |g,1\rangle, \ldots, |e,0\rangle, |e,1\rangle, \ldots$（见图 1）。式（4）中系统重组能的存在意味着，能量本征态（绝热态的能量）与透热图像中的振动态能量相同，如图 1(b) 所示。绝热态直接对应于实验室可观测量。

振动弛豫是由于系统声子逃逸到环境中而发生的，环境被建模为一个无限的系综谐振子模。系统-浴耦合则描述为

$$\hat{H}_B + \hat{H}_{SB} = \sum_\alpha \frac{\hat{p}_\alpha^2}{2m_\alpha} + \frac{1}{2}m_\alpha\omega_\alpha^2\left(\hat{x}_\alpha - \frac{g_\alpha\hat{Q}}{2m_\alpha\omega_\alpha^2}\right)^2, \quad (5)$$

其中，$\hat{Q} = (\hat{b} + \hat{b}^\dagger)/\sqrt{2}$，$m_\alpha$、$\hat{p}_\alpha$ 和 $\hat{x}_\alpha$ 分别为环境谐振模的质量、动量和坐标，这些模对应于浴声子。第 α 个谐振子的耦合强度 g_α 由谱密度决定：$J(\omega) = \sum_\alpha g_\alpha^2(2m_\alpha)^{-1}\omega_\alpha\delta(\omega - \omega_\alpha)$。这种环境模型具有很强的普适性，原则上甚至可以用于模拟非马尔可夫型系统-浴耦合 [40]。不过，本文采用马尔可夫极限，并将环境简化为过阻尼布朗振子谱形 $J(\omega) = 2\eta\omega\Lambda(\omega^2+\Lambda^2)^{-1}$，其浴重组能为 η，耗散率为 Λ。过阻尼谱密度会在核动力学中引入随机的高斯涨落，这代表了分子与溶剂相互作用所产生的低频分子间振动模。系统与浴的核坐标之间的耦合会导致振动退相干 [47, 48] 和耗散。对于求解由式（1）及类似开放量子系统 [7, 13, 31, 49–51]所导出的通常计算量较大的运动方程，存在多种不同方法。本文采用参考文献 [40]中的过阻尼极限下的层级运动方程（HEOM）方法 [52, 53]，演化振电分子；该模型等价于参考文献 [41] 中振电单体的哈密顿量振动模型。

通过对量子动力学进行分层运动方程模拟，我们能够数值计算分子发射光子和声子的关联函数。具体而言，光子和声子的关联发射

可通过归一化的二阶关联函数进行量化

$$g^{(2)}_{c_1c_2}(t,\tau)=\frac{\langle\hat{c}_1(t)\hat{c}_2(t+\tau)\hat{c}_2^{\dagger}(t+\tau)\hat{c}_1^{\dagger}(t)\rangle}{\langle\hat{c}_1(t)\hat{c}_1^{\dagger}(t)\rangle\langle\hat{c}_2(t)\hat{c}_2^{\dagger}(t)\rangle}. \tag{6}$$

当算符选择为 $\hat{c}_{1,2}=\hat{a}=\mu_{eg}|g\rangle\langle e|$，即光子湮灭算符时，我们得到光子-光子关联函数 $g^{(2)}_{aa}$，它反映了在时间 t 发射一个光子的条件下，于时间 $t+\tau$ 发射另一个光子的联合概率。通过从光子算符 $\hat{a}$ 和声子算符 b 中适当选择 $\hat{c}_{1,2}$，我们可以相应地构造声子 - 声子关联函数 $g^{(2)}$ bb，以及值得注意的是，类似于参考文献 [24, 25, 32–34]中的做法，构造光子-声子和声子-光子交叉关联函数 $g^{(2)}$ ab 和 $g^{(2)}$ ba。

现在，我们使用关联函数（6）来探究分子系统在热环境中的量子效应 [54] 。具体而言，我们确定是否存在反聚束 [4], ，其定义为 $g^{(2)}_{c_1}{}_{c_2}(t,\tau=0)<g^{(2)}_{c_1}{}_{c_2}(t,\tau>0)$。这意味着紧接着第一次发射事件发生的第二次发射事件，其发生概率受到抑制。请注意，这一定义不仅涵盖光子-光子或声子-声子关联，也推广至包含交叉关联的情形，即两个发射事件分别由一个光子和一个声子构成。相应地，当同时发射的概率增强时，即 $g^{(2)}_{c_1}{}_{c_2}(t,\tau=0)>g^{(2)}_{c_1}{}_{c_2}(t,\tau>0)$，则称为聚束。

在下文中，我们假设所有发射的光子和声子都能被探测到，无论散射方向如何；例如，可以设想系统被一个探测器包围，并使用量子回归定理 [5, 42, 55–57]计算二阶关联函数

$$g^{(2)}_{c_1c_2}(t,\tau)=\frac{\mathrm{Tr}\left[\hat{c}_1^{\dagger}\hat{c}_1\exp(\mathcal{L}\tau)(\hat{c}_2\hat{\rho}\hat{c}_2^{\dagger})\right]}{\mathrm{Tr}(\hat{c}_1\hat{\rho}\hat{c}_1^{\dagger})\mathrm{Tr}(\hat{c}_2\hat{\rho}\hat{c}_2^{\dagger})}, \tag{7}$$

其中，$\hat{\rho}=\hat{\rho}(t)$ 是时刻 t 的密度矩阵，而 $\mathcal{L}$ 是描述系统时间演化的刘维尔算符。初始时，分子在没有驱动场的情况下与其热环境达到平衡，因此系统的密度矩阵与热浴相关联。这确保分子的振动态具有正确的玻尔兹曼分布。随后，利用过阻尼层级，在驱动场作用下演化数个光学周期的动力学，以求得 $\hat{\rho}(t)$。要计算 $g^{(2)}_{c_1}{}_{c_2}(t,\tau)$，接着将 $\hat{c}_2\hat{\rho}(t)\hat{c}_2^{\dagger}$ 作为后续演化的初态，并在 τ 中确保驱动场保持连续。

图2(a)–(c)展示了式（1）中定义的分子系统的双时光子关联函数 $g^{(2)}_{aa}(t,\tau)$ 随光子间隔时间 τ 的变化。对于本研究及后续模拟结果，除非另有说明，我们假设 $\eta=5\,\mathrm{cm}^{-1}$, $\Lambda=200\mathrm{cm}^{-1}$, $\omega_0=500\mathrm{cm}^{-1}$, $\Delta=1.2$，因此 $\lambda\approx260\mathrm{cm}^{-1}$, $\omega_{eg}=10^4\,\mathrm{cm}^{-1}$, $\mathrm{E}_0=10^7\,\mathrm{NC}^{-1}$，且 $\mathrm{T}=298\mathrm{K}$。这些参数确保热浴耦合较弱，并且系统处于马尔可夫极限。我们将振动态数截断为$N=10$，该值足够大，使结果不受截断影响。这些参数与真实分子的参数相当，其电子和振动跃迁频率分别为 $\sim10^4\ \mathrm{cm}^{-1}$和 $\sim10^2\ \mathrm{cm}^{-1}$ [58, 59]。弱耦合马尔可夫热浴的参数对于常见的非极性溶剂而言具有代表性 [40, 41]。

由于布居初始设定为玻尔兹曼分布，激发会产生一个在谐势 [60–62]中运动的波包。当系统重组能 $\lambda=0$时，单色激光场会驱动基态振电态与相应的激发态之间发生布居转移（$|g,0\rangle\rightarrow|e,0\rangle$、$|g,1\rangle\rightarrow|e,1\rangle$.....）。由此产生的拉比振荡反映在$g^{(2)}_{aa}$中，并表现为光子反聚束。然而，当 $\lambda>0$时，会发生振动弛豫（VR），激发态波包布居将不同于基态布居。这会导致$g^{(2)}_{aa}$中出现一个较小的振荡，其频率为振动模频率；这意味着，尽管声子未被直接探测，实验上可测量的二阶光子关联函数仍包含可观测的声子特征。该特征的出现源于弗兰克-康登重叠的变化（即电子激发态的束缚本征态与基态之间的重叠积分）[63]。随着 λ增加，基频跃迁的弗兰克-康登重叠减小，拉比振荡周期延长，更多布居通过振动弛豫进入振电 $|e,0\rangle$ 态。

浴重组能增大 η会阻尼拉比振荡，声子随之耗散到热浴中，最终形成稳态 [图 2(b) 和 (c)]。随后，按照通常做法，我们在达到稳态后的时间 t 处，评估 $g^{(2)}_{aa}(t,\tau)$ 随 τ的变化。当未形成稳态 [$\eta=0$, 图 2(a)], 但拉比式振荡持续不息时 [64], , t 的取值因而 $g^{(2)}_{aa}$ 关于 τ [的归一化（参见式 (6)）] 并不明确 [43, 45, 65]。我们选择 t, 使式 (6) 中的分母对应于达到稳态时的值$\eta>0$。

图2(d)–(f) 展示了相应的声子-声子关联 $g^{(2)}{}_{bb}(\tau)$。当 $\lambda=\eta=0$ 布居在基态和激发态之间共振跃迁，且没有振动弛豫时 [66], , 声子-声子关联$g^{(2)}{}_{bb}(\tau)$ 保持恒定。尽管不存在声子耗散（$\eta=0$），当 $\lambda>0$ 时，仍会出现模频率处的显著振荡，因为激发态位移导致布居分布偏离热平衡，且呈非稳态。出于同样的原因，当 $\lambda>0$ 时，$g^{(2)}{}_{bb}(\tau)$ 也会跟随拉比振荡，并出现声子聚束。此外，引入与环境浴的耦合 $\eta>0$后，我们发现$g^{(2)}{}_{bb}$ 随 τ 迅速衰减，这是由强耗散所致。

根据定义，$g^{(2)}_{aa}$和 $g^{(2)}{}_{bb}$均不依赖探测事件的先后顺序，因为 τ 将相同粒子的探测分隔开来。两种情况下，振动态特征都只有一个来源。对于 $g^{(2)}_{aa}$，这是间接体现的，源于光子对振动态布居的强烈依赖，

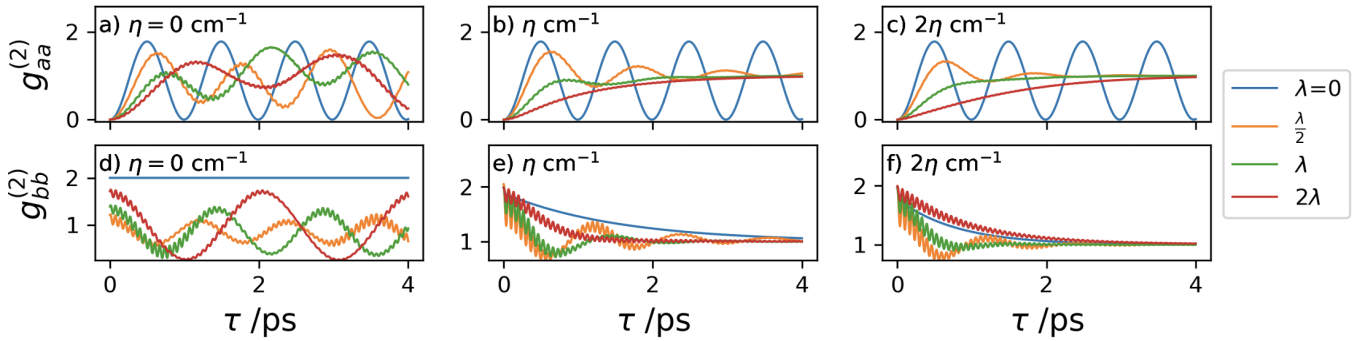

图 2。（a）–（c）：$g^{(2)}_{aa}(\tau)$ 光子-光子关联函数；（d）–（f）$g^{(2)}{}_{bb}(\tau)$ 声子-声子关联函数，扫描热浴（η）和系统（λ）的重组能。

而对于 $g^{(2)}{}_{bb}$，则是通过直接测量声子数体现的。两种情况下，振动态特征都表现为以振动模频率 ω_0 为频率的振荡。

我们可以通过交叉关联函数来理解光子关联中出现声子特征的原因$g^{(2)}{}_{ab}(\tau)$ 和 $g^{(2)}{}_{ba}(\tau)$（图 3），其中探测顺序确实很重要。具体而言，第二个探测事件决定了交叉关联函数随 τ 的变化所呈现的主导特征。在 $g^{(2)}{}_{ab}$ 中，声子探测位于第二位，因此我们观察到声子关联的主要行为 [（参见图 2 （d）–（f）]，并叠加了光子关联函数的特征。第一个探测事件可以视为对光子数的瞬时测量，不包含振动信息。第二个探测事件——声子——在 τ 之后发生，在此期间可能发生振动跃迁。然而，由于快速的声子特征相对于电子贡献而言非常小，它们对激发态绝热布居的影响极小，即不存在显著的次级振荡 [45]。因此，两个探测事件都不具有振动特征。图 3 （a）–（c）还显示了声子聚束，即一次光子探测之后很可能立即发生另一次声子探测，这反映了光子发射后的非平衡布居分布。

相比之下，声子-光子关联函数 $g^{(2)}{}_{ba}(\tau)$[图 3(d)–(f)] 对应于先探测到声子、随后探测到光子的情形。由于光子探测发生在第二次，$g^{(2)}_{aa}$ [图 2(a)–(c)] 的特征占主导地位，同时叠加了声子特征。第一次探测事件——声子——是对声子数的瞬时测量，因此在分子模频率处具有内在的振动态特征。然而，第二次探测事件——光子——也会引入额外的振动态特征，这是由于两次探测之间发生了振动跃迁。因此，$g^{(2)}{}_{ba}$中的振动态特征有两个来源：1. 来自第一次探测事件的内在特征；2. 来自导致光子发射的光学周期中的声子效应。

对于 $\lambda = 0$，$g^{(2)}{}_{ba}(\tau)$ 始终保持一个较小的非零恒定值，不受热浴耦合的影响。然而，增大系统重组能会引入强烈振荡，使关联函数可能降至 $\lambda = 0$ 值以下。这是因为很大比例的波包布居发生了振动跃迁。即使热浴耗散很强，这种效应在较小的 τ 下仍然存在，但在较大的 τ 下会受到环境影响而消失。请注意，与 $g^{(2)}_{aa}(\tau)$ 类似，$g^{(2)}{}_{ba}(\tau)$ 也呈现出类似反聚束的行为，即声子发射后紧接着发射光子的可能性较低。这是因为随着 λ 增大，由于弗兰克-康登重叠减小，在 ω_{eg} 时从较高振动态发生的光子发射受到越来越强的抑制。这意味着，当$\tau \approx 0$时，声子发射往往会抑制随后的光子发射。

近期的理论和实验研究表明，嵌入固态系统中的量子点发射体，其晶格声子的动力学影响会在光子谱中形成一种特征性标记 [67]。量子点模型中没有定义系统声子，但它们是分子不可或缺的组成部分，也是此处所预测标记的直接来源。我们的结果表明，对双光子关联的测量能够明确揭示系统声子与声子环境影响之间的差异。

总之，我们从理论上证明，在连续激光驱动和热环境下，振电分子的荧光会呈现光子反聚束现象；光子-光子关联则展现出声子与热浴相互作用的特征，这表明这些特征可通过实验直接测量。它们表现为叠加在较慢调制之上的振荡，振荡频率为系统模频率，而较慢的调制则与电子拉比振荡有关。我们还从理论上考察了声子探测和光子-声子交叉关联函数，并阐明振动贡献既可直接通过声子探测产生，也可间接通过声子发射后再进行光子探测产生。因此，粒子探测的先后顺序会显著影响关联函数的行为，原则上可借此研究声子对光子发射的影响。更直接地说，这些关联函数为利用现有量子光学技术间接研究声子动力学提供了契机，以理解其对分子系统中量子过程与经典过程的影响——

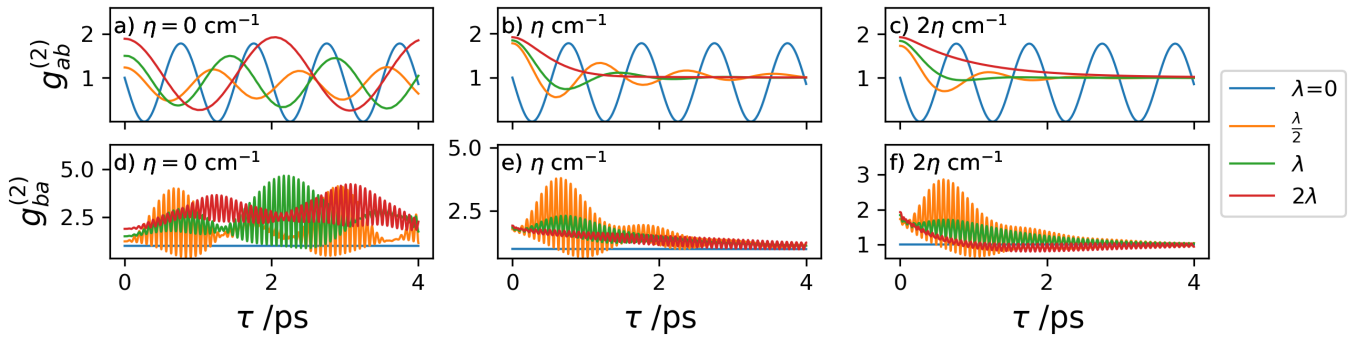

图 3. (a)–(c)：$g^{(2)}{}_{ab}(\tau)$ 交叉相关函数；(d)–(f)：$g^{(2)}{}_{ba}(\tau)$ 交叉相关函数，扫描热浴（η）和系统（λ）重组能。

从而理解其对分子系统中量子过程与经典过程的影响。

本出版物中使用的数据可在此获取 [68]。

本文所述研究使用了东英吉利大学研究与专业计算支持服务提供支持的高性能计算集群。B.S.H. 感谢东英吉利大学理学院提供的学生资助。G.A.J. 和 D.G.，以及 M.O.B. 感谢工程与物理科学研究委员会分别通过项目编号 EP/V00817X/1 和 EP/V03832X/1 提供的支持。为实现开放获取，作者已对由此产生的任何作者接受稿版本采用知识共享署名（CC BY）许可。作者感谢 Kayn Forbes 博士提供的讨论。

* M.Borgh@uea.ac.uk

† garth.jones@uea.ac.uk

[1] H. J. Kimble、M. Dagenais 和 L. Mandel，《共振荧光中的光子反聚束》，《物理评论快报》39，691（1977）。[2] H. J. Kimble、M. Dagenais 和 L. Mandel，《多原子效应与渡越时间效应对共振荧光中光子关联测量的影响》，《物理评论 A》18，201（1978）。[3] D. F. Walls，《光的量子性质的证据》，Nature 280，451（1979）。[4] H. Paul，《光子反聚束》，Rev. Mod. Phys. 54，1061（1982）。[5] H. J. Carmichael 和 D. F. Walls，《动态斯塔克效应的量子力学主方程处理》，J. Phys. B At. Mol. Phys. 9，1199（1976）。[6] Huaixiu Zheng、Daniel J. Gauthier 和 Harold U. Baranger，《通过将三能级或四能级系统耦合到波导产生强关联光子》，《物理评论 A》85，043832（2012）。[7] R. Avriller、Q. Schaeverbeke、T. Frederiksen 和 F. Pistolesi，《等离激元纳米结中由电子隧穿诱导的光子发射统计》，Phys. Rev. B 104，L241403（2021）。[8] Kunio Ishida 和 Keiichiro Nasu，《光诱导成核中瞬态 X 射线散斑的理论研究》，J. Phys. Soc. Jpn **81**,063708(2012)。

[9] A. Imamoğlu, H. Schmidt, G. Woods, 和 M. Deutsch, “非线性腔中的强相互作用光子”，《物理评论快报》79, 1467 (1997)。[10] K. M. Birnbaum, A. Boca, R. Miller, A. D. Boozer, T. E. Northup, 和 H. J. Kimble, “含有一个囚禁原子的光学腔中的光子阻塞”, Nature 436, 87 (2005)。[11] C. Lang, D. Bozyigit, C. Eichler, L. Steffen, J. M. Fink, A. A. Abdumalikov, M. Baur, S. Filipp, M. P. da Silva, A. Blais, 和 A. Wallraff, “利用关联函数测量在微波频率下观测共振光子阻塞”，《物理评论快报》106, 243601 (2011)。[12] Wen-Wu Deng, Gao-Xiang Li, 和 Hong Qin, “强耦合量子比特-腔系统中通过量子干涉实现光子阻塞”，《光学快报》25, 6767 (2017)。[13] Bing Gu 和 Shaul Mukamel, “纠缠光产生的耦合腔极化激元中的光子关联信号”，《ACS 光子学》9, 938 (2022)。[14] Ya-Ting Guo, Fen Zou, Jin-Feng Huang, 和 Jie-Qiao Liao, “色散 Jaynes-Cummings 模型中光子阻塞效应的恢复”，《物理评论 A》105, 013705 (2022)。[15] A. Ridolfo, M. Leib, S. Savasta, 和 M. J. Hartmann, “超强耦合区间中的光子阻塞”，《物理评论快报》109, 193602 (2012)。[16] A. Cidrim, T. S. do Espirito Santo, J. Schachenmayer, R. Kaiser, 和 R. Bachelard, “基态中性原子中的光子阻塞”，《物理评论快报》125, 073601 (2020)。[17] L. A. Williamson, M. O. Borgh, 和 J. Ruostekoski, “原子阵列中集体非经典光发射和偶极阻塞的超原子图像”，《物理评论快报》125, 073602 (2020)。[18] Mingyuan Chen, Jiangshan Tang, Lei Tang, Haodong Wu, 和 Keyu Xia, “多个量子发射体中的光子阻塞与单光子产生”，Phys. Rev. Res. 4, 033083 (2022)。[19] Ling-Juan Feng 和 Shang-Qing Gong, “由机械压缩产生并增强的双光子阻塞”，《物理评论 A》103, 043509 (2021)。[20] M. Hassani Nadiki 和 M. K. Tavassoly, “由两个具有腔-膜二次耦合的光机械腔及声子跃迁构成的系统中的声子阻塞”，Eur. Phys. J. D 76, 58 (2022)。[21] Zi-Yuan Li, Guang-Ri Jin, Tai-Shuang Yin, 和 Aixi Chen, “二次耦合光机械系统中的双声子阻塞”，《光子学》9, 70 (2022)。[22] Yan Wang, Jin Lei Wu, Jin Xuan Han, Yan Xia, Yong Yuan Jiang, 和 Jie Song, “弱耦合

混合系统中通过机械参量放大实现的增强声子阻塞”，Phys. Rev. Appl. 17, 024009 (2022)。[23] Tai-Shuang Yin, Guang-Ri Jin, 和 Aixi Chen, “含有两个表面声波谐振器的电路量子声动力学系统中的增强声子反聚束”，Micromachines 13, 591 (2022)。[24]Mahboobeh Moslehi, Hamid Reza Baghshahi, Moham-mad Javad Faghihi, 和 Sayyed Yahya Mirafzali, “光磁微腔诱导的光子和磁振子阻塞”，Eur. Phys. J. Plus 137, 777 (2022)。[25] Ting-ting Ma, Dmitri B. Horoshko, Chang-shui Yu, 和 Sergei Ya. Kilin, “量子比特-等离激元-声子超强耦合系统中的光子和声子统计”，《物理评论 A》105, 053718 (2022)。[26] Gregory D. Scholes, Graham R. Fleming, Lin X. Chen, Al´an Aspuru-Guzik, Andreas Buchleitner, David F. Coker, Gre-gory S. Engel, Rienk Van Grondelle, Akihito Ishizaki, David M. Jonas, Jeff S. Lundeen, James K. McCusker, Shaul Mukamel, Jennifer P. Ogilvie, Alexandra Olaya-Castro, Mark A. Ratner, Frank C. Spano, K. Birgitta Whaley, 和 Xiaoyang Zhu, “利用相干性增强化学和生物物理系统的功能”，Nature 543, 647 (2017)。[27] Garth A. Jones 和 David S. Bradshaw, “共振能量转移：从基础理论到近期应用”，Front. Phys. 7, 100 (2019)。[28] William H. Miller, “观点：量子相干还是经典相干？” J. Chem. Phys. 136, 210901 (2012)。[29] Tom´aˇs Manˇcal, “量子相干性的十年：我们的过去如何成为经典，而未来走向量子”，Chem. Phys. 532, 110663 (2020)。[30] Shaul Mukamel, 《非线性光学光谱学原理》（牛津大学出版社，纽约，1995）。[31] Arzu Kurt, “超越量子回归定理的双时关联函数：外部噪声的影响”，Quantum Inf. Process. 20, 238 (2021)。[32] Masashi Ban, “双时关联函数与开放二能级系统的量子性”，Eur. Phys. J. D 73, 12 (2019)。[33]Shilan Abo, Grzegorz Chimczak, Anna Kowalewska-Kudłaszyk, Jan Peˇrina, Ravindra Chhajlany, 和 Adam Miranowicz, “混合光子-声子阻塞”，Sci. Rep. 12, 17655 2022( )。[34] Joanna K. Kalaga, Wiesław Leo´nski, Radosław Szczę´sniak, 和 Jan Peˇrina, “一组三量子比特态中的混合度、相干性与纠缠”，Entropy 24, 324 (2022)。[35] R. Holzinger, S. A. Oh, M. Reitz, H. Ritsch, 和 C. Genes, “协同亚波长分子量子发射体阵列”，Phys. Rev. Res. 4, 033116 (2022)。[36] Jiratheep Pruchyathamkorn, William J. Kendrick, Andrew T. Frawley, Andrea Mattioni, Felipe Caycedo-Soler, Susana F. Huelga, Martin B. Plenio, 和 Harry L. Anderson, “一种由花菁染料轮烷和卟啉纳米环构成的复合物，可作为光捕获系统的模型”，Angew. Chem. Int. Ed. 59, 16455 2020( )。[37]Heinz-Peter Breuer, Elsi-Mari Laine, J yrki Piilo, 和 Bassano Vacchini, “专题综述：开放量子系统中的非马尔可夫动力学”，Rev. Mod. Phys. 88, 021002 (2016)。[38] Heinz-Peter Peter Breuer 和 Francesco Petruccione, 《开放量子系统理论》（牛津大学出版社，2002）。[39] Ulrich Weiss, 《量子耗散系统》（牛津大学出版社，1993）。[40] Dale Green, Ben S. Humphries, Arend G. Dijkstra, 和 Garth A. Jones, “量化欠阻尼与过阻尼环境中的非马尔可夫性及其对光谱线形的影响”，J. Chem. Phys. 151, 174112 (2019)。

[41] Ben S. Humphries、Dale Green 和 Garth A. Jones，“哈密顿振动与浴振动对同型二聚体二维电子光谱的影响”，J. Chem. Phys. 156 084103 (2022)，. [42] B. R. Mollow，“二能级系统散射光的功率谱”，《物理评论》188, 1969 (1969)。[43] Roy J. Glauber，“光学相干性的量子理论”，《物理评论》130, 2529 (1963)。[44] Dassia Egorova、Maxim F. Gelin 和 Wolfgang Domcke，“振动与耗散简单模型的二维电子光子回波光谱交叉峰分析”，J. Chem. Phys. 126, 074314 (2007)。[45] 关于未归一化关联函数和基底的讨论，参见补充材料，网址为 [URL 将由出版商插入]，其中包含参考文献 [46]。[46] M. R. Andrews、M.-O. Mewes、N. J. van Druten、D. S. Durfee、D. M. Kurn 和 W. Ketterle，“对玻色凝聚体的直接无损观测”，《科学》273, 84 (1996)。[47] Peter Hamm 和 Martin Zanni，《二维红外光谱学的概念与方法》（剑桥大学出版社，2011）。[48]Akihito Ishizaki 和 Yoshitaka Tanimura，“非微扰非马尔可夫量子主方程：计算非线性响应函数的有效性与局限”，Chem. Phys. 347, 185 (2008)。[49] Rafael Carballeira、David Dolgitzer、Peng Zhao、Debing Zeng 和 Yusui Chen，“推导非马尔可夫双时关联函数的随机薛定谔方程”，Sci. Rep. 11, 11828 2021( )。[50] Ali A. Alkathiri、Shami A. M. Alsallami、N. H. Abdel-Wahab、S. Abdel-Khalek 和 E. M. Khalil，“ Λ型五能级原子与单模压缩相干场之间的相互作用”，Results Phys. 39, 105739 (2022)。[51] Mingrui Yang、Matija ˇCufar、Elke Pahl 和 Joachim Brand，“一维含可移动杂质玻色气体 yrast 激发中的极化子-耗尽子转变”，Condens. Matter 7 (2022)。[52] Yoshitaka Tanimura 和 Ryogo Kubo，“量子系统与近高斯-马尔可夫噪声热浴接触时的时间演化”，J. Phys. Soc. Jpn. 58, 101 (1989)。[53] Yoshitaka Tanimura，“开放量子动力学的数值‘精确’方法：分层运动方程（HEOM）”，J Chem. Phys. 153, 020901 (2020)。[54] U. Fano，“相位无关光源混合时光干涉效应的量子理论”，《美国物理学杂志》29, 539 (1961)。[55] Melvin Lax，“驱动态量子涨落的形式理论”，《物理评论》129, 2342 (1963)。[56] Melvin Lax，“量子噪声。X. 场与布居差涨落的密度矩阵处理”，《物理评论》157, 213 1967( )。[57] Howard J. Carmichael，《量子光学中的统计方法 1》（施普林格·柏林·海德堡，1999），第 19 页。[58] F. V. Camargo、H. L. Anderson、S. R. Meech 和 I. A. Heisler，《利用二维电子光谱全面表征卟啉发色团中的振动相干》，《物理化学杂志 A》119, 95 (2015)。[59] J. Lu、Y. Lee 和 J. M. Anna，《从显著振动相干的二维电子光谱中提取频率相关的动态斯托克斯位移》，《物理化学杂志 B》124, 8857 (2020)。[60] Laurence A. Nafie，“超越玻恩-奥本海默近似的绝热分子性质：完整绝热波函数与振动诱导电子电流密度”，J. Chem. Phys. 79

, 4950（1983年）。

[61] Pavel Mal´y, Oscar J.G. Somsen、Vladimir I. Novoderezhkin、Tom´aˇs Manˇcal 和 Rienk Van Grondelle，《共振振动在电子能量转移中的作用》，ChemPhysChem **17**，1356 2016( )。[62] Sabine Kopec、Philipp Ottiger、Samuel Leutwyler 和 Horst K¨oppel，《H 型氢键分子二聚体中激子分裂的振动猝灭：绝热描述与有效模近似》，J. Chem. Phys.**137**，184312（2012年）。[63] Edward Condon，《带状系统中强度分布理论》，《物理评论》**28**，1182（1926年）。[64] I. I. Rabi，《旋转磁场中的空间量子化》，《物理评论》**51**，652（1937年）。[65] Leonard Mandel 和 Emil Wolf，光学相干性与量子量子光学（剑桥大学出版社，1995）。[66] Marlan O. Scully 和 M. Suhail Zubairy，《量子光学》（剑桥大学出版社，1997）。[67] Alistair J. Brash、Jake Iles-Smith、Catherine L. Phillips、Dara P.S. McCutcheon、John O'Hara、Ed mund Clarke、Ben- jamin Royall、Luke R. Wilson、Jesper Mørk、Maurice S. Skol- nick、A. Mark Fox 和 Ahsan Nazir，《固态量子发射体的光散射：超越原子图像》，物理评论快报 **123**，167403（2019）。[68] Ben S. Humphries、Dale Green、Magnus O. Borgh 和 Garth A. Jones，《光子关联中的声子特征》数据集（2023），10.5281/zenodo.8325538。

arXiv:2302.01105v2 [quant-ph] 6 Oct 2023

《光子关联中的声子特征》的补充材料。

Ben S. Humphries, [1] Dale Green, [1] Magnus O. Borgh, [2,*] 以及 Garth A. Jones[1,†]化学学院，东英吉利大学，诺里奇研究园，诺里奇，*NR4 7TJ*，英国[2]物理学，理学院，东英吉利大学，诺里奇 *NR4 7TJ*，英国

SI. 透热基底与绝热基底

我们从振动哈密顿量开始，

$$\hat{H}_{\rm S} = |g\rangle\hat{h}_g\langle g| + |e\rangle\hat{h}_e\langle e|. \tag{S1}$$

$$\hat{h}_g = \frac{\hat{p}^2}{2m} + \frac{m\omega^2\hat{q}^2}{2}, \tag{S2}$$

$$\hat{h}_e = \hbar\omega_{eg} + \frac{\hat{p}^2}{2m} + \frac{m\omega^2}{2}(\hat{q}-d)^2, \tag{S3}$$

其中m、$\hat{}p$和$\hat{}q$ 分别是频率为 ω的振动模式的质量、动量和坐标，而d是激发态势能的位移。以振子长度为单位测量长度，我们得到无量纲的动量和坐标

$$\hat{P} = \frac{\hat{p}}{\sqrt{\hbar m\omega}}, \qquad \hat{Q} = \sqrt{\frac{m\omega}{\hbar}}\hat{q}, \tag{S4}$$

并相应地定义

$$\Delta = \sqrt{\frac{m\omega}{\hbar}}d, \qquad \hat{b} = \frac{[\hat{Q}+i\hat{P}]}{\sqrt{2}}, \tag{S5}$$

由此，基态和激发态的核哈密顿量可写为

$$\hat{h}_g = \hbar\omega_0\left(\hat{b}^\dagger\hat{b} + \tfrac{1}{2}\right), \tag{S6}$$

$$\hat{h}_e = \hbar(\omega_{eg}+\lambda) + \hbar\omega_0\left[\hat{b}^\dagger\hat{b} - \frac{\Delta}{\sqrt{2}}(\hat{b}+\hat{b}^\dagger) + \tfrac{1}{2}\right]. \tag{S7}$$

基态核哈密顿量（S6）就是一个简谐振子，其本征态 $|n\rangle$ $(n = 0,1,\ldots)$ 构成振动态的正交归一基。实际计算中，希尔伯特空间会被截断为 $n = 0,1,\ldots,N$，其中 N 的选取应确保结果不受截断影响。根据定义，基态在此基底下是对角的，而激发态则会产生与（$\hat{}b + \hat{}b^\dagger$）成正比的非对角耦合项。结合电子自由度，可得到透热基中的完整基态集合：

$$|\psi^{\rm D}\rangle = |\alpha\rangle\otimes|n\rangle = |\alpha,n\rangle, \tag{S8}$$

其中 $\alpha = g,e$。因此，总波函数是以下线性组合

$$|\Psi\rangle = \sum_k c_k\,|\psi_k^{\rm D}\rangle, \tag{S9}$$

复数系数 c_k。请注意，在透热基中，电子与振动运动之间唯一的耦合来自方程（S7）中的非对角项。

透热基提供了直观的物理图像。然而，实验相关的可观测量对应于绝热（分子）基：对于任意激发态位移 $\Delta > 0$，哈密顿量可通过幺正变换对角化

$$\hat{U}^{\rm AD} = \sum_k |\psi_k^{\rm A}\rangle\langle\psi_k^{\rm D}|, \tag{S10}$$

使得

$$\hat{H}^{\rm D}_{\rm tot} = \sum_k \epsilon_k\,|\psi_k^{\rm A}\rangle\langle\psi_k^{\rm A}|, \tag{S11}$$

其中，本征态 $|\psi_k^{\rm A}\rangle$ 的本征值为 ϵ_k，它们构成绝热基态。随后，绝热哈密顿量构造如下

$$\hat{H}^{\rm A}_{\rm tot} = (\hat{U}^{\rm AD})^\dagger\hat{H}^{\rm D}_{\rm tot}\hat{U}^{\rm AD} = \sum_k \epsilon_k\,|\psi_k^{\rm D}\rangle\langle\psi_k^{\rm D}|. \tag{S12}$$

在矩阵形式中，透热哈密顿量

$$\hat{H}^{\rm D}_{\rm tot} = \begin{pmatrix}\hat{h}_g & \hat{0}\\ \hat{0} & \hat{h}_e\end{pmatrix}, \tag{S13}$$

因此被绝热

$$\hat{H}^{\rm A}_{\rm tot} = \begin{pmatrix}\hat{h}_g & \hat{0}\\ \hat{0} & \hat{B}\end{pmatrix}, \tag{S14}$$

其中

$$\hat{B} = \hbar(\omega_{eg}+\lambda) + \hbar\omega_0\left(\hat{b}^\dagger\hat{b} + \tfrac{1}{2}\right). \tag{S15}$$

请注意，绝热基态的能量与透热基态的能量相同，并且$\hat{}B$实际上就是去掉非对角元素后的 $\hat{}h_e$ 。

SII. 初始化为玻尔兹曼分布

在进行计算之前，我们将系统在电子基态下振动模式上的布居初始化为热平衡分布。随后，单体的初始密度矩阵为

$$\hat{\rho}^{\rm A} = \sum_k P_k\,|\psi_k^{\rm D}\rangle\langle\psi_k^{\rm D}|, \tag{S16}$$

* M.Borgh@uea.ac.uk
† garth.jones@uea.ac.uk

其中权重

$$P_k = \frac{\exp(-\frac{\epsilon_k}{k_B T})}{Z} \tag{S17}$$

由玻尔兹曼分布和配分函数给出

$$Z = \sum_k \exp\left(-\frac{\epsilon_k}{k_B T}\right) = \mathrm{Tr}\left[\exp\left(-\frac{\hat{H}^{\mathrm{A}}_{\mathrm{tot}}}{k_B T}\right)\right]. \tag{S18}$$

此处 ϵ_k 为电子k振动态在基态中的能量。随后通过旋转方程 S16计算透热密度矩阵

$$\hat{\rho}^{\mathrm{D}} = \hat{U}^{\mathrm{AD}} \hat{\rho}^{\mathrm{A}} (\hat{U}^{\mathrm{AD}})^{\dagger}. \tag{S19}$$

随后在透热基中进行计算，希尔伯特空间截断为$N = 10$。

SIII. 同时的时间关联函数及其未归一化等价形式

为计算关联函数，我们假设入射场不作为散射场的一部分被探测到。实验上可以通过例如添加一根细金属丝来实现，正如文献（S1）中的暗场成像技术所示。

光子的探测概率为：

$$g_a^{(1)}(t,\tau) = \frac{\mathrm{Tr}\left[\hat{a}\exp(\mathcal{L}\tau)(\hat{\rho})\hat{a}^{\dagger}\right]}{\mathrm{Tr}(\hat{a}\hat{\rho}\hat{a}^{\dagger})}, \tag{S20}$$

其中，$\hat{\rho} = \hat{\rho}(t)$、$\hat{a}^{\dagger}$ 是相应的产生算符，而$\tau = 0$对应于同时刻。将产生/湮灭算符替换为相应的声子算符后，可得到相应的声子探测概率。

在图 S1(a) $g_a^{(1)}$跟踪了四种不同系统重组能下的单体激发态。对于所有情况，拉比振荡贯穿整个模拟过程，且振荡周期取决于位移、 Δ以及随后弗兰克-康登重叠的减小，从而阻碍向 $|e\rangle$态的跃迁， $|0\rangle$ 状态。图 S1 (b) 和 (c) 展示了通过热浴重组能引入热浴的情况， η。声子耗散的加入使所有情况下都形成稳态，唯独激发态位移为零时除外。当 $\lambda = 0$ 基态玻尔兹曼分布能够完美地移动到激发态中等价的玻尔兹曼分布，从而产生拉比振荡。当 $\lambda > 0$ 且热浴重组能为 η 时，稳态会在约 5 ps 内形成；而对于 2η，则需要约 2。5 ps。

图S1 (d)、(e) 和 (f) 是声子的等效同时探测概率。显然，单体系统中的声子转移存在一个明确的最小值，该值出现在 $\lambda = 0$ 时。 λ 的任何增加（迫使系统偏离平衡）都会导致振动弛豫增加，并使$g^{(1)}{}_b$ 线性增加。除 $\lambda = 0$情况外，系统重组能的所有其他取值也都呈现出电子拉比振荡的拍频图样，反映了系统偏离平衡的状态。与图 S1 (b) 和 (c) 一样，(e) 和 (f) 的结果显示，引入热浴后，稳态形成时间显著缩短。

未归一化的二阶关联函数

$$G^{(2)}_{ab}(t,\tau) = \mathrm{Tr}\left[\hat{a}^{\dagger}\hat{a}\exp(\mathcal{L}\tau)(\hat{b}\hat{\rho}\hat{b}^{\dagger})\right], \tag{S21}$$

其中 $\hat{\rho} = \hat{\rho}(t)$ 表示先探测到光子、随后探测到声子的关联。交换这些算符后得到声子-光子关联 $G^{(2)}{}_{ba}$；而仅包含 $\hat{a}^{(\dagger)}$ 和 $\hat{b}^{(\dagger)}$ 算符的形式，则分别得到光子-光子和声子-声子关联 $G^{(2)}_{aa}$ 和 $G^{(2)}{}_{bb}$。

图 S2 （a）–（c）展示了所选模型的基本物理学。基于所选的单体系统，在同时刻（t， $\tau = 0$）不可能出现双激发，因为不存在电子双激发态。因此，探测到两个光子的概率必定恒为零。相比之下，该系统存在许多可及的振动态，因此可以同时探测到两个声子 [图 S2 （d）–（f）]。

同样，图 S3 (a)–(e) 展示了二阶交叉相关函数的性质。在时间同时发生时，操作顺序无关紧要。因此，在同时的时间， $\tau = 0$， 交叉关联等价于光子探测拉比振荡在声子探测概率变化行为上的叠加。

SIII.A. 归一化

图 S4-S7展示了在两个不同的 值下未经归一化的二阶关联函数。t。0.5 ps 的增量对应于非位移（$\lambda = 0$）拉比振荡周期的一半：从 3.5 ps 变到 4.0 ps 时，光子探测概率会从谷值升至峰值。这对于依赖 τ 的结果至关重要，因为演化的起点决定了后续所有关联的初始振幅，而这些振幅可能会使某些模态更受偏好或较不受偏好。

在所有结果中，都存在两种基本振荡模态：主要的电子拉比振荡，以及次要的振动系统模频率。电子拉比振荡源于光子从基态或激发态发射的概率，并因激光场的连续驱动而呈周期性。振动振荡则源于激发态波包布居相对于基态玻尔兹曼分布的变化，对应于声子跃迁。

根据图S1(a) 中激发态布居曲线，在特定时刻，每个系统在其电子拉比振荡中所处的位置各不相同，这决定了后续演化的相对强度。在图S4和S6中， = 3。5ps 和 $\frac{\lambda}{2}$ 以及 λ 最接近其最大值，而 2λ和 $\lambda = 0$ 最接近其最小值。这最大限度地降低了电子拉比振荡的影响

后者中的分辨率因此得到提高，从而能更清晰地分辨微弱得多的振动贡献。在$G^{(2)}{}_{ab}$中，对于 $\eta = 0$ 且系统重组能为 2λ 的情况，这一点在S6 (a) 的图中尤为明显：出现了系统模频率处的微弱振荡。相反的情况则成立（即图中振动贡献）S5和S7，其中$t = 4$。0ps。这促使我们选择在稳态值处（对于 $\eta > 0$）归一化，或在振幅达到二分之一（相当于稳态平均值）时进行归一化（对于 $\eta = 0$），从而为每个系统重组能确定一个唯一的时间值。

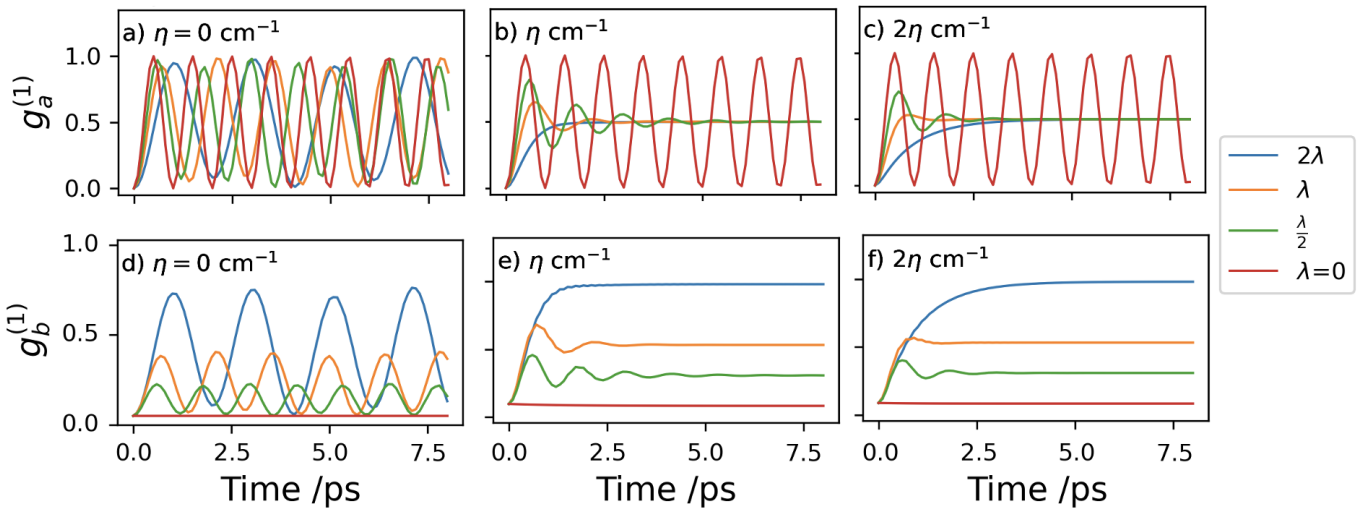

图 S1. (a)、(b)、(c)：与光子探测概率对应的$g_a^{(1)}(t, \tau = 0)$关联函数。(d)、(e)、(f)：与声子探测概率对应的$g^{(1)}{}_b(t, \tau = 0)$关联函数。两者均包含对热浴和系统重组能 η和 λ的扫描。

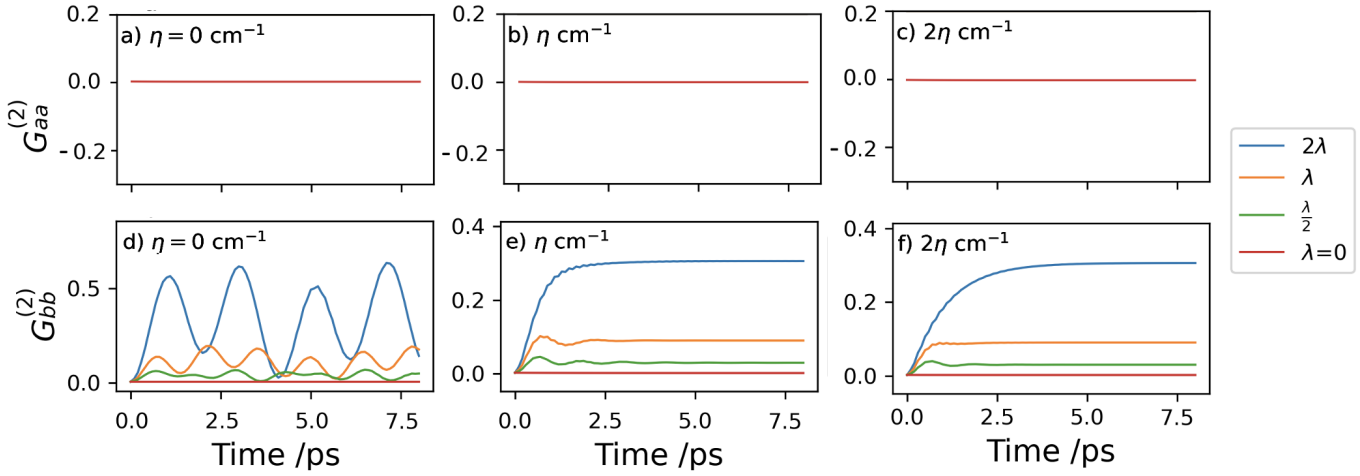

图 S2. (a)、(b)、(c)：$G_{aa}^{(2)}(t, \tau = 0)$二阶未归一化关联函数。(d)、(e)、(f)：$G^{(2)}{}_{bb}(t, \tau = 0)$二阶未归一化关联函数。两者均包含对热浴和系统重组能 η和 λ的扫描。

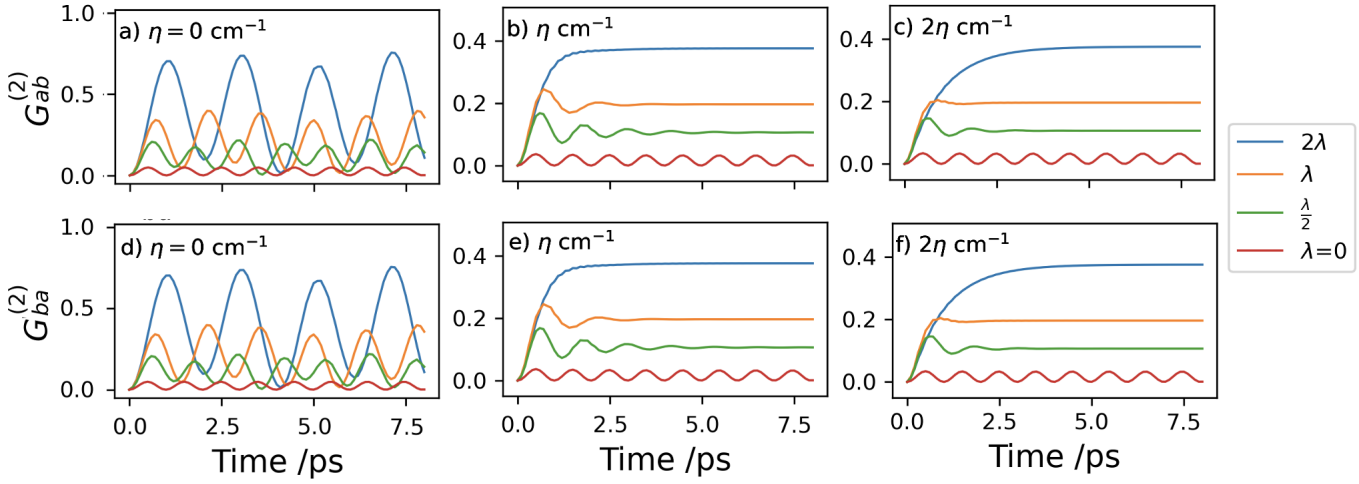

图 S3。（a）、（b）、（c）：同时刻的$G^{(2)}{}_{ab}(t,\ \tau = 0)$ 未归一化互相关函数。（d）、（e）、（f）：同时刻的$G^{(2)}{}_{ba}(t,\ \tau = 0)$ 未归一化互相关函数。两者均扫描热浴和系统重组能 η 和 λ。

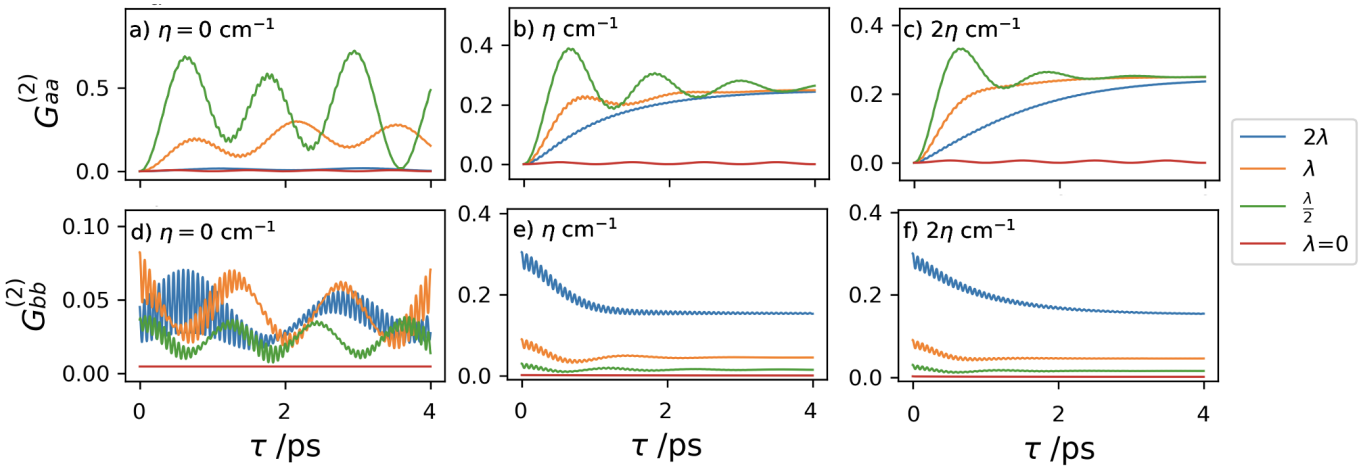

图 S4。（a）、（b）、（c）：$G^{(2)}_{aa}(t\ =\ 3.5, \tau)$ 未归一化二阶关联函数。（d）、（e）、（f）：$G^{(2)}{}_{bb}(t\ =\ 3.5, \tau)$ 未归一化二阶关联函数。两者均扫描热浴和系统重组能 η 和 λ，且均从$t\ =\ 3.5$ps开始进行 τ 演化。

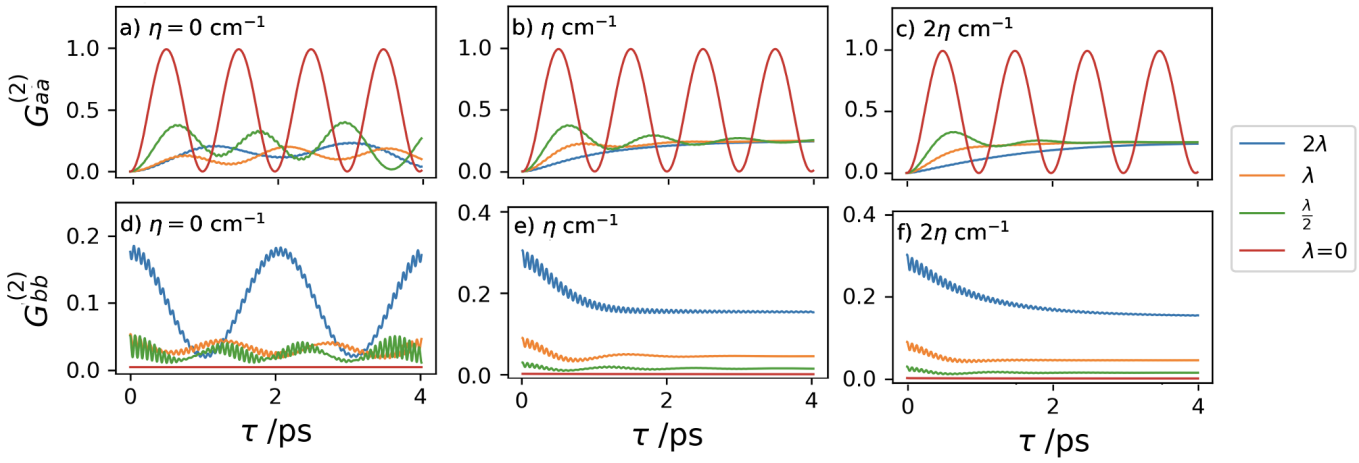

图 S5。（a）、（b）、（c）：$G^{(2)}{}_{ab}(t\ =\ 4.0, \tau)$ 未归一化二阶关联函数。（d）、（e）、（f）：$G^{(2)}{}_{ba}(t\ =\ 4.0, \tau)$ 未归一化二阶关联函数。两者均扫描热浴和系统重组能 η 和 λ，且均从$t\ =\ 4.0$ps开始进行 τ 演化。

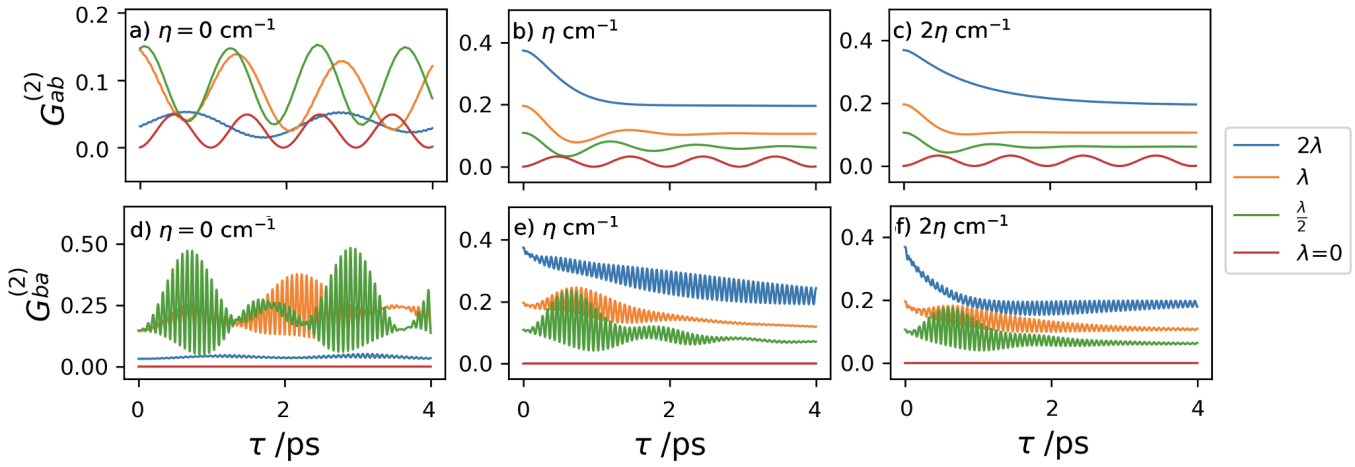

图 S6。(a)、(b)、(c)：$G^{(2)}{}_{ab}(t = 3.5, \tau)$ 未归一化互相关函数。(d)、(e)、(f)：$G^{(2)}{}_{ba}(t = 3.5, \tau)$ 未归一化互相关函数。两者均扫描热浴和系统重组能 η 和 λ，且均从$t = 3.5$ps 开始 τ 演化。

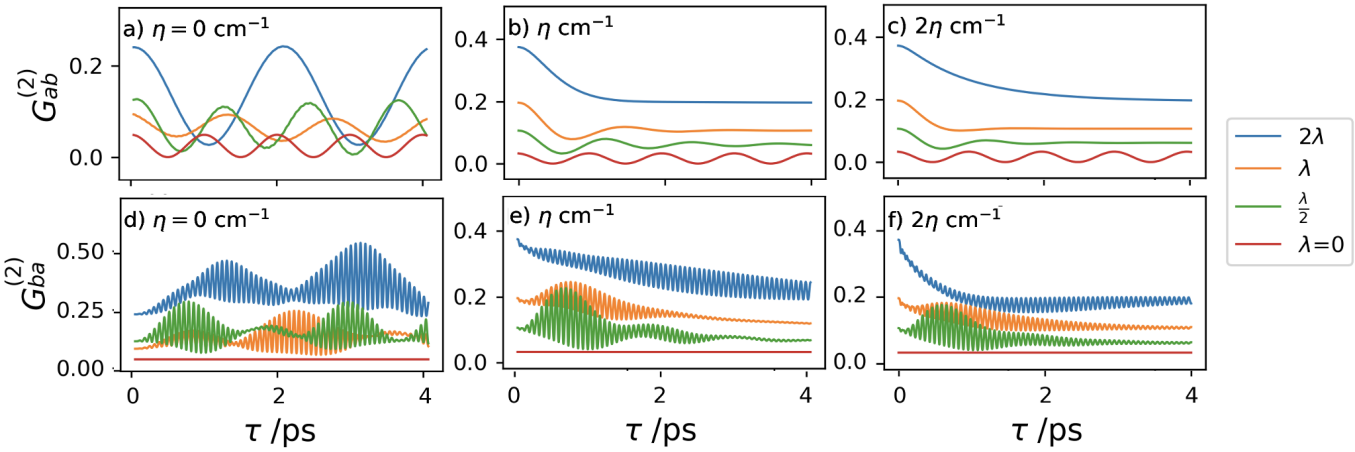

图 S7。(a)、(b)、(c)：$G^{(2)}_{ab}(t = 4.0, \tau)$ 未归一化互相关函数。(d)、(e)、(f)：$G^{(2)}{}_{ba}(t = 4.0, \tau)$ 未归一化互相关函数。两者均扫描热浴和系统重组能 η 和 λ，且均从$t = 4.0$ps 开始 τ 演化。

SIV. 参考文献

[S1] M. R. Andrews、M.-O. Mewes、N. J. van Druten、D. S. Durfee、D. M. Kurn 和 W. Ketterle，《对玻色凝聚态的直接无损观测》，《科学》**273**，84（1996）。