超强耦合区间下量子比特-腔系统中的发射谱非马尔可夫性

张晨逸，[1] 余明宏，[1] 闫依莹，[1]，* 陈利鹏，[2] 吕治国，[3] 和赵阳[4]，†[1]浙江科技大学理学院物理系，杭州 *310023*，中国[2]马克斯·普朗克复杂系统物理研究所，*NöthnitzerStr. 38*，*01187* 德累斯顿，德国[3]人工结构与量子调控重点实验室（教育部），上海交通大学物理与天文学院，上海 *200240*，中国[4]南洋理工大学材料科学部，新加坡 *639798*，新加坡（日期：2023年4月7日）

arXiv:2304.02675v1 [quant-ph] 5 Apr 2023

我们研究了非马尔可夫和超强耦合区间内耗散型拉比模型与Jaynes-Cummings 模型的发射谱。我们推导出了极化子变换的Nakajima-Zwanzig主方程（PTNZE）以计算发射谱，该方程消除了众所周知的马尔可夫近似和标准二阶微扰法的局限性。以含时变分方法作为基准，我们发现，在某些超强耦合区间内，PTNZE 能够给出准确的发射谱，而标准二阶 Nakajima-Zwanzig 主方程则会失效。研究表明，在各种初始条件下，耗散型拉比模型和 Jaynes-Cummings模型的发射谱通常是不对称的。对两个模型的谱进行直接比较，揭示了量子比特-腔反旋转项的关键作用，以及在不同量子比特-腔耦合强度和系统初始条件下的谱特征。

一、引言

超强光-物质耦合已在人工原子相关系统中实现，例如超导量子比特、半导体量子阱和混合量子系统 [1–3]。人工原子与谐振器中电磁场的离散模式之间 [4–6] ，以及人工原子与波导中的电磁连续体之间 [7]，均可达到超强耦合区间。在前一种情况下，光-物质相互作用强度与系统的裸频率相当；而在后一种情况下，人工原子的发射率与原子裸跃迁频率处于同一数量级。超强光-物质耦合会形成高度杂化的光-物质态，例如极化激元。这些态在新兴化学和量子技术中日益重要，例如量子信息处理 [8], 、光化学 [9–11], 、化学反应速率调控 [12–16], 以及极化激元介导的电子转移 [18]。

人工原子与电磁连续体之间的超强耦合会带来若干后果。首先，兰姆移位，即人工原子裸跃迁频率的重整化，可能相当显著 [7]。其次，反旋转项不可忽略，这会导致旋转波近似（RWA）失效、耦合系统形成由虚光子修饰的纠缠基态，以及整个系统的激发数不守恒 [19, 20]。第三，原子的时间演化通常不再具有马尔可夫性。这导致广泛使用的马尔可夫主方程以及马尔可夫量子回归理论失效。此外，主方程中采用的标准二阶微扰在超强耦合区间内也变得值得质疑。因此，由于广泛使用的近似在超强耦合区间内不再适用，计算人工原子的发射谱颇具挑战性。

能够描述量子比特超强耦合至单个腔模和辐射储库的耗散量子拉比模型，这一情景在超导电路中易于实现，为测试与超强耦合相关的各种现象提供了独特平台。该模型已在超强耦合区间通过多种方法处理，例如路径积分方法 [21], 动力学极化子拟设方法和矩阵乘积态 [22], 以及采用多重Davydov拟设的含时变分方法 [23]。特别是，该模型的非马尔可夫动力学和自发发射谱已在超强耦合区间得到仔细研究。然而，大多数作者关注单激发情况，即真空拉比分裂问题。很少有人致力于多激发情况。例如，在存在腔内光子时，量子比特-腔系统的发射谱尚未在超强耦合区间进行研究。此外，反旋转量子比特-腔耦合如何在强耗散存在下改变发射谱，这一问题仍未得到解答。

在本研究中，我们将利用基于极化子变换 Nakajima-Zwanzig 主方程的非马尔可夫量子回归理论，考察耗散浴中以及超强耦合区间内量子拉比模型和 Jaynes–Cummings（JC）模型的发射光谱。

* yiyingyan@zust.edu.cn
† YZhao@ntu.edu.sg

(PTNZE)和采用多重Davydov拟设 [23–26]的变分方法。通过将其预测结果与变分方法和标准二阶Nakajima-Zwanzig主方程（SNZE）的预测结果进行比较，分析PTNZE的优势和有效性。研究发现，在SNZE失效的某些超强耦合区域，PTNZE能够提供令人满意的准确描述。研究还发现，无论量子比特与腔体之间是否存在反旋转相互作用，发射谱都具有不对称性。有趣的是，对于某些初始态，耗散浴中两个模型得到的发射谱差异很小。

本文其余部分的组织如下。在第二节中，我们介绍本工作所采用的理论框架，包括系统哈密顿量和所使用的方法。第三节详细给出结果及相应的讨论。最后，我们在第四节作出总结。

II. 模型与方法方论

我们考虑耗散 Rabi 模型，其中量子比特耦合到一个高 Q 腔模和一个辐射储库，该模型由 ($\hbar = 1$) 描述，

$$H = H_{\mathrm{Rabi}} + H_{\mathrm{R}} + H_{\mathrm{I}}, \tag{1}$$

$$H_{\mathrm{Rabi}} = \frac{1}{2}\omega_0\sigma_z + \omega_c\hat{b}_c^\dagger\hat{b}_c + \frac{\lambda_c}{2}(\hat{b}_c^\dagger + \hat{b}_c)\sigma_x, \tag{2}$$

$$H_{\mathrm{R}} = \sum_k \omega_k\hat{b}_k^\dagger\hat{b}_k, \tag{3}$$

$$H_{\mathrm{I}} = \sum_k \frac{\lambda_k}{2}(\hat{b}_k^\dagger + \hat{b}_k)\sigma_x. \tag{4}$$

如 H_{Rabi}所述，跃迁频率为ω_0 的量子比特与频率为 ω_c的单个腔模相互作用，其中 $\sigma_i\,(i = x, y, z)$为泡利矩阵， λ_c 为量子比特与腔模的耦合强度，$\hat{}b_c^\dagger$ 和$\hat{}$ b_c 分别为腔的产生算符和湮灭算符。 H_{R}为辐射储库的自由哈密顿量，其中ω_k 为频率，$\hat{}b_k^\dagger$ 和$\hat{}$ b_k 分别为产生算符和湮灭算符。 H_{I} 为量子比特与储库之间的相互作用。 λ_k 为第 k个模式与量子比特之间的耦合常数。假设耗散浴为欧姆型，即浴的谱密度为

$$J(\omega) = \sum_k \lambda_k^2\delta(\omega_k - \omega) = 2\alpha\omega\exp(-\omega/\omega_{\mathrm{cut}}), \tag{5}$$

其中 α 是无量纲耦合强度， ω_{cut} 是截止频率。在我们的模型中，假设腔的耗散可以忽略不计。

为考察反旋耦合对发射谱的作用，我们还考虑了耗散 JC 模型，它可通过将式（1）中的拉比哈密顿量替换为 Jaynes–Cummings 哈密顿量得到，

$$H_{\mathrm{JC}} = \frac{1}{2}\omega_0\sigma_z + \omega_c\hat{b}_c^\dagger\hat{b}_c + \frac{\lambda_c}{2}(\hat{b}_c\sigma_+ + \hat{b}_c^\dagger\sigma_-), \tag{6}$$

其中 $\sigma_\pm = (\sigma_x \pm i\sigma_y)/2$。

我们关注初始处于真空态、温度为零的辐射浴中产生的自发发射光谱。其定义为时刻 t 发射的光子数随光子频率变化的函数，即

$$\begin{aligned} N(\omega_k, t) &= \mathrm{Tr}[\hat{b}_k^\dagger(t)\hat{b}_k(t)\rho(0)] \\ &= \frac{\lambda_k^2}{4}\int_0^t\int_0^t \langle\sigma_x(t_1)\sigma_x(t_2)\rangle e^{-i\omega_k(t_1-t_2)}dt_1dt_2. \end{aligned} \tag{7}$$

这里的平均是对初始密度矩阵 $\rho(0) \equiv \rho_S(0) \otimes |\{0_k\}\rangle\langle\{0_k\}|$ 求得的，其中 $\rho_S(0)$ 是量子比特-腔系统的状态， $|\{0_k\}\rangle$ 是储库的真空态。方程（7）的第二行是利用由哈密顿量（1）支配的 $b_k(t)$ 的海森堡表象推导得到的。虽然定义的光谱随时间变化，但由于整个系统与时间无关，它在长时间极限下会趋于稳定；也就是说，稳态光谱可表示为

$$N(\omega_k) = \lim_{t\to\infty} N(\omega_k, t). \tag{8}$$

方程（7）指出了计算光谱的两种方法。一种是直接计算辐射模的光子数（对应方程（7）的第一行）；另一种是对双时关联函数进行傅里叶变换（对应方程（7）的第二行）。我们首先介绍如何使用非马尔可夫主方程方法计算双时关联函数。

积分中的双时关联函数可表示为

$$\begin{aligned} \langle\sigma_x(t)\sigma_x(t')\rangle &= \mathrm{Tr_S}\{\sigma_x\mathrm{Tr_R}[U(t,t')\sigma_x\rho(t')U^\dagger(t',t)]\} \\ &\equiv \mathrm{Tr_S}[\sigma_x\Lambda_{\mathrm{S}}(t,t')], \end{aligned} \tag{9}$$

其中， $U(t,t') = \exp[-iH(t-t')]$, $\rho(t') = U(t')\rho(0)U^\dagger(t')$ 是总密度矩阵，而 $\Lambda_{\mathrm{S}}(t,t') = \mathrm{Tr_R}[U(t,t')\sigma_x\rho(t')U^\dagger(t,t')]$ 是约化算符。接下来，我们的目标是得到一个关于约化算符的时间非局域主方程。

A. 极化子变换后的 Nakajima-Zwanzig 主方程

为了超越标准的二阶微扰，可以基于酉变换 $H' = e^S H e^{-S}$ 推导出有效哈密顿量，其中 [27]

$$S = \sum_k \frac{\lambda_k}{2\omega_k}\xi_k(\hat{b}_k^\dagger - \hat{b}_k)\sigma_x, \tag{10}$$

其中 ξ_k 是待定参数。当 $\xi_k = 1$时，该酉变换就成为标准的极化子变换 [28]。在变换后的哈密顿量中省略 λ_k 中的二阶及更高阶项，并通过要求相互作用哈密顿量具有类似 RWA 的形式来确定 ξ_k，即可得到以下有效哈密顿量，

$$H' \approx H'_{\rm Rabi} + \sum_k \omega_k \hat{b}_k^\dagger \hat{b}_k + \sum_k \tilde{\lambda}_k (\hat{b}_k^\dagger \sigma_- + \hat{b}_k \sigma_+), \quad (11)$$

其中

$$H'_{\rm Rabi} = \frac{1}{2}\eta\omega_0\sigma_z + \omega_c \hat{b}_c^\dagger \hat{b}_c + \frac{\lambda_c}{2}(\hat{b}_c^\dagger + \hat{b}_c)\sigma_x, \quad (12)$$

$$\eta = \exp\left[-\sum_k \frac{1}{2}\left(\frac{\lambda_k}{\omega_k}\xi_k\right)^2\right]. \quad (13)$$

$$\xi_k = \frac{\omega_k}{\eta\omega_0 + \omega_k}, \quad (14)$$

$$\tilde{\lambda}_k = \frac{\eta\omega_0\lambda_k}{\eta\omega_0 + \omega_k}. \quad (15)$$

对耦合常数的修改使得能够对中等强度的系统-储库耦合进行微扰处理。基于公式 (11)并采用标准步骤 [29], 我们可以得到约化算符的PTNZEs $\Lambda'_{\rm S}(t,t') = {\rm Tr}_{\rm R}[e^S \Lambda(t,t') e^{-S}]$ 和 $\rho'_{\rm S}(t) = {\rm Tr}_{\rm R}[e^S \rho(t) e^{-S}]$，其形式为

$$\begin{aligned}\frac{d}{dt}\Lambda'_{\rm S}(t,t') = &-i[H'_{\rm Rabi}, \Lambda'_S(t,t')] - \int_{t'}^{t} d\tau \Big\{\tilde{C}(t-\tau)[\sigma_+, e^{-iH'_{\rm Rabi}(t-\tau)}\sigma_- \Lambda'_{\rm S}(\tau,t') e^{iH'_{\rm Rabi}(t-\tau)}] \\ &-\tilde{C}^*(t-\tau)[\sigma_-, e^{-iH'_{\rm Rabi}(t-\tau)}\Lambda'_{\rm S}(\tau,t')\sigma_+ e^{iH'_{\rm Rabi}(t-\tau)}]\Big\} \\ &-\int_0^{t'} d\tau \Big\{\tilde{C}(t-\tau)[\sigma_+, \sigma_x(t,t') e^{-iH'_{\rm Rabi}(t-\tau)}\sigma_- \rho'_{\rm S}(\tau) e^{iH'_{\rm Rabi}(t-\tau)}] \\ &-\tilde{C}^*(t-\tau)[\sigma_-, \sigma_x(t,t') e^{-iH'_{\rm Rabi}(t-\tau)}\rho'_{\rm S}(\tau)\sigma_+ e^{iH'_{\rm Rabi}(t-\tau)}]\Big\}, \end{aligned} \quad (16)$$

$$\frac{d}{dt}\rho'_{\rm S}(t) = -i[H'_{\rm Rabi}, \rho'_S(t)] - \int_0^t d\tau \Big\{\tilde{C}(t-\tau)[\sigma_+, e^{-iH'_{\rm Rabi}(t-\tau)}\sigma_- \rho'_{\rm S}(\tau) e^{iH'_{\rm Rabi}(t-\tau)}] + {\rm h.c.}\Big\}, \quad (17)$$

其中

$$\sigma_x(t,t') = e^{-iH'_{\rm Rabi}(t-t')}\sigma_x e^{iH'_{\rm Rabi}(t-t')}, \quad (18)$$

$$\tilde{C}(t) = \int_0^\infty \left(\frac{\eta\omega_0}{\eta\omega_0 + \omega}\right)^2 J(\omega) e^{-i\omega t} d\omega. \quad (19)$$

PTNZE 的详细推导可见附录 A。

PTNZE 是微分积分方程，可通过引入一组辅助密度矩阵 [30]来求解。为此，我们首先将浴相关函数拟合为指数之和 [31]。然后将微分积分方程转化为一组耦合微分方程，这些方程可轻松用龙格-库塔算法进行积分。PTNZE 的详细数值处理见附录 A。最后，发射谱可通过式 (7) 第二行的积分获得。本处理方法称为基于 PTNZE 的非马尔可夫量子回归理论。遵循参考文献 [32, 33]，中的标准程序，我们还可以建立基于极化子变换布洛赫-雷德菲尔德主方程（PTBRE）的非马尔可夫量子回归理论。PTBRE 是具有时变系数的微分方程，可直接用龙格-库塔方法进行积分。我们将讨论 PTNZE 和 PTBRE 的性能。

本文提出的极化子变换主方程可应用于耗散 JC模型。首先通过酉变换为耗散JC模型生成有效哈密顿量。随后推导该有效哈密顿量对应的PTNZE。事实上，只需进行简单替换，即可从耗散Rabi模型的PTNZE 得到 JC 模型的 PTNZE，推导细节见附录 B。

为展示 PTNZE 的优势，我们还考虑了 SNZE，它基于原始哈密顿量推导而来。在标准处理中， [31], $H_{\rm Rabi} + H_{\rm R}$ 和 $H_{\rm I}$ 分别被用作自由哈密顿量和微扰哈密顿量，并针对约化算符 $\Lambda_{\rm S}(t,t')$ 和 $\rho_{\rm S}(t) = {\rm Tr}_{\rm R}[\rho(t)]$, 推导 SNZE，其表达式为

$$\frac{d}{dt}\Lambda_{\rm S}(t,t') = -i[H_{\rm Rabi},\Lambda_S(t,t')] - \int_{t'}^{t} d\tau \Big\{C(t-\tau)[\sigma_x, e^{-iH_{\rm Rabi}(t-\tau)}\sigma_x\Lambda_{\rm S}(\tau,t')e^{iH_{\rm Rabi}(t-\tau)}]$$
$$-C^*(t-\tau)[\sigma_x, e^{-iH_{\rm Rabi}(t-\tau)}\Lambda_{\rm S}(\tau,t')\sigma_x e^{iH_{\rm Rabi}(t-\tau)}]\Big\}$$
$$-\int_0^{t'} d\tau \Big\{C(t-\tau)[\sigma_x, \sigma_x(t,t')e^{-iH_{\rm Rabi}(t-\tau)}\sigma_x\rho_{\rm S}(\tau)e^{iH_{\rm Rabi}(t-\tau)}]$$
$$-C^*(t-\tau)[\sigma_x, \sigma_x(t,t')e^{-iH_{\rm Rabi}(t-\tau)}\rho_{\rm S}(\tau)\sigma_x e^{iH_{\rm Rabi}(t-\tau)}]\Big\}, \tag{20}$$

$$\frac{d}{dt}\rho_{\rm S}(t) = -i[H_{\rm Rabi},\rho_S(t)] - \int_0^t d\tau \Big\{C(t-\tau)[\sigma_x, e^{-iH_{\rm Rabi}(t-\tau)}\sigma_x\rho_{\rm S}(\tau)e^{iH_{\rm Rabi}(t-\tau)}] + \text{h.c.}\Big\}, \tag{21}$$

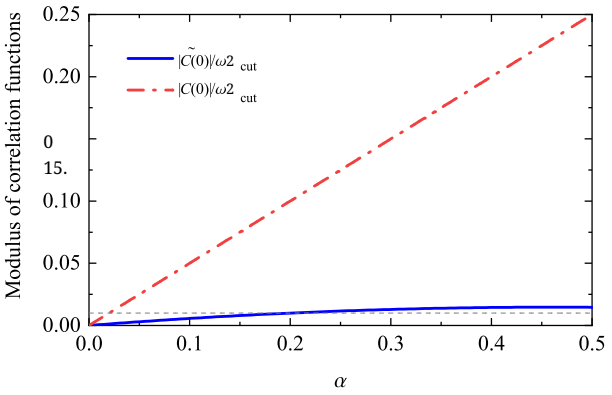

图1. 关联函数 $\tilde{C}(t)$ 和 $C(t)$ 的模在时间 $t=0$ 以 $\omega_{\rm cut}^2$ 为单位作为 α 的函数对于 $\omega_{\rm cut}=5\omega_0$。灰色虚线表示值 10^{-2}。

$$\sigma_x(t,t') = e^{-iH_{\rm Rabi}(t-t')}\sigma_x e^{iH_{\rm Rabi}(t-t')}, \tag{22}$$

$$C(t) = \frac{1}{4}\int_0^\infty J(\omega)e^{-i\omega t}d\omega = \frac{\alpha\omega_{\rm cut}^2}{2\left(1+i\omega_{\rm cut}t\right)^2}. \tag{23}$$

为深入理解 PTNZE 相较于 SNZE 的显著改进，我们分别分析 PTNZE 和 SNZE 的储库关联函数 $C(t)$ 和 $C(t)$。根据文献 [34], , PTNZE 的有效性条件可表示为

$$|\tilde{C}(0)|/\omega_{\rm cut}^2 \ll 1. \tag{24}$$

类似地，对于 SNZE，我们有以下条件

$$|C(0)|/\omega_{\rm cut}^2 \ll 1. \tag{25}$$

在图 1 中，我们展示了当 $\omega_{\rm cut}=5\omega_0$ 时，$|\tilde{C}(0)|/\omega_{\rm cut}^2$ 和 $|C(0)|/\omega_{\rm cut}^2=\alpha/2$ 随 α 的变化行为。我们注意到，随着 α 的增加，$|C(0)|$ 增加得极其缓慢，而随着 α 的增加，$|C(0)|$ 呈线性增加。粗略地说，预计 PTNZE 对于 $\alpha<0.2$ 是有效的，而 SNZE 对于 $\alpha<0.02$ 可以得到论证。

B. 含时变分原理和多重Davydov拟设

为了评估主方程方法，我们采用基于含时变分原理和多重 Davydov D_1 拟设的数值精确处理方法，求解由哈密顿量 (1) 描述的含时薛定谔方程，即 $i\partial_t|\psi(t)\rangle = H|\psi(t)\rangle$. 为简化计算，我们首先将薛定谔方程变换到与储库自由哈密顿量 $H_{\rm R}$ 相关的相互作用绘景，得到

$$i\partial_t|\tilde{\psi}(t)\rangle = \tilde{H}(t)|\tilde{\psi}(t)\rangle, \tag{26}$$

其中 $|\tilde{\psi}(t)\rangle = \exp(iH_{\rm R}t)|\psi(t)\rangle$ 和

$$\tilde{H}(t) = H_{\rm Rabi} + \sum_k \frac{\lambda_k}{2}\left(\hat{b}_k^\dagger e^{i\omega_k t} + \hat{b}_k e^{-i\omega_k t}\right)\sigma_x. \tag{27}$$

含时变分原理指出，含时薛定谔方程的最优解可通过 [35] 求得

$$\langle\delta\tilde{\psi}(t)|i\partial_t - \tilde{H}(t)|\tilde{\psi}(t)\rangle = 0 \tag{28}$$

给定试探态 $|\tilde{\psi}(t)\rangle$。

本文采用多重 Davydov D_1 （multi- D_1）拟设 [36], , 其形式为

$$|\mathrm{D}_1^M(t)\rangle = \sum_{d=1}^{M}\sum_{i=1}^{N_c}\left[A_{di}|+\rangle|\phi_i\rangle|f_d\rangle + B_{di}|-\rangle|\phi_i\rangle|g_d\rangle\right], \tag{29}$$

其中 $|\pm\rangle$ 是 σ_x的本征态，$|\phi_i\rangle$ 是用于描述腔模的基组f（可以是福克态、位移福克态和相干态），而 $|f_d\rangle$ 和 $|g_d\rangle$ 是多模相干态:

$$|f_d\rangle = \exp\left[\sum_{k=1}^{N_b}\left(f_{dk}\hat{b}_k^\dagger - f_{dk}^*\hat{b}_k\right)\right]|\{0_k\}\rangle, \tag{30}$$

$$|g_d\rangle = \exp\left[\sum_{k=1}^{N_b}\left(g_{dk}\hat{b}_k^\dagger - g_{dk}^*\hat{b}_k\right)\right]|\{0_k\}\rangle. \tag{31}$$

其中， A_{di}、 B_{di}、 f_{dk}和 g_{dk} 是随时间变化的变分参数。这些参数的物理意义十分明确： A_{di} 和 B_{di} 是概率振幅，而 f_{dk} 和 g_{dk} 是第k个浴模的位移。

形式上，拟设中总共有 $2MN_c$ 个基和 $2M(N_b+N_c)$ 个变分参数。在本工作中，我们使用腔模的福克基。这样做，我们可以轻松处理腔初始处于福克态的初始条件。此外，本拟设也可应用于耗散 JC 模型。通过将式(29)代入式(28)，可以很容易地推导出变分参数的运动方程。运动方程的显式形式和数值实现的细节见附录 C。

在数值模拟中，我们考虑储库的有限个谐振子。它们的频率 ω_k 和耦合常数 λ_k 可以从谱密度函数的离散化中获得。我们遵循参考文献 [37] 中的离散化程序，并推导出频域(0, $\omega_{\max}$)中的离散化频率，

$$\omega_k = -\omega_{\rm cut}\ln\left[1-\frac{k}{N_b}(1-e^{-\omega_{\max}/\omega_{\rm cut}})\right], \tag{32}$$

以及相应的耦合常数

$$\lambda_k = \left[2\alpha\omega_k\omega_{\rm cut}(1-e^{-\omega_{\max}/\omega_{\rm cut}})/N_b\right]^{1/2}, \tag{33}$$

其中， N_b 是储库模的总数。在整个研究中，我们设定 $N_b=500$、 $\omega_{\rm cut}=5\omega_0$和$\omega_{\max}=4\omega_{\rm cut}$。

借助变分方法，可以直接通过单时刻期望值计算发射谱，如下所示：

$$\begin{aligned} N(\omega_k,t) &= \langle \mathrm{D}_1^M(t)|\hat{b}_k^\dagger\hat{b}_k|\mathrm{D}_1^M(t)\rangle \\ &= \sum_{m,d=1}^{M}\sum_{j=1}^{N}\left[A_{mj}^* A_{dj} f_{mk}^* f_{dk}\langle f_m|f_d\rangle \right. \\ &\quad \left. + B_{mj}^* B_{dj} g_{mk}^* g_{dk}\langle g_m|g_d\rangle\right], \end{aligned} \tag{34}$$

其中， $\langle f_m|g_d\rangle$ 是相干态之间的重叠，其表达式为

$$\langle f_m|g_d\rangle = \exp\left[\sum_{k=1}^{N_b}\left(f_{mk}^* g_{dk} - \frac{1}{2}|f_{mk}|^2 - \frac{1}{2}|g_{dk}|^2\right)\right]. \tag{35}$$

以这种方式获得的谱被称为多D_1 结果。

变分结果的准确性可以通过偏差向量 [36, 38, 39] 的缩放平方范数来衡量

$$\begin{aligned} \sigma^2(t) &= \left|[i\partial_t - \tilde{H}(t)]|D_1^M(t)\rangle\right|^2/\omega_0^2 \\ &= \omega_0^{-2}\left[\langle D_1^M(t)|\tilde{H}^2(t)|D_1^M(t)\rangle - \langle \dot{D}_1^M(t)|\dot{D}_1^M(t)\rangle\right]. \end{aligned} \tag{36}$$

粗略而言，当 $\sigma^2(t) < 10^{-2}$ 时，变分结果在数值上是准确的 [40]。对于当前的耗散拉比和 Jaynes–Cummings 模型，在大多数单激发初态情况下，只要乘数 M 足够大，试探态就能够给出幅值极小的偏差向量，即 $\sigma^2(t) \sim 10^{-3}$。附录 C 展示了对于各种参数和两种单激发初态， $\sigma^2(t)$ 随 t 变化的详细计算和行为。具体而言，本文的多 Davydov D_1 拟设可用于生成文献 [23] 中的结果。因此，本文选用基于多 Davydov D_1 拟设的变分方法，对主方程结果进行基准测试。对于多激发初态，我们发现，本文和文献 [23] 中使用的试探态能够在短时间内给出准确的动力学和谱，但在长时间下可靠性较低，因为数值计算中的累积误差增大，导致偏差向量的大小增加，这与驱动耗散量子比特模型中的情况类似 [40]。

III. 结果与讨论

我们首先通过计算稳态发射光谱来考察不同种类的非马尔可夫量子回归理论的表现。稳态发射光谱可以通过传播变分方法的运动方程以及主方程足够长的时间来获得。通常，当 $t < 200\omega_0^{-1}$在超强耦合区间内时，谱会变得稳定，因此我们展示了主方程和变分方法在 $t = 200\omega_0^{-1}$下得到的谱。在图 2 中，我们展示了耗散 Rabi 模型在 $\lambda_c = 0.3\omega_0$、 $\omega_c = \omega_0$、 α 的三个取值以及量子比特-腔系统的两种初始态下，通过 PTNZE、PTBRE、SNZE 和变分方法计算得到的稳态发射光谱： $|e,0_c\rangle = |e\rangle\otimes|0_c\rangle$ （即量子比特处于激发态，而腔处于真空态）和 $|g,1_c\rangle = |g\rangle\otimes|1_c\rangle$ （即量子比特处于基态，而腔处于单光子福克态）。我们注意到，对于 $\alpha \le 0.1$，由 PTNZE 计算得到的发射光谱与数值精确的多-D_1 结果相比令人满意。尽管对于 $\alpha = 0.2$，PTNZE 与多-D_1 结果之间的偏差变得相当大，但 PTNZE 处理仍然在定性上是正确的。此外，我们发现，在大多数情况下，PTNZE 结果与多-D_1 的偏差小于 PTBRE 结果。将 SNZE 计算得到的发射光谱与多-D_1 结果进行比较时，可以注意到，SNZE 光谱由于部分区域为负而是不符合物理的。发射光子数在辐射频率上的分布由光谱刻画，而物理光谱始终为正。此外，对于 $\alpha \ge 0.1$，SNZE 给出了相当不准确的结果，其中包含负的光谱成分（此处未显示）。

在图 3 中，我们展示了稳态发射光谱

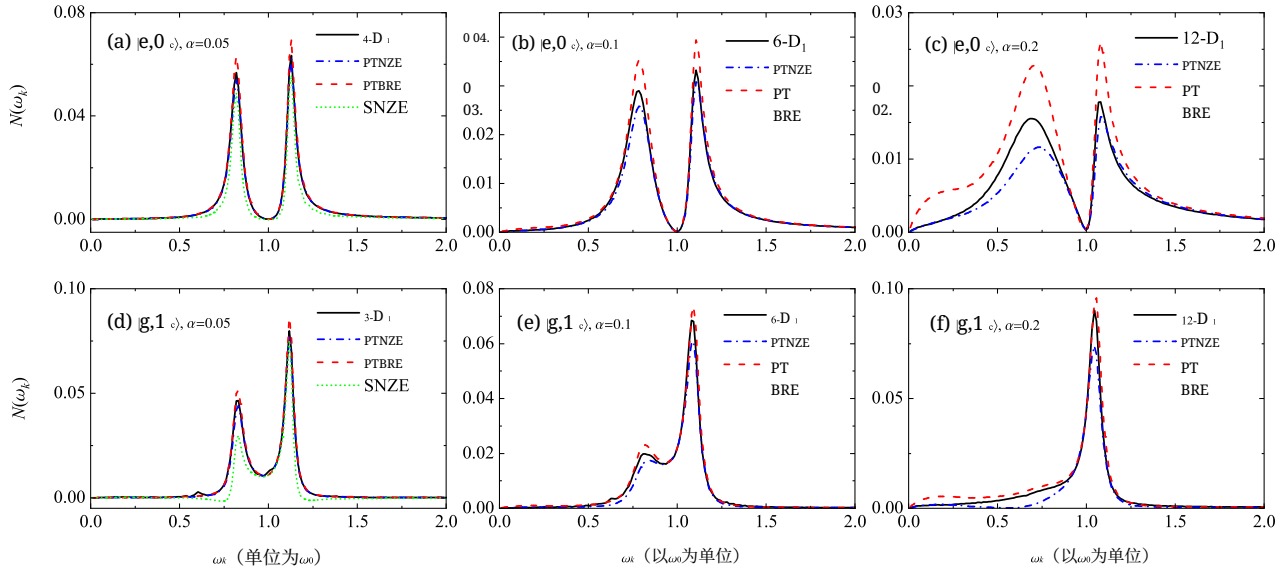

图2. 通过变分方法和主方程方法计算得到的耗散 Rabi 模型的稳态发射光谱，参数为 $\lambda_c = 0.3\omega_0$、 $\omega_c = \omega_0$ 以及 α的三个取值。上图和下图分别采用量子比特-腔初态 $|e、\ 0_c\rangle$ 以及 $|g、\ 1_c\rangle$。

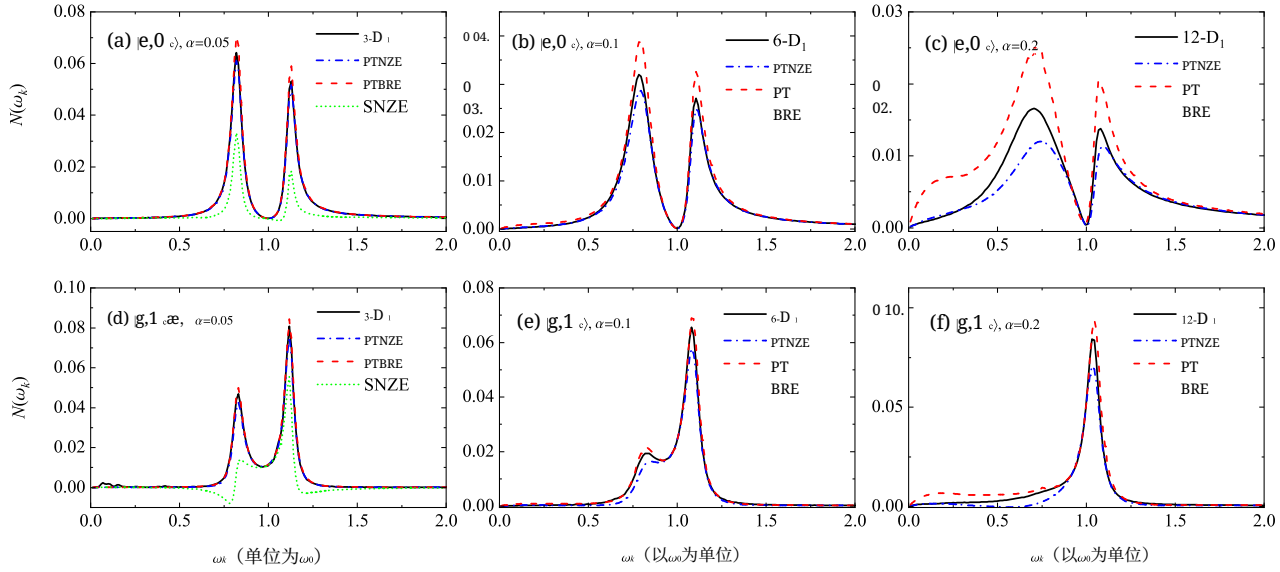

Figure 3. 耗散 JC 模型的稳态发射光谱由变分方法和主方程方法计算，对于 $\lambda_c = 0.3\omega_0$, $\omega_c = \omega_0$ 以及 α 的三个值。量子比特-腔初态为 $|e, 0_c\rangle$ 和 $|g, 1_c\rangle$。

使用 PTNZE、PT-BRE、SNZE 和变分方法，对 $\lambda_c = 0.3\omega_0$、$\omega_c = \omega_0$、 α 的三个取值以及两种初始态下的耗散 JC 模型进行研究。研究发现，对于 $\alpha \leq 0.1$，PTNZE 能够定量准确地描述耗散 JC 模型的发射光谱，并且多-D_1 结果与 PTNZE 结果之间的偏差与图 2 中的情况类似。需要强调的是，对于 α 的三个取值，SNZE 均失效。当前研究结果证实了 PTNZE 处理方法的有效性。此外，研究发现，在当前问题中，基于 PTNZE 的非马尔可夫量子回归理论优于基于 PTBRE 的理论，这表明非马尔可夫性的影响十分重要。此

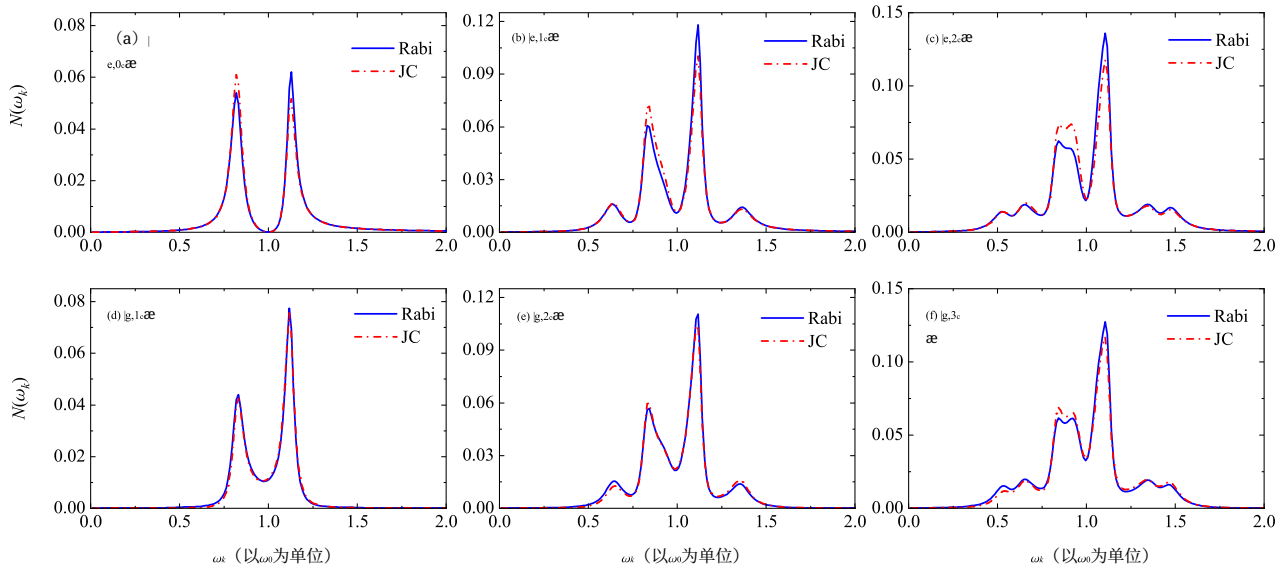

图4. 使用 PTNZE方法计算的耗散拉比模型和Jaynes–Cummings模型在 $\lambda_c = 0.3\omega_0$、$\omega_c = \omega_0$、$\alpha = 0.05$ 以及各种初始状态下的稳态发射光谱。

外，PTNZE 处理方法的表现也优于参考文献 [23] 中的 TRWA 处理方法；当 $\lambda_c > 0.1\omega_0$ 时，后者显然会高估高频峰。

我们说明了当量子比特-腔系统最初处于单激发态且 $\lambda_c/\omega_0 \sim 0.5$ $t =$ 时，$200\omega_0^{-1}$ $N_c = 10$ 基于主方程的方法和变分方法的计算效率。最终传播时间为 。使用 即已足够，即腔福克态的数量为 10。对于 PTNZE，CPU 时间约为 4 小时。对于 PTBRE，CPU 时间约为 1.7小时。对于 multi-D_1 方法，当 $M = 3$分别为 4、6和 12时，CPU时间分别约为2小时、3.2 小时、7.5 小时和 41小时。对于 $M = 3$，拟设中有3060个变分参数。对于$M = 12$，有 12240 个变分参数。事实证明，尽管使用了相对较多的变分参数，CPU 时间仍然是可以接受的。

当前的 PTNZE 方法可应用于多激发态，因为在这一形式体系中，量子比特-腔相互作用是通过数值方法精确处理的。利用 PTNZE，我们继续研究各种初始条件下耗散拉比模型和 JC 模型的发射谱，这有助于阐明量子比特-腔系统中反旋转耦合的作用。

我们使用 PTNZE 方法计算耗散 Rabi 模型和耗散 JC 模型在 $\lambda_c = 0.3\omega_0$、$\omega_c = \omega_0$（α 的两个取值）以及从单激发到三激发的各种初始态下的发射光谱。图 4 和图 5 分别展示了 $\alpha = 0.05$ 和 $\alpha = 0.1$ 情况下的稳态发射光谱。首先可以清楚地看到，在强耗散区，无论是否考虑量子比特-腔相互作用中的反旋转项，谱通常都是不对称的。这与参考文献 [41], 在弱耗散区得到的结果不同：其中，RWA 光谱是对称的，而非 RWA 光谱是不对称的。其次，值得注意的是，在中等耗散条件下，初始态激发数增加会使光谱从双峰结构转变为多峰结构。修饰态图像能够解释双峰和多峰光谱的形成：发射峰源自量子比特-腔系统 [42], 的修饰态之间的跃迁，这些态也称为极化激元态。特别是，通过计算参与发射过程的量子比特-腔系统修饰态之间的能隙，可以近似确定各峰的位置。随着 α 增大，卫星峰可能合并形成宽边带，从而产生有趣的发射线形。第三，我们注意到，图 4(a)–4(c) 与图 5(a)–5(c) 中两个模型之间的差异，分别比图 4(d)–4(f) 与图 5(d)–5(f) 中的差异更为显著。这表明，量子比特-腔系统中反旋转耦合的影响取决于初始态。

为进一步探究量子比特-腔系统中反旋转耦合的作用，我们利用 PTNZE 计算耗散 Rabi 模型和耗散 JC 模型在 $\lambda_c = 0.6\omega_0$、$\omega_c = \omega_0$、$\alpha = 0.05$下以及不同初态下的稳态发射谱。随着 λ_c增加，两个模型之间的差异愈发明显，揭示了反旋转项带来的若干影响。有趣的是，在

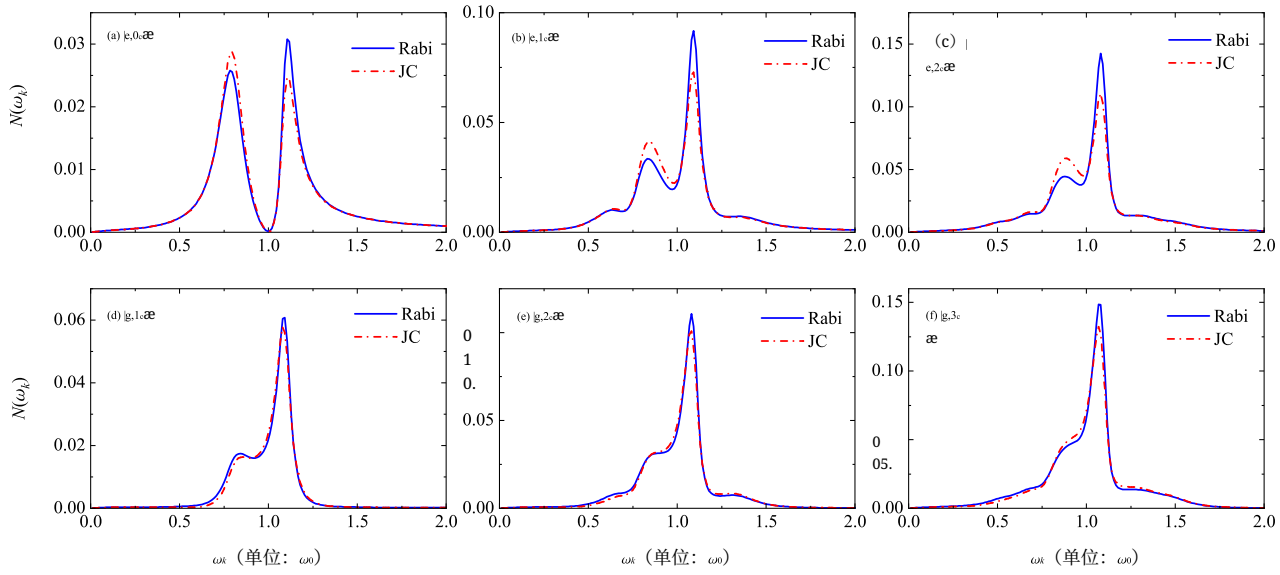

图 5. 使用 PTNZE 方法计算的耗散拉比模型和 Jaynes–Cummings 模型的稳态发射光谱，其中 $\lambda_c = 0.3\omega_0$、$\omega_c = \omega_0$ 、 $\alpha = 0.1$ 分别对应量子比特-腔系统的各种初态。

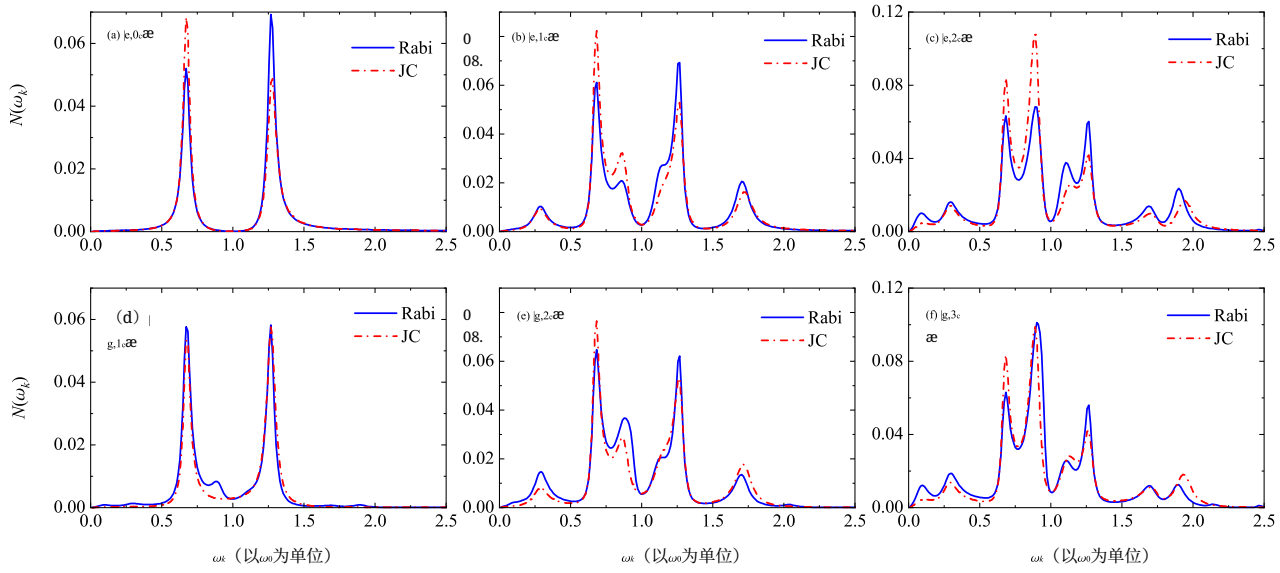

图6. 使用 PTNZE方法计算的耗散拉比模型和Jaynes–Cummings 模型在 $\lambda_c = 0.6\omega_0$、$\omega_c = \omega_0$ 、 $\alpha = 0.05$ 以及量子比特-腔系统的各种初始状态下的稳态发射光谱。

图6(a)和6(d) 中，对于初始态 $|e,0_c\rangle$ ，单激发拉比光谱呈现双峰，而对于初始态 $|g,1_c\rangle$，则呈现多峰。尽管初始态 $|g,1_c\rangle$中只有一个激发，但光谱呈现出类似于多激发谱的多峰结构。这是由于反旋转耦合导致拉比模型的激发数不守恒的表现。实际上，对于初始态 $|e,0_c\rangle$，当量子比特-腔耦合足够强时，拉比光谱也会变为多峰，例如， $\lambda_c \sim \omega_0$。相反，由于量子比特-腔相互作用中不存在反旋转项，Jaynes–Cummings光谱呈现双峰，这表明反旋转耦合的表现不仅取决于耦合强度 λ_c 但也取决于初始态。除了由反旋转-产生的额外峰之外，

旋转项，这些项也能显著改变发射能量和强度，如图 6 所示。

IV. 结论

总之，我们采用基于 PTNZE 的非马尔可夫量子回归理论，以及结合多个 Davydov 拟设的含时变分方法，研究了超强量子比特-腔耦合条件下，耗散浴中拉比模型和 Jaynes–Cummings 模型的发射谱。基于通过幺正变换构造的有效哈密顿量，我们发现，对于 $\alpha \leq 0.1$，PTNZE 与变分方法相比具有令人满意的准确性；该耦合区间超出了 SNZE 的能力范围。利用 PTNZE，我们通过比较两个模型的谱，阐明了量子比特-腔反旋项对发射谱的作用。结果表明，无论是否包含量子比特-腔反旋项，发射谱通常都不对称；这一结果与弱耗散极限 [41] 下的发现相悖。对于单激发初态，结合多个 Davydov 拟设的含时变分方法能够准确给出稳态行为；我们发现，反旋项会导致激发数不守恒，并产生多峰发射谱。然而，反旋项对发射谱的影响取决于耦合强度和系统初态。对于多激发初态，可能需要改进多个 Davydov 拟设，以更好地描述稳态。

本文提出的方法可应用于从腔量子电动力学到分子振动极化激元 [45, 46] 或由 Fenna–Matthews–Olson 模型描述的光捕获复合物等问题。

致谢

谨此感谢中国国家自然科学基金（项目编号：12005188、11774226 和 11774311）以及新加坡教育部学术研究基金一级（项目编号：RG87/20）的资助。

附录 A：耗散 Rabi 模型的有效哈密顿量与主方程

可以直接进行酉变换，得到的哈密顿量可分为三部分 [27]:

$$H' = H'_0 + H'_1 + H'_2, \tag{A1}$$

$$H'_0 = \frac{1}{2}\eta\omega_0\sigma_z + \omega_c\hat{b}_c^\dagger\hat{b}_c + \frac{\lambda_c}{2}(\hat{b}_c^\dagger + \hat{b}_c)\sigma_x + \sum_k \omega_k\hat{b}_k^\dagger\hat{b}_k - \sum_k \frac{\lambda_k^2}{4\omega_k}\xi_k(2-\xi_k), \tag{A2}$$

$$H'_1 = \sum_k \frac{\lambda_k}{2}(1-\xi_k)(\hat{b}_k^\dagger + \hat{b}_k)\sigma_x - \frac{i\eta\omega_0}{2}\sum_k \frac{\lambda_k}{\omega_k}\xi_k(\hat{b}_k^\dagger - \hat{b}_k)\sigma_y, \tag{A3}$$

$$H'_2 = \frac{\omega_0}{2}\sigma_z\left(\cosh X - \eta\right) - i\frac{\omega_0}{2}\sigma_y\left(\sinh X - \eta X\right), \tag{A4}$$

其中

$$X = \sum_k \frac{\lambda_k}{\omega_k}\xi_k(\hat{b}_k^\dagger - \hat{b}_k) \tag{A5}$$

$$\eta = \langle\{0_k\}|\cosh X|\{0_k\}\rangle = \exp\left[-\sum_k \frac{1}{2}\left(\frac{\lambda_k}{\omega_k}\xi_k\right)^2\right]. \tag{A6}$$

参数 ξ_k 通过令 H'_1中的系数相等来确定，即:

$$\frac{\lambda_k}{2}(1-\xi_k) = \frac{1}{2}\eta\omega_0\frac{\lambda_k}{\omega_k}\xi_k, \tag{A7}$$

由此可得

$$\xi_k = \frac{\omega_k}{\eta\omega_0 + \omega_k}. \tag{A8}$$

因此， H'_1 呈现旋转波形式，即，

$$H'_1 = \sum_k \tilde{\lambda}_k(\hat{b}_k^\dagger\sigma_- + \hat{b}_k\sigma_+), \tag{A9}$$

其中修正后的耦合常数为

$$\tilde{\lambda}_k = \frac{\eta\omega_0\lambda_k}{\eta\omega_0 + \omega_k}. \tag{A10}$$

在 H'_0 中，量子比特-腔系统与储库解耦。 H'_1 描述了量子比特与储库之间经过修正的一阶相互作用。 H'_2 是高阶相互作用，在某些条件下可以安全地忽略。因此，我们将 $H' \approx H'_0 + H'_1$ 用作有效哈密顿量。

在变换后的参考系中，我们有

$$\begin{aligned}\Lambda'(t,t') &= e^S\Lambda(t,t')e^{-S}\\ &= e^S U(t-t')\sigma_x\rho(t')U^\dagger(t-t')e^{-S}\\ &= e^S U(t-t')e^{-S}\sigma_x e^S\rho(t')e^{-S}e^S U^\dagger(t-t')e^{-S}\\ &= e^{-iH'(t-t')}\sigma_x\rho'(t')e^{iH'(t-t')}.\end{aligned} \tag{A11}$$

我们分别将 H'_0 和 H'_1 设为自由哈密顿量和相互作用哈密顿量。我们首先推导约化算符 $\Lambda'_S(t,t') = \mathrm{Tr}_R\Lambda'(t,t')$ 的运动方程。

在相互作用绘景中，算符 $\Lambda'^I(t,t')$ $=\exp(iH'_0t)\Lambda'(t,t')\exp(-iH'_0t)$ 满足

$$\frac{d}{dt}\Lambda'^I(t,t') = -i[H'^I_1(t), \Lambda'^I(t,t')], \tag{A12}$$

其中

$$H'^I_1(t) = \sum_k \tilde{\lambda}_k[\hat{b}^\dagger_k e^{i\omega_k t}\sigma_-(t) + \hat{b}_k e^{-i\omega_k t}\sigma_+(t)], \tag{A13}$$

$$\sigma_\pm(t) = e^{iH'_{\rm Rabi}t}\sigma_\pm e^{-iH'_{\rm Rabi}t}. \tag{A14}$$

通过形式积分，可得

$$\Lambda'^I(t,t') = \Lambda'^I(t',t') - i\int_{t'}^{t} d\tau[H'^I_1(\tau), \Lambda'^I(\tau,t')]. \tag{A15}$$

将形式解代入式（A12），可得

$$\begin{aligned}\frac{d}{dt}\Lambda'^I(t,t') = &-i[H'^I_1(t), \sigma_x(t')\rho'^I(t')] \\ &-\int_{t'}^{t} d\tau[H'^I_1(t), [H'^I_1(\tau), \Lambda'^I(\tau,t')]],\end{aligned} \tag{A16}$$

其中我们使用了 $\Lambda'^I(t',t') = \sigma_x(t')\rho'^I(t')$。这里 $\rho'^I(t')$ 是总系统在 t' 时刻的密度矩阵，其满足

$$\frac{d}{dt}\rho'^I(t') = -i[H'^I_1(t'), \rho'^I(t')]. \tag{A17}$$

总密度矩阵可写成形式解

$$\rho'^I(t') = \rho'^I(0) - i\int_0^{t'} d\tau[H'^I_1(\tau), \rho'^I(\tau)]. \tag{A18}$$

将上述方程代入式（A16），我们得到

$$\begin{aligned}\frac{d}{dt}\Lambda'^I(t,t') = &-i[H'^I_I(t), \sigma_x(t')\rho'^I(0)] \\ &-\int_0^{t'} d\tau[H'^I_1(t), \sigma_x(t')[H'^I_1(\tau), \rho'^I(\tau)] \\ &-\int_{t'}^{t} d\tau[H'^I_1(t), [H'^I_1(\tau), \Lambda'^I(\tau,t')]],\end{aligned} \tag{A19}$$

为继续推导，我们采用玻恩近似 $\Lambda'^I(\tau,t') \approx \Lambda'^I_{\rm S}(\tau,t')|\{0_k\}\rangle\langle\{0_k\}|$ 和 $\rho'^I(\tau) \approx \rho'^I_{\rm S}(\tau)|\{0_k\}\rangle\langle\{0_k\}|$，并假设初始条件可因子化 $\rho'^I(0) =\rho'_{\rm S}(0)|\{0_k\}\rangle\langle\{0_k\}|$。对式 (A19) 关于储库取偏迹，并变换到薛定谔绘景，可以直接推导出约化算符的运动方程。显然，类似的步骤可导出约化密度矩阵的 PTNZE。

主方程是微分-积分方程，可以通过以下方法求解。为进行具体推导，我们以式 (17) 为例。我们首先用指数函数拟合浴关联函数 [31]

$$\tilde{C}(t) = \sum_{l=1}^{K} g_l e^{-\gamma_l t}, \tag{A20}$$

其中 g_l 和 γ_l ($\mathrm{Re}\gamma_l > 0$) 是复值参数。其次，我们定义辅助密度矩阵如下：

$$\rho_l(t) = \int_0^t d\tau g_l e^{-\gamma_l(t-\tau)} e^{-iH'_{\rm Rabi}(t-\tau)}\sigma_-\rho'_{\rm S}(\tau)e^{iH'_{\rm Rabi}(t-\tau)}. \tag{A21}$$

对 t 求导，可得到辅助密度矩阵的运动方程

$$\frac{d}{dt}\rho_l(t) = -i[H'_{\rm Rabi}, \rho_l(t)] - \gamma_l\rho_l(t) + g_l\sigma_-\rho'_S(t), \tag{A22}$$

其中 $\rho_l(0)$ 为零矩阵。由此，方程变为 (17)

$$\frac{d}{dt}\rho'_{\rm S}(t) = -i[H'_{\rm Rabi}, \rho'_S(t)] - \left\{[\sigma_+, \sum_{l=1}^{K}\rho_l(t)] + \mathrm{h.c.}\right\}. \tag{A23}$$

我们可以将方程 (A22) 与 (A23) 结合起来，并用龙格-库塔方法求解。显然，正文中给出的 SNZE 也可以用上述方法求解。

附录 B：耗散 Jaynes–Cummings 模型的有效哈密顿量和主方程

为了变换耗散 Jaynes–Cummings 哈密顿量，我们将 $H_{\rm JC}$ 改写为另一种形式：

$$H_{\rm JC} = \frac{1}{2}\omega_0\sigma_z + \omega_c\hat{b}^\dagger_c\hat{b}_c + \frac{\lambda_c}{4}(\hat{b}_c + \hat{b}^\dagger_c)\sigma_x + i\frac{\lambda_c}{4}(\hat{b}_c - \hat{b}^\dagger_c)\sigma_y. \tag{B1}$$

幺正变换可以应用于总哈密顿量如下：

$$H' = e^S(H_{\rm JC} + H_{\rm R} + H_{\rm I})e^{-S} = H'_0 + H'_1 + H'_2, \tag{B2}$$

$$H'_0 = H'_{\rm JC} + \sum_k \omega_k\hat{b}^\dagger_k\hat{b}_k - \sum_k \frac{\lambda_k^2}{4\omega_k}\xi_k(2-\xi_k), \tag{B3}$$

$$\begin{aligned}H'_1 = &\sum_k \frac{\lambda_k}{2}(1-\xi_k)(\hat{b}^\dagger_k + \hat{b}_k)\sigma_x \\ &-\frac{i\eta\omega_0}{2}\sum_k \frac{\lambda_k}{\omega_k}\xi_k(\hat{b}^\dagger_k - \hat{b}_k)\sigma_y \\ &-\eta\frac{\lambda_c}{4}\sum_k \frac{\lambda_k}{\omega_k}\xi_k(\hat{b}^\dagger_k - \hat{b}_k)(\hat{b}_c - \hat{b}^\dagger_c)\sigma_z,\end{aligned} \tag{B4}$$

$$H_2' = \left[i\frac{\omega_0}{2}\sigma_y + \frac{\lambda_c}{4}(\hat{b}_c - \hat{b}_c^\dagger)\sigma_z \right](\eta X - \sinh X) + \left[\frac{\omega_0}{2}\sigma_z + i\frac{\lambda_c}{4}(\hat{b}_c - \hat{b}_c^\dagger)\sigma_y \right](\cosh X - \eta). \quad \text{(B5)}$$

其中

$$H_{\rm JC}' = \frac{1}{2}\eta\omega_0\sigma_z + \omega_c\hat{b}_c^\dagger\hat{b}_c + \frac{\lambda_c}{4}(\hat{b}_c + \hat{b}_c^\dagger)\sigma_x + i\frac{\eta\lambda_c}{4}(\hat{b}_c - \hat{b}_c^\dagger)\sigma_y. \quad \text{(B6)}$$

为继续进行，参数 ξ_k 通过使用方程 (A7) 获得。在此过程中， H_1' 被改写如下：

$$H_1' = \sum_k \tilde{\lambda}_k \left\{ \hat{b}_k^\dagger \left[\sigma_- - \frac{\lambda_c}{4\omega_0}(\hat{b}_c - \hat{b}_c^\dagger)\sigma_z \right] + \hat{b}_k \left[\sigma_+ + \frac{\lambda_c}{4\omega_0}(\hat{b}_c - \hat{b}_c^\dagger)\sigma_z \right] \right\} \equiv \sum_k \tilde{\lambda}_k(\hat{b}_k^\dagger \hat{S}_- + \hat{b}_k \hat{S}_+), \quad \text{(B7)}$$

其中

$$\hat{S}_\pm = \sigma_\pm \pm \frac{\lambda_c}{4\omega_0}(\hat{b}_c - \hat{b}_c^\dagger)\sigma_z. \quad \text{(B8)}$$

有效哈密顿量设为 $H' \approx H_0' + H_1'$。耗散 JC 模型的主方程可通过以下替换直接由式（16）和（17）得到：

$$H_{\rm Rabi}' \to H_{\rm JC}', \quad \text{(B9)}$$

$$\sigma_\pm \to \hat{S}_\pm. \quad \text{(B10)}$$

附录 C：变分参数的运动方程

将拟设代入正文中的式（28），可得运动方程：

$$i\langle +|\langle\phi_j|\langle f_m|\dot{D}_1^M(t)\rangle = \langle +|\langle\phi_j|\langle f_m|\tilde{H}(t)|D_1^M(t)\rangle, \quad \text{(C1)}$$

$$i\sum_{j=1}^{N_c} A_{mj}^*\langle +|\langle\phi_j|\langle f_m|\hat{b}_p|\dot{D}_1^M(t)\rangle = \sum_{j=1}^{N_c} A_{mj}^*\langle +|\langle\phi_j|\langle f_m|\hat{b}_p\tilde{H}(t)|D_1^M(t)\rangle, \quad \text{(C2)}$$

$$i\langle -|\langle\phi_j|\langle g_m|\dot{D}_1^M(t)\rangle = \langle -|\langle\phi_j|\langle g_m|\tilde{H}(t)|D_1^M(t)\rangle, \quad \text{(C3)}$$

$$i\sum_{j=1}^{N_c} B_{mj}^*\langle -|\langle\phi_j|\langle g_m|\hat{b}_p|\dot{D}_1^M(t)\rangle = \sum_{j=1}^{N_c} B_{mj}^*\langle -|\langle\phi_j|\langle g_m|\hat{b}_p\tilde{H}(t)|D_1^M(t)\rangle. \quad \text{(C4)}$$

试探态的时间导数为

$$|\dot{D}_1^M(t)\rangle = \sum_{d=1}^{M}\sum_{i=1}^{N_c} a_{di}|+\rangle|\phi_i\rangle|f_d\rangle + \sum_{d=1}^{M}\sum_{i=1}^{N_c} A_{di}\sum_{k=1}^{N_b}\dot{f}_{dk}\hat{b}_k^\dagger|+\rangle|\phi_i\rangle|f_d\rangle + \sum_{d=1}^{M}\sum_{i=1}^{N_c} b_{di}|-\rangle|\phi_i\rangle|g_d\rangle + \sum_{d=1}^{M}\sum_{i=1}^{N_c} B_{di}\sum_{k=1}^{N_b}\dot{g}_{dk}\hat{b}_k^\dagger|-\rangle|\phi_i\rangle|g_d\rangle. \quad \text{(C5)}$$

其中

$$a_{di} = \dot{A}_{di} - \frac{1}{2}A_{di}\sum_{k=1}^{N_b}\left(f_{dk}\dot{f}_{dk}^* + \dot{f}_{dk}f_{dk}^*\right), \quad \text{(C6)}$$

$$b_{di} = \dot{B}_{di} - \frac{1}{2}B_{di}\sum_{k=1}^{N_b}\left(g_{dk}\dot{g}_{dk}^* + \dot{g}_{dk}g_{dk}^*\right). \quad \text{(C7)}$$

因此，(C4)式左侧的内积可计算如下： (C1)-

$$\langle +|\langle\phi_j|\langle f_m|\dot{D}_1^M(t)\rangle = \sum_{d=1}^{M}\left(a_{dj} + A_{dj}\sum_{k=1}^{N_b} f_{mk}^*\dot{f}_{dk}\right)\langle f_m|f_d\rangle, \quad \text{(C8)}$$

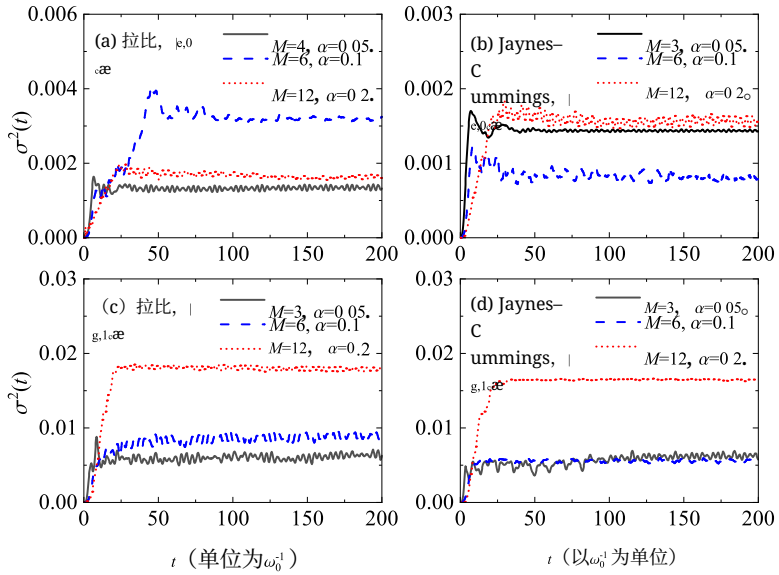

图 7. 图 2和图 3 中变分结果的偏差向量 $\sigma^2(t)$ 的平方范数随时间 t 的变化。

$$\sum_{j=1}^{N_c} A_{mj}^* \langle +|\langle \phi_j|\langle f_m|\hat{b}_p|\dot{D}_1^M(t)\rangle = \sum_{d=1}^{M}\left(\sum_{j=1}^{N_c} A_{mj}^* a_{dj} f_{dp} + \sum_{j=1}^{N_c} A_{mj}^* A_{dj} \sum_{k=1}^{N_b}(\delta_{k,p} + f_{mk}^* f_{dp})\dot{f}_{dk}\right)\langle f_m|f_d\rangle, \tag{C9}$$

$$\langle -|\langle \phi_j|\langle g_m|\dot{D}_1^M(t)\rangle = \sum_{d=1}^{M}\left(b_{dj} + B_{dj}\sum_{k=1}^{N_b} g_{mk}^*\dot{g}_{dk}\right)\langle g_m|g_d\rangle, \tag{C10}$$

$$\sum_{j=1}^{N_c} B_{mj}^* \langle -|\langle \phi_j|\langle g_m|\hat{b}_p|\dot{D}_1^M(t)\rangle = \sum_{d=1}^{M}\left(\sum_{j=1}^{N_c} B_{mj}^* b_{dj} g_{dp} + \sum_{j=1}^{N_c} B_{mj}^* B_{dj} \sum_{k=1}^{N_b}(\delta_{k,p} + g_{mk}^* g_{dp})\dot{g}_{dk}\right)\langle g_m|g_d\rangle. \tag{C11}$$

式 (C1)–(C4) 右侧的非齐次项由下式给出

$$\begin{aligned}\langle +|\langle \phi_j|\langle f_m|\tilde{H}(t)|D_1^M(t)\rangle = &\sum_{d=1}^{M}\sum_{i=1}^{N_c}(A_{di}\langle +|\langle \phi_j|H_{\text{Rabi}}|+\rangle|\phi_i\rangle\langle f_m|f_d\rangle + B_{di}\langle +|\langle \phi_j|H_{\text{Rabi}}|-\rangle|\phi_i\rangle\langle f_m|g_d\rangle)\\ &+\sum_{d=1}^{M} A_{dj}\sum_{k=1}^{N_b}\frac{\lambda_k}{2}(f_{mk}^* e^{i\omega_k t} + f_{dk}e^{-i\omega_k t})\langle f_m|f_d\rangle,\end{aligned} \tag{C12}$$

$$\begin{aligned}\sum_{j=1}^{N_c} A_{mj}^*\langle +|\langle \phi_j|\langle f_m|\hat{b}_p\tilde{H}(t)|D_1^M(t)\rangle = &\sum_{d=1}^{M}\sum_{j,i=1}^{N_c}\big(A_{mj}^* A_{di}\langle +|\langle \phi_j|H_{\text{Rabi}}|+\rangle|\phi_i\rangle f_{dp}\langle f_m|f_d\rangle\\ &+A_{mj}^* B_{di}\langle +|\langle \phi_j|H_{\text{Rabi}}|-\rangle|\phi_i\rangle g_{dp}\langle f_m|g_d\rangle\big)\\ &+\sum_{d=1}^{M}\sum_{j=1}^{N_c} A_{mj}^* A_{dj}\sum_{k=1}^{N_b}\frac{\lambda_k}{2}[\delta_{k,p}e^{i\omega_k t} + (f_{mk}^* e^{i\omega_k t} + f_{dk}e^{-i\omega_k t})f_{dp}]\langle f_m|f_d\rangle,\end{aligned} \tag{C13}$$

$$\begin{aligned}\langle -|\langle \phi_j|\langle g_m|\tilde{H}(t)|D_1^M(t)\rangle = &\sum_{d=1}^{M}\sum_{i=1}^{N_c}(A_{di}\langle -|\langle \phi_j|H_{\text{Rabi}}|+\rangle|\phi_i\rangle\langle g_m|f_d\rangle + B_{di}\langle -|\langle \phi_j|H_{\text{Rabi}}|-\rangle|\phi_i\rangle\langle g_m|g_d\rangle)\\ &-\sum_{d=1}^{M} B_{dj}\sum_{k=1}^{N_b}\frac{\lambda_k}{2}(g_{mk}^* e^{i\omega_k t} + g_{dk}e^{-i\omega_k t})\langle g_m|g_d\rangle,\end{aligned} \tag{C14}$$

$$\sum_{j=1}^{N_c} B_{mj}^*\langle -|\langle\phi_j|\langle g_m|\hat{b}_p\tilde{H}(t)|D_1^M(t)\rangle = \sum_{d=1}^{M}\sum_{j,i=1}^{N_c}\big(B_{mj}^* A_{di}\langle +|\langle\phi_j|H_{\rm Rabi}|+\rangle|\phi_i\rangle f_{dp}\langle g_m|f_d\rangle$$
$$+B_{mj}^* B_{di}\langle -|\langle\phi_j|H_{\rm Rabi}|-\rangle|\phi_i\rangle g_{dp}\langle g_m|g_d\rangle\big)$$
$$-\sum_{d=1}^{M}\sum_{j=1}^{N_c} B_{mj}^* B_{dj}\sum_{k=1}^{N_b}\frac{\lambda_k}{2}[\delta_{k,p}e^{i\omega_k t}+(g_{mk}^* e^{i\omega_k t}+g_{dk}e^{-i\omega_k t})g_{dp}]\langle g_m|g_d\rangle, \quad \text{(C15)}$$

为进行模拟，将运动方程改写为矩阵形式 $i\mathcal{M}\vec{y}=I$，其中 $\mathcal{M}$ 是式 (C8)–(C11) 中定义的系数矩阵，向量 $\vec{y}$ 由量 $\{a_{di},\dot{f}_{dk},b_{di},\dot{g}_{dk}\}$组成，而 $\vec{I}$是非齐次向量，其分量定义于式 (C12)–(C15) 中。要得到变分参数的时间导数，需要求解关于 $\vec{y}$ 的矩阵方程。由此可得变量 $\{a_{di},f_{dk},b_{di},\dot{g}_{dk}\}$ 的值。利用式 (C6) 和 (C7)，可以计算 A_{di}和 B_{di}的时间导数。得到变分参数的时间导数后，我们使用四阶龙格-库塔法更新变分参数的值。

为了衡量变分结果的准确性，我们需要按如下方式计算 $\tilde{H}^2$ 的期望值：

$$\left\langle\tilde{H}^2(t)\right\rangle = \sum_{m,d=1}^{M}\sum_{j,i=1}^{N_c}\big(A_{mj}^* A_{di}\langle +|\langle\phi_j|H_{\rm Rabi}^2|+\rangle|\phi_i\rangle\langle f_m|f_d\rangle + A_{mj}^* B_{di}\langle +|\langle\phi_j|H_{\rm Rabi}^2|-\rangle|\phi_i\rangle\langle f_m|g_d\rangle$$
$$+B_{mj}^* A_{di}\langle -|\langle\phi_j|H_{\rm Rabi}^2|+\rangle|\phi_i\rangle\langle g_m|f_d\rangle + B_{mj}^* B_{di}\langle -|\langle\phi_j|H_{\rm Rabi}^2|-\rangle|\phi_i\rangle\langle g_m|g_d\rangle\big)$$
$$+\sum_{m,d=1}^{M}\sum_{j,i=1}^{N_c}\Bigg(A_{mj}^* A_{di}\langle +|\langle\phi_j|\{H_{\rm Rabi},\sigma_x\}|+\rangle|\phi_i\rangle\sum_{k=1}^{N_b}\frac{\lambda_k}{2}(f_{mk}^* e^{i\omega_k t}+f_{dk}e^{-i\omega_k t})\langle f_m|f_d\rangle$$
$$+A_{mj}^* B_{di}\langle +|\langle\phi_j|\{H_{\rm Rabi},\sigma_x\}|-\rangle|\phi_i\rangle\sum_{k=1}^{N_b}\frac{\lambda_k}{2}(f_{mk}^* e^{i\omega_k t}+g_{dk}e^{-i\omega_k t})\langle f_m|g_d\rangle$$
$$+B_{mj}^* A_{di}\langle -|\langle\phi_j|\{H_{\rm Rabi},\sigma_x\}|+\rangle|\phi_i\rangle\sum_{k=1}^{N_b}\frac{\lambda_k}{2}(g_{mk}^* e^{i\omega_k t}+f_{dk}e^{-i\omega_k t})\langle g_m|f_d\rangle$$
$$+B_{mj}^* B_{di}\langle -|\langle\phi_j|\{H_{\rm Rabi},\sigma_x\}|-\rangle|\phi_i\rangle\sum_{k=1}^{N_b}\frac{\lambda_k}{2}(g_{mk}^* e^{i\omega_k t}+g_{dk}e^{-i\omega_k t})\langle g_m|g_d\rangle\Bigg)$$
$$+\sum_{m,d=1}^{M}\sum_{i=1}^{N_c} A_{mi}^* A_{di}\left\{\left[\sum_{k=1}^{N_b}\frac{\lambda_k}{2}(f_{mk}^* e^{i\omega_k t}+f_{dk}e^{-i\omega_k t})\right]^2+\sum_{k=1}^{N_b}\frac{\lambda_k^2}{4}\right\}\langle f_m|f_d\rangle$$
$$+\sum_{m,d=1}^{M}\sum_{i=1}^{N_c} B_{mi}^* B_{di}\left\{\left[\sum_{k=1}^{N_b}\frac{\lambda_k}{2}(g_{mk}^* e^{i\omega_k t}+g_{dk}e^{-i\omega_k t})\right]^2+\sum_{k=1}^{N_b}\frac{\lambda_k^2}{4}\right\}\langle g_m|g_d\rangle, \quad \text{(C16)}$$

$$\langle\dot{D}_1^M(t)|\dot{D}_1^M(t)\rangle = \sum_{m,d=1}^{M}\sum_{i=1}^{N_c}\left(a_{mi}^* a_{di}+a_{mi}^* A_{di}\sum_{k=1}^{N_b}f_{mk}^*\dot{f}_{dk}+A_{mi}^* a_{di}\sum_{k=1}^{N_b}\dot{f}_{mk}^* f_{dk}\right)\langle f_m|f_d\rangle$$
$$+\sum_{m,d=1}^{M}\sum_{i=1}^{N_c} A_{mi}^* A_{di}\sum_{k,p=1}^{N_b}(\delta_{k,p}+f_{mk}^* f_{dp})\dot{f}_{mp}^*\dot{f}_{dp}\langle f_m|f_d\rangle$$
$$+\sum_{m,d=1}^{M}\sum_{i=1}^{N_c}\left(b_{mi}^* b_{di}+b_{mi}^* B_{di}\sum_{k=1}^{N_b}g_{mk}^*\dot{g}_{dk}+B_{mi}^* b_{di}\sum_{k=1}^{N_b}\dot{g}_{mk}^* g_{dk}\right)\langle g_m|g_d\rangle$$
$$+\sum_{m,d=1}^{M}\sum_{i=1}^{N_c} B_{mi}^* B_{di}\sum_{k,p=1}^{N_b}(\delta_{k,p}+g_{mk}^* g_{dp})\dot{g}_{mp}^*\dot{g}_{dp}\langle g_m|g_d\rangle. \quad \text{(C17)}$$

本文的变分方法也可以直接应用于 将其应用于耗散 JC 模型时，用 $H_{\rm Rabi}$ 替换

H_{JC} 式（C12）–（C17）中。

在图7中，我们展示了主文中每个变分结果的 $\sigma^2(t)$ 随时间 t 的变化。根据我们先前的工作 [40], ，当 $\sigma^2(t)$ < 0.01时，变分动力学与层级运动方程（HEOM）方法 [43, 44] 的结果吻合良好；而当 $\sigma^2(t)$ ~ 0.1时，则明显偏离后者。除 $\alpha = 0.2$ 的情况以及初态为 $|g$外，注意到 $1_c\rangle$， $\sigma^2(t)$的数量级为 10^{-3}，其远小于0.01。因此，有理由相信，相应的变分结果相当准确。对于 $\alpha = 0.2$ and 初始态为 $|g$、$1_c\rangle$的情况，尽管 $\sigma^2(t)$略大于0.01，但由于偏差向量仍然不是很大，我们也可以预期变分谱会略微偏离精确谱。此外，图 7表明，$\sigma^2(t)$ 的大小取决于 α and 初始态。

[1]P. Forn-Díaz、L. Lamata、E. Rico、J. Kono 和 E. Solano，《超强耦合区间的光-物质相互作用》，《现代物理评论》**91**，025005（2019）。[2] A. F. Kockum、A. Miranowicz、S. D. Liberato、S. Savasta 和 F. Nori，《光与物质之间的超强耦合》，《自然综述：物理》**1**，19（2019）。[3] K. Sun、C. Dou、M. F. Gelin 和 Y. Zhao，《无序 Tavis-Cummings 和 Holstein-Tavis-Cummings 模型的动力学》，《化学物理杂志》**156**，024102（2021）。[4] P. Forn-Díaz、J. Lisenfeld、D. Marcos、J. J. García-Ripoll、E. Solano、C. J. P. M. Harmans 和 J. E. Mooij，《超强耦合区间量子比特-振子系统中布洛赫-西格特频移的观测》，《物理评论快报》**105**，237001（2010）。[5] F. Yoshihara、T. Fuse、S. Ashhab、K. Kakuyanagi、S. Saito 和 K. Semba，《从超强耦合到深强耦合区间的电路量子电动力学系统特征谱》，《物理评论 A》**95**，053824（2017）。[6] S.-P. Wang、G.-Q. Zhang、Y. Wang、Z. Chen、T. Li、J. S. Tsai、S.-Y. Zhu 和 J. Q. You，《超强耦合电路量子电动力学系统中的光子缀饰布洛赫-西格特频移》，《物理评论应用》**13**，054063（2020）。[7] P. Forn-Díaz、J. J. García-Ripoll、B. Peropadre、J.-L. Orgiazzi、M. A. Yurtalan、R. Belyansky、C. M. Wilson 和 A. Lupascu，《非微扰区间单个人工原子与电磁连续体的超强耦合》，《自然：物理》**13**，39（2016）。[8] A. Blais、A. L. Grimsmo、S. Girvin 和 A. Wallraff，《电路量子电动力学》，《现代物理评论》**93**，025005（2021）。[9] I. S. Ulusoy、J. A. Gomez 和 O. Vendrell，《通过与腔模集体耦合，借助锥形交叉改变非辐射衰变动力学》，《物理化学杂志 A》**123**，8832（2019）。[10] K. Sun、M. F. Gelin 和 Y. Zhao，《在红荧烯中实现腔内单线态裂分》，《物理化学快报》**13**，4090（2022）。[11] K. Sun、M. F. Gelin 和 Y. Zhao，《精确模拟腔辅助、锥形交叉控制的单线态裂分过程的光谱特征》，《物理化学快报》**13**，4280（2022）。[12] F. Herrera 和 F. C. Spano，《分子系综中的腔控化学》，《物理评论快报》**116**，238301（2016）。[13] L. A. Martínez-Martínez、R. F. Ribeiro、J. Campos-González-Angulo 和 J. Yuen-Zhou，《超强耦合能否改变基态化学反应？》《ACS 光子学》**5**，167（2017）。[14]D. Sidler、M. Ruggenthaler、H.Appel和A.Rubio，《量子腔中的化学：精确结果、热速度的影响及修正的解离》，《物理化学快报》**11**，7525 (2020)。[15] M. A. C.Saller、A. Kelly和 E.Geva，《用于模拟腔修饰分子动力学的准经典映射哈密顿量方法基准测试》，《物理化学快报》**12**，3163 (2021)。[16] L. P. Lindoy、A.Mandal 和D.R.Reichman，《基态化学动力学的共振腔修饰》，《物理化学快报》**13**，6580(2022)。[17] P.Yang和J.Cao，《极化振动强耦合下化学反应中的量子效应》，《物理化学快报》**12**，9531-9538 (2021)。[18] A. Mandal、T.D.Krauss 和P. Huo，《通过腔量子电动力学介导的极化激元电子转移》，J. Phys. Chem. B **124**，6321 (2020)。[19] M. Cirio、S. D.Liberato、N. Lambert 和 F. Nori，《基态电致发光》，《物理评论快报》**116**，1136012016( )。[20] S. D. Liberato，《耗散系统基态中的虚光子》，Nat.Commun. **8**，1465 (2017)。[21] L. Henriet、Z. Ristivojevic、P. P.Orth和 K.L. Hur，《受驱动耗散 Rabi 模型的量子动力学》，《物理评论 A》**90**，023820 (2014)。[22] D.Zueco 和 J. García-Ripoll，《动力学极化子拟设：电路 QED 超强耦合区间的理论工具》，《物理评论 A》**99**，013807 (2019)。[23] Y.Yan、T. T.Ergogo、Z.Lü、L.Chen、J. Luo和Y.Zhao，《强耗散环境中的兰姆位移与真空拉比分裂》，《物理化学快报》**12**，9919 (2021)。[24] L. Wang、L. Chen、N. Zhou和Y.Zhao，《基于多个 Davydov D_1 **144**, 态的 024101，2016 亚欧姆自旋-玻色子模型的变分动力学》，《化学物理杂志》( )。[25] L. Wang 、 Y. Fujihashi 、 L. Chen 和 Y.Zhao，《利用多个Davydov 态进行有限温度时间依赖变分》，《化学物理杂志》**146**，124127 (2017)。[26] Y. Fujihashi、L. Wang和 Y.Zhao，《通过利用多个 Davydov态进行有限温度时间依赖变分直接评估玻色子动力学》，《化学物理杂志》**147**，234107(2017)。[27] H. Zheng，《与欧姆浴耦合的二能级系统的动力学：一种微扰方法》，Eur. Phys. J. B **38**，559 (2004)。[28] D.Xu 和 J.Cao，《弱系统 - 浴耦合区间之外的非正则分布与非平衡输运：一种极化子变换方法》，Front.Phys. **11**，110308 (2016)]。

[29] H.-P. Breuer 和 F. Petruccione，《开放量子系统理论》（牛津大学出版社，牛津，2007）。[30] C.Meier和D.J.Tannor，强激光场存在下密度算符的非马尔可夫演化，《化学物理杂志》**111**，3365（1999）。[31] C.Duan、Z. Tang、J.Cao 和J.Wu，通过扩展的运动方程层级研究亚欧姆自旋玻色子模型中的零温局域化，《物理评论 B》**95**，214308（2017）。[32] H.-S.Goan、P.-W.Chen 和C.-C.Jian，系统算符的非马尔可夫有限温度双时关联函数：超越量子回归定理，《化学物理杂志》**134**，124112（2011）。[33] D.P.S. McCutcheon，开放量子系统中非马尔可夫行为的光学特征，《物理评论 A》**93**，022119（2016）。[34] D.P.S.McCutcheon 和A.Nazir，超越弱激子–声子耦合区域的量子点拉比旋转，《新物理学杂志》**12**，113042（2010）。[35] J. Frenkel，《波动力学》（牛津大学出版社，牛津，1934）。[36] Y. Zhao、K.Sun、L.Chen 和 M.Gelin，Davydov 试探法的层级及其应用，《WIREs 计算与分子科学》**12**，e1589（2022）。[37] H. Wang、M. Thoss和W.H.Miller，复杂系统动力学混合方法中的系统性收敛：一种数值精确的方法论，《化学物理杂志》**115**，2979（2001）。[38]J. Sun、B. Luo 和 Y. Zhao，采用Davydov 拟设的一维 Holstein 极化子动力学，《物理评论 B》**82**，014305（2010）。[39] R. Martinazzo 和I.Burghardt，变分量子动力学中的局域时间误差，《物理评论快报》**124**，150601（2020）。[40] Y.Yan、L.Chen、J. Luo和 Y.Zhao，受驱动量子比特时间依赖荧光的变分方法，《物理评论 A》**102**，023714（2020）。[41] X. Cao、J.Q.You、H.Zheng和F.Nori，强耦合于共振腔的量子比特：超越旋转波近似的自发发射光谱不对称性，《新物理学杂志》**13**，073002（2011）。[42] C. Cohen-Tannoudji、J. Dupont-Roc和G. Grynberg，原子-光子相互作用：基本过程及其应用（Wiley-VCH，魏因海姆，2004）。[43] Y.Tanimura，开放量子动力学的数值“精确”方法：层级运动方程（HEOM），《化学物理杂志》**153**，020901（2020）。[44] J. Moix、J.Ma和J.Cao，多色团体系中的 Förster共振能量转移、吸收和发射谱。III. 精确随机路径积分求值，《化学物理杂志》**142**，094107（2015）。[45] B.Xiang 和 W.Xiong，分子振动极化激元：其在新型化学与量子技术中的动力学和潜力，《化学物理杂志》**155**，050901（2021）。[46] G. Engelhardt 和 J. Cao，微腔中无序极化激元的异常动力学性质，《物理评论 B》**105**，064205（2022）。