无序费米子狄克模型中准粒子的局域化与谱

Sebastian Stumper[1] 和 Junichi Okamoto[1,2]
[1] *Institute of Physics, University of Freiburg, Hermann-Herder-Str. 3, 79104 Freiburg, Germany*
[2] *EUCOR Centre for Quantum Science and Quantum Computing, University of Freiburg, Hermann-Herder-Str. 3, 79104 Freiburg, Germany*
(日期：2023年5月4日)

我们研究了一种费米子双能带模型，其中带间跃迁与腔共振耦合。该模型近期被提出用于解释腔增强电荷输运，但对封闭系统的全面表征，尤其是各种激发的局域化，仍然缺乏。在这项工作中，我们采用精确对角化，根据不同填充因子和可变无序度，通过系统的谱对其进行表征。与 Dicke 模型一样，有效光-物质耦合随系统尺寸的平方根增长。然而，还存在一个随掺杂密度增加而减小的额外因子。当有效光-物质耦合大于电子带宽时，系统便从弱耦合区转变到强耦合区。在此，激子-极化激元的形成伴随着束缚激子的形成。即使没有无序，光子谱函数在极化激元之间的带隙内态上也呈现显著权重。最后，虽然强耦合可以解除无序系统中电子-空穴激发的局域化，但自由电荷并非如此；即使在强耦合乃至超强耦合下，它们仍保持局域化。基于这一发现，我们讨论了电荷输运的可能情形。

arXiv:2305.01664v1 [physics.comp-ph] 2 May 2023

I. 引言

光与物质之间的强耦合和超强耦合为化学和物理学开辟了新的研究途径 [1–4]。在这些耦合区间内，各种基本的物质激发可以与光子杂化，形成所谓的极化激元，从而改变物理系统的基本性质。例如，极化子-光子耦合可以改变化学反应路径，并增强或降低反应速率 [5–8]。在激子-极化激元系统中，已经观察到了玻色-爱因斯坦凝聚和激光发射 [9–13]。其他潜在应用还包括量子信息处理 [14, 15]和材料工程 [16–21]。这种物理平台并不局限于光学腔。在电路量子电动力学 [22]或等离激元量子电动力学 [23–26]中，也可以实现类似的效应。

其应用之一是调控有机材料中的输运过程。例如，强光-物质耦合能够增强能量转移过程 [27–30]。其基本机制目前已得到充分理解，即通过腔介导的激子长程跃迁实现这一效果 [31–35]。Ebbesen课题组的实验在调控电荷输运方面取得了重要进展 [36, 37]。在这些实验中，表面等离激元与有机半导体（包括 n 型和 p 型）之间的强耦合增强了电导率。由于有机半导体中的电子通常受到较强的静态无序和动态无序的影响，其迁移率被认为源于非相干扩散输运 [38–41]。电导率的增强表明存在一种新型输运机制，因为类似于激子情况下的有效长程跃迁是不可能实现的 [42]。因此，理解其微观过程是一个重要的研究课题。

截至目前，一些理论研究已经表明，强光-物质耦合能够增强电子输运。在文献 [43, 44], 中，研究者描述了一种机制：耦合通过另一条能带开辟了额外的输运通道。同时，源极和漏极的作用也得到了强调。关于该实验的原始论文认为，由于激子与等离激元之间存在强杂化，电子波函数发生了离域，这可能增强了电子电导率 [36]。然而，这种离域背后的机制仍是一个悬而未决的问题。后续研究考察了给体向受体的电荷转移速率 [45], 或同类型分子之间的电荷转移速率 [42]。

在本文中，我们研究与腔模强耦合的无序双能带电子，以阐明激发谱、局域化与迁移率之间的关系。通过精确对角化，我们首先计算模型的能谱，并阐明旋波近似（RWA）、电子填充和无序的影响。我们表明，尽管半填充时的谱与 Dicke 模型一样，依赖于光-物质耦合 g through $\tilde{g} = g\sqrt{L}$ ，但掺杂会改变其标度形式。

根据光-物质耦合强度的不同，系统存在多种区间。在弱耦合下 $\tilde{g}$，只有少数本征态具有显著的光子含量。随着 $\tilde{g}$ 增大，在某个中间点 $\tilde{g}^{\mathrm{macro}}$，腔激发由宏观数量的态共享。略过此点后不久，腔介导的电子-空穴吸引会促使激子的形成。随后，强耦合区的阈值 $\tilde{g}^{\mathrm{pol}}{}_{\mathrm{th}}$ 由明确的激子-极化激元态的形成所标志；当有效耦合 $\tilde{g}$ 大于能带宽度 W 时，便会达到这一阈值。旋波近似（RWA）能够描述所有这些效应。在超强耦合区 $\tilde{g} \gtrsim \tilde{g}^{\mathrm{US}}_{\mathrm{th}}$，旋波近似失效，不同光子数的态之间的混合变得至关重要。在超强耦合区深处，存在一个向.....的转变

超辐射相。对于有机半导体的现实参数，这些能量尺度满足

$$\tilde{g}^{\mathrm{macro}} < \tilde{g}_{\mathrm{th}}^{\mathrm{pol}} \ll \tilde{g}_{\mathrm{th}}^{\mathrm{US}} \ll \tilde{g}_{\mathrm{c}}^{\mathrm{SR}}. \tag{1}$$

我们主要关注远低于 $\tilde{g}_{\mathrm{c}}^{\mathrm{SR}}$ 时的强耦合和超强耦合区间，因为模型中未包含的项可能会阻止超辐射相的出现 [46–49]。

我们进一步研究广义逆参与率，它能够量化不同类型准粒子的局域化。研究表明，局域化的电荷，即电子和空穴，在与腔模耦合后仍保持局域化，其输运行为受到的影响微乎其微。相比之下，无序导致局域化的电子-空穴激发可因光-物质耦合而离域，这一点也已在先前的研究中得到证明 [31, 32]。因此，我们认为，电导率的提升是通过激子-极化激元的形成实现的，并推测电极处激子的解离发挥着重要作用。

本文其余部分安排如下。第二节介绍模型并说明希尔伯特空间的结构，同时简要讨论所采用的方法。第三节展示模型的能谱，并比较旋波近似、无序和掺杂的各种影响。第四节讨论各种激发的局域态密度，并详细阐述激子和激子-极化激元的形成。第五节通过逆参与率讨论强耦合下电子和激子的局域化性质。第六节总结全文。

II. 模型

作为一维有机半导体与腔光子或表面等离激元耦合的模型，我们考虑以下哈密顿量

$$H = H_{\mathrm{el}} + H_{\mathrm{cav}} + H_{\text{el-cav}}, \tag{2}$$

它由纯电子部分、玻色子部分和相互作用项组成，分别定义为

$$H_{\mathrm{el}} = -\sum_{\nu,r} J_{\nu,r}\left(c_{\nu,r}^{\dagger}c_{\nu,r+1} + c_{\nu,r+1}^{\dagger}c_{\nu,r}\right) + \sum_{\nu,r}\epsilon_{\nu,r}n_{\nu,r} \tag{3a}$$

$$H_{\mathrm{cav}} = \omega_{\mathrm{c}} a^{\dagger}a \tag{3b}$$

$$H_{\text{el-cav}} = g(a + a^{\dagger})\sum_{r}\left[c_{2,r}^{\dagger}c_{1,r} + c_{1,r}^{\dagger}c_{2,r}\right], \tag{3c}$$

并示意性地显示在图 1 中。这些标签分别表示晶格位点（$r = 1, \ldots, L$）、下分子轨道和上分子轨道（$\nu = 1,2$），以及腔（c）。由于静态无序，电子的跃迁项和现场项可能依赖于格点，即 $J_{\nu,r} = J_{\nu} + \delta J_{\nu,r}$ 和 $\epsilon_{\nu,r} = \epsilon_{\nu} + \delta\epsilon_{\nu,r}$。我们

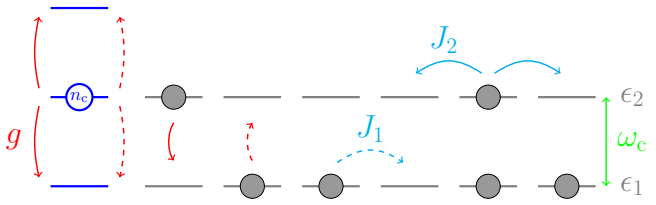


图 1. 模型示意图，显示腔能级（左侧，蓝色）和平均局域电子能级（右侧，灰色）；腔频率 ω_{c} 与电子能隙 $\epsilon_2 - \epsilon_1$ 共振。两条能带的跃迁强度 $J_{1,\ 2}$不同，而光-物质耦合 g 可诱发电子-空穴激发的产生（红色虚线箭头）或湮灭（红色实线箭头）。

将腔频率固定为与平均分子激发能 $\omega_{\mathrm{c}} = \epsilon_2 - \epsilon_1$ 共振。注意，电子是无自旋的，因为在下文考虑的填充下，即使是不同种类电子之间的位点内相互作用效应也不重要。

该模型是 Dicke 模型的费米子推广，其中每个晶格位点有四种态，而非两种，包括双占据和完全未占据的分子 [44]。因此，希尔伯特空间 $\mathcal{H}$ 可根据总电子数 $0 \le N \le 2L$分块对角化；总电子数由哈密顿量守恒，即 $\mathcal{H} = \bigoplus_N \mathcal{H}_N$。与 Dicke 模型的类比在半填充情形 $N = L$下最为明显，此时 $g = 0$ 的电子基态由完全占据的下轨道和空的上轨道组成。在其他所有扇区 $\mathcal{H}_{N\neq L}$中，任意态都包含双占据或空分子。这些分子可视为携带一个导带电子或一个空穴。本文主要考察电子数为 $N = L-1,\ L,\ L+1$的情况，即未掺杂、单电子或单空穴态。

这些扇区均可用激发总数 $M = n_{\mathrm{c}} + n_{\mathrm{exc}}$来表征，其中 n_{c} 表示光子数，n_{exc} 表示激发电子数。对于 $N \le L$，后者等于上轨道中的电子数，即 $n_{\mathrm{exc}} = \sum_r \langle c_{2,r}^{\dagger}c_{2,r}\rangle \le N$；而对于 $N \ge L$，则由空穴数或未占据的下轨道数给出，即 $n_{\mathrm{exc}} = \sum_r \langle c_{1,r}c_{1,r}^{\dagger}\rangle \le 2L - N$。

虽然哈密顿量不守恒 M，但它守恒宇称 M（模 2），这对应于$\mathbb{Z}_2$ 对称性，其变换形式为

$$a \leftrightarrow -a, \qquad c_{\nu,j} \leftrightarrow -c_{\nu,j}. \tag{4}$$

然而，若采用旋波近似，式 3c 中的耦合哈密顿量可简化为

$$H_{\text{el-cav}}^{\mathrm{RWA}} = g\sum_{r}\left[ac_{2,r}^{\dagger}c_{1,r} + a^{\dagger}c_{1,r}^{\dagger}c_{2,r}\right], \tag{5}$$

并且 M 守恒。省略的项是反旋转项，它们耦合不同的M扇区。

本文始终将模型参数选为符合实验相关有机材料 [36] 实际情况的数值。以上能带中的平均跃迁 J_2 为单位，我们取 $J_1 = -J_2/2$，这是一种临时选择，用以反映上轨道之间的跃迁通常比下轨道 [38]之间更不对称的情况。这些参数与无序和退相干项共同决定电荷迁移率。此外，有机半导体中的主导能量尺度是带隙，其大小是带宽的十到一百倍。我们选择较窄能带的中心与腔模共振，即 $\epsilon_2 - \epsilon_1 = \omega_c = 66J_2$。在文献 [36], 的输运实验中，该带隙约为2eV，从而抑制了电荷的热激发。

对于无序情形，我们采用参考文献 [36] 所建议的正态分布随机变量 $\delta J_{2,r} \sim \mathcal{N}(0.2J_2)$, $\delta J_{1,r} \sim \mathcal{N}(0.5J_2)$,$\delta\epsilon_{2,r} \sim \mathcal{N}(3J_2)$, $\delta\epsilon_{2,r} \sim \mathcal{N}(5J_2)$。这里， $\mathcal{N}(\sigma)$ 是方差为 σ 的正态分布。因此，带宽 W 主要由无序决定。与跳跃参数的选择类似，这对应于上能带中较高的迁移率。此外，这确保了较短的局域化长度，从而便于使用精确方法研究小系统中的迁移率。

III. 能量本征态

在本节中，我们研究能谱及其对填充、无序和反旋转项存在与否的依赖。我们将说明，我们的哈密顿量的谱仅通过以下组合依赖于光-物质耦合 g 和系统尺寸 L：

$$\tilde{g} \equiv g\sqrt{L(1-n_{\mathrm{d}})}, \tag{6}$$

其中 $n_{\mathrm{d}} = |(N-L)/L|$ 是掺杂密度，即导带电子或空穴的密度。这种标度形式与 Dicke 模型中的形式相似，其中有效光-物质耦合由 $g\sqrt{L}$给出，尽管局域希尔伯特空间有所不同。简单来说，产生这一标度因子的原因是，只有那些含有一个电子（位于上轨道或下轨道）的分子态才与腔耦合，而双占据态和空态则不会。因此， $L(1-n_{\mathrm{d}})$ 是能够与腔耦合的分子数。

为了进一步证实这一标度行为，考虑单激发扇区（$M=1$）是有益的。在无无序的情况下，电子本征态由平面波给出，$b^\dagger_{\nu,k} = L^{-1/2}\sum_r e^{ikr}c^\dagger_{\nu,r}$。这使得耦合哈密顿量可写为

$$H_{\text{el-cav}} = g(a+a^\dagger)\left(\sum_k b^\dagger_{2,k}b_{1,k} + \text{h.c.}\right). \tag{7}$$

由其产生的模

$$B^\dagger = \sum_k b^\dagger_{2,k}b_{1,k} \tag{8}$$

通常称为亮模，因为它与腔耦合，而与其正交的模则称为暗模。

令 $|\mathrm{G}\rangle = |\mathrm{FS}\rangle \otimes |0\rangle_{\mathrm{c}}$ 表示在 $g=0$ 处的基态，其中 $|\mathrm{FS}\rangle = \prod_{(\nu,k)\in\mathrm{FS}} b^\dagger_{\nu,k}|0\rangle_{\mathrm{el}}$ 是具有给定电子数 N 的费米海，而 $|0\rangle_{\mathrm{el/c}}$ 分别表示电子真空态和腔真空态。态 $B^\dagger|FS\rangle$ 的范数为

$$||B^\dagger|FS\rangle|| = \sqrt{L(1-n_{\mathrm{d}})}. \tag{9}$$

为了将光-物质耦合表示为单激发扇区中正交态之间的 $H_{\text{el-cav}}$ 矩阵元，必须使用

$$\begin{aligned} |B;0\rangle &= \frac{1}{\sqrt{L(1-n_{\mathrm{d}})}} B^\dagger \otimes \mathbb{1}\,|G\rangle\,, \\ |0;1\rangle &= \mathbb{1}\otimes a^\dagger\,|G\rangle \end{aligned} \tag{10}$$

作为具有单个物质激发或单个腔激发的态。因此，矩阵元达到了式（6）中预期的标度因子。

$$\langle 0;1|H_{\text{el-cav}}|B;0\rangle = g\sqrt{L(1-n_{\mathrm{d}})}. \tag{11}$$

当有效耦合 $\tilde{g}$ 显著大于电子带宽 W 时，单激发扇区的本征态可以用上、下极化激元（上极化激元和下极化激元）很好地近似。

$$|P^\pm\rangle \sim |B;0\rangle \pm |0;1\rangle\,, \tag{12}$$

以及暗态。反旋转项会使这些态被更高奇数激发数的成分缀饰（DUP 和 DLP，其中 D 表示“缀饰”）。在我们的模型中，集体激发可视为激子-极化激元；如下所示，激子中的电子和空穴通过腔诱导的吸引相互作用结合。

另一种能够得到如式 (6) 所示标度行为的解析方法，是对腔场进行平均场近似。在这一近似下，当耦合达到某个临界值时，会发生超辐射相变，从而打破式 (4) 的宇称对称性。

$$g_{\mathrm{c}}^{\mathrm{MF,SR}} \sim \frac{1}{\sqrt{L(1-n_{\mathrm{d}})}}. \tag{13}$$

在计算中，我们先取零温极限，再取平带极限。详情见附录A。

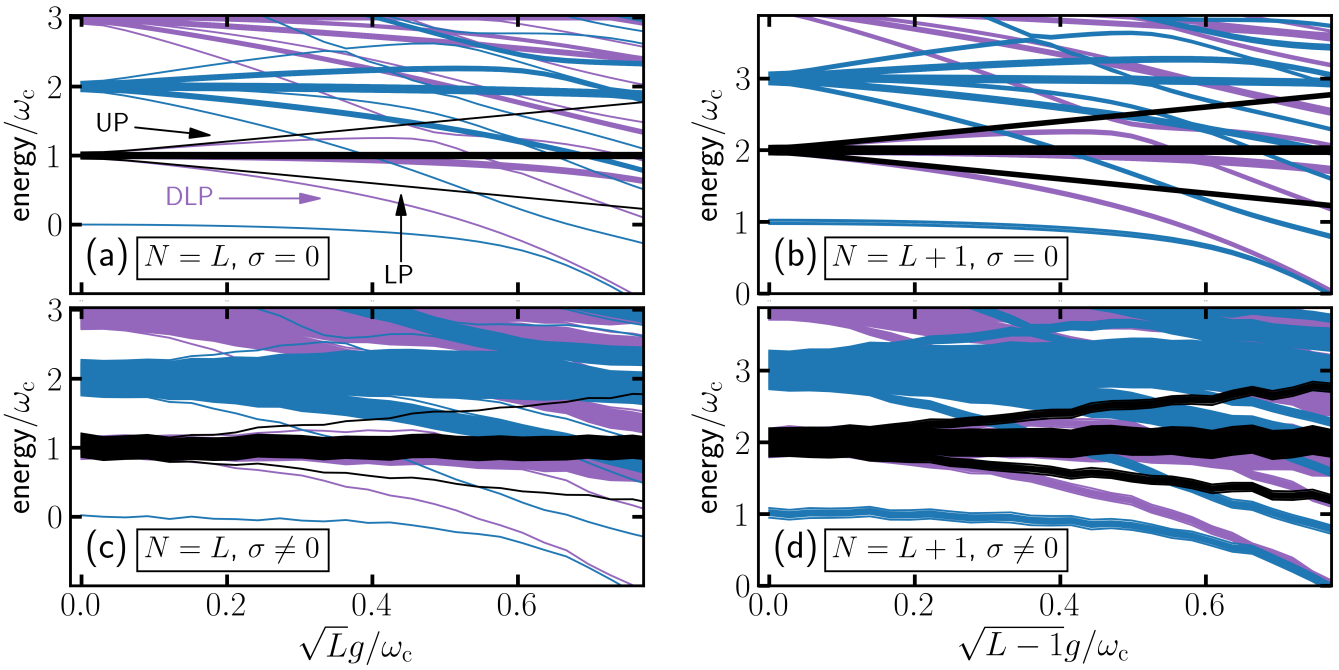


图 2. $L = 6$ 模型的能谱，计算了至多 $M = 8$ 个激发，但图中仅显示至多 $M = 4$ 个激发。比较了半填充 $N = L$ [(a) 和 (c)] 与轻度掺杂情形 $N = L + 1$ [(b) 和 (d)]。上排 [(a) 和 (b)] 显示均匀情形，下排 [(c) 和 (d)] 显示无序平均能谱。颜色表示偶宇称（蓝色）和奇宇称（紫色）扇区。作为比较，图中还用旋波近似（黑色）显示了单激发扇区。图 (a) 中的箭头标示下/上极化激元（下极化激元/上极化激元，LP/UP）以及缀饰下极化激元（DLP）。

A. 全能谱

为了理解光—物质耦合对能级的影响，我们通过精确对角化计算小系统尺寸 $L = 6$ 下的完整谱，使低能部分相对于激发数 M收敛，即使 g 很大也是如此。在这里，我们发现，只需纳入 $M = 8$ 个激发，就足以捕捉反旋转项对最低能态 $\tilde{g} \leq 0.8\omega_c$产生的修正。

最低激发数 $M \leq 4$ 对应的能级相对于经过适当重新缩放的耦合强度绘制于图 2 中。从这些能谱中得出的直接且最重要的结论是，半填充状态 $N = L$ [图 2(a) 和 (c)] 下的均匀模型与无序模型，以及含有一个导带电子的“掺杂”态，即 $N = L + 1$ [图 2(b) 和 (d)]，在定性方面几乎没有差异。

所有情况的共同点是，都存在由有效耦合 $\tilde{g}$ 决定的三个区域。首先，聚焦于单激发扇区（$M = 1$），当 $\tilde{g}$ 大于由带宽决定的阈值时，极化激元态便会出现，

$$\tilde{g} > \tilde{g}_{\rm th}^{\rm pol} \gtrsim W, \tag{14}$$

标志着强耦合区域。不过，从谱线中还无法完全看清这一转变的细节，后续将对此进行更仔细的研究。

第 IV B 节。接下来，对于

$$\tilde{g} \gtrsim \tilde{g}_{\rm th}^{\rm US} \approx 0.2\omega_c, \tag{15}$$

精确能量与旋波近似解 [黑色线条]相比有显著偏差。在这一超强耦合区域，基态和极化激元（ [图 2(a) 中由箭头标出] ）受到高阶激发的显著修饰，这一点将在第 III C 节得到进一步证实。我们注意到，$\tilde{g}_{\rm th}^{\rm US}$对无序量不敏感，而 $\tilde{g}^{\rm pol}{}_{\rm th}$ 则取决于无序强度。此外，如下文所示，在存在无序的情况下，极化激元形成会受到严重的有限尺寸效应影响。因此，当无序极大时，$\tilde{g}^{\rm pol}{}_{\rm th}$ 可能大于 $\tilde{g}_{\rm th}^{\rm US}$。

在 $\tilde{g} \gtrsim \omega_c/2$ 的更强耦合下，具有不同激发数 M 的态会发生能级交叉。不同宇称扇区M(mod2)之间不存在避免交叉，因为它们是宇称对称群的不可约表示。特别是，基态与缀饰下极化激元（DLP）变得近乎简并，这表明即使在 $L = 6$，宇称对称性也已破缺，系统进入超辐射相。事实上，正如我们在附录A中所证明的，平均场近似给出的临界点恰好为$\tilde{g} = \tilde{g}^{\rm MF,c}{}^{\rm SR} = \omega_c/2$。真正的相变自然应出现在更高的 $\tilde{g}$ 值，因为平均场理论往往会高估破缺对称性（大 g-）相的范围。对于

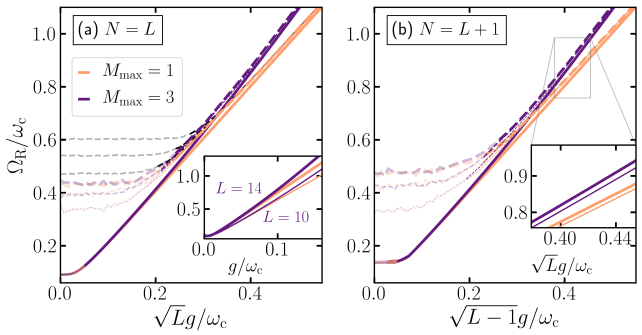


图 3. 未掺杂系统 (a) 和含有单个导带电子的系统 (b) 中，真空拉比劈裂 Ω_R 随重标度后的光-物质耦合变化的关系。图中比较了均匀情形（实线）与无序平均情形（虚线）、旋波近似（橙色）与涉及 $M = 3$ 激发的修正（紫色），以及 $L = 6, 10, 14$（线宽依次增加）。对于采用旋波近似的未掺杂情形，我们还展示了截至 $L = 80$ 的结果（黑色）。

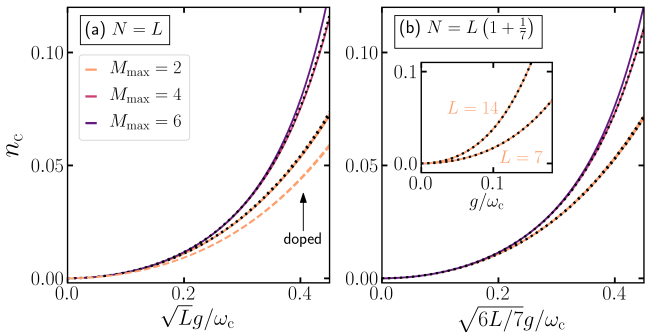


图 4. (a) 未掺杂系统和 (b) 掺杂密度为 $n_d = 1/7$ 的掺杂系统在基态下的腔占据数。为便于比较，(a) 中还展示了一种掺杂情形（虚线）。考虑了高达 $M = 6$ （紫色）的修正，并与 $M = 4,2$（红色、橙色）进行比较。系统尺寸为 $L = 7$ （所有情形）和 $L = 14$ （仅适用于 $M_{\max} = 2$）。黑色点线对应无序情形。(b) 的插图展示了 $M_{\max} = 2$ 随微观耦合强度 g/ω_c 的变化。

本文余下部分将不再聚焦于超辐射相变。一方面，这超出了有机材料所能达到的耦合强度。另一方面，在此机制下，全连接偶极耦合项会变得重要，并可能抑制相变 [48]。

掺杂对谱的主要影响是增加态的数量。基态以及图 2(a) 中箭头所示的极化激元 []被一系列近简并态 L 取代，这些态形成能带 [，见图 2(b)]。所有这些能带的带宽似乎都与 g 无关，我们将在下文第 IV C 节证实这一点。这一观察还表明，导带电子不受光-物质耦合影响。事实上，这一点是合理的，因为双重占据和完全空置的晶格位点不会与腔耦合。

最后，无序平均能谱 [图 2(c) 和 (d)]满足上述相同的所有性质。与均匀情形相比，其差异在于，此时带宽 W 并非由跃迁 J_2 决定，而是由 δJ_2 和 $\delta\epsilon_2$ 的分布宽度决定。如下文所示，无序改变了上极化激元和下极化激元之间态的性质，使得所有这些态都出现在单光子激发谱中。相比之下，在均匀情形下，只有这些态中的一部分与腔耦合。

B. 真空拉比劈裂

为更全面地评估谱随 g 和 L的标度关系，图 3 展示了真空拉比劈裂 Ω_R，即上、下极化激元之间的能量差。我们使用 Lanczos 方法计算 ($M = 1$) 扇区的最低和最高能量。

在弱耦合下，无论是否掺杂，总有一个区域内拉比劈裂看起来保持恒定（图 3 中的模糊线）。这一状态由模型费米子部分能量中最远的离群态决定。在此处，拉比劈裂无法得到恰当定义，因为极化激元与其他能级之间没有明显的分离。我们注意到，在无序情形下，这些离群态之间的能量差的期望值会随系统尺寸增大[，参见图 3(a)]。正如我们将在第 IV B 节看到的，这会对式 (12) 所描述的理想化激子-极化激元形成造成严重的有限尺寸效应。在真实材料中， L 并不对应样品尺寸，而对应激子-极化激元的相干长度。尽管如此，我们的结果表明，较大的静态无序会阻碍激子-极化激元形成。

另一方面，对于足够强的耦合，我们看到无序情形和均匀情形会收敛到相同的轨迹。正如预期的那样，更高激发数的修正会在 $g\sqrt{L}(1 - n_d) \gtrsim \tilde{g}_{\rm th}^{\rm US} \approx 0.2\omega_c$ 附近变得重要，但它们不会影响此处所述的结果。

对不同系统尺寸的比较证实了我们的标度假设。对于 $L = 10$ （细线）和 $L = 14$（粗线），在图 3(a) 中的未掺杂情形下以重标度耦合 $\tilde{g} = g\sqrt{L}$ 为横坐标绘图时，以及在图 3(b) 中含有单个导带电子的情形下以 $\tilde{g} = g\sqrt{L-1}$ 为横坐标绘图时，各条线彼此重合。插图显示，采用其他重标度因子时并非如此。

C. 裸真空的腔内布居

在这里，我们量化了超强耦合区中反旋转项对本征态的修饰作用。我们表明，腔占据数 $n_c =$

$\langle 0|a^\dagger a|0\rangle$ 在图 4 中，其中 $|0\rangle$ 取决于 g。为检查收敛性，对比了 $M = 2$, 4, 6。事实上，直到$\tilde{g} \sim 0.3\omega_c$，考虑到最多$M_{\max} = 2$ 个激发就足够了，而 $M_{\max} = 4$ 则足以达到 $\tilde{g} \sim 0.4\omega_c$。前者对应于基态在 $\tilde{g}$ 中的一阶微扰理论，因此对应于光子数的修正 $\sim \tilde{g}^2$。

无序不会影响基态的光子含量（图 4 中的黑色虚线）。事实上，从非相互作用真空 $|\mathrm{FS}\rangle \otimes |0\rangle$ 到 $(M = 2)$ 扇区的激发能隙约为 $2\omega_c$，即远离共振。因此，分子能级的涨落几乎不会产生影响。与此同时，发生在 $(M = 1)$ 扇区内的共振效应，例如激子-极化激元的形成，则对这些涨落非常敏感。

我们进一步发现，光子数同样与组合 $\tilde{g} = g\sqrt{L(1 - n_d)}$ 成标度关系，因为图 4(a) 中的未掺杂情形与图 4(b) 中 $n_d = 1/7$ 的掺杂情形表现完全一致。这意味着掺杂会降低有效耦合强度 [，参见面板 (a) 中的虚线]。

IV. 局域态密度

到目前为止，我们仅考虑了能量本征值和基态光子数。然而，各种物理激发对这些本征态的贡献并不简单。除了腔光子、传导电子和空穴之外，还存在由公式（8）中的算符产生的亮模以及其他电子-空穴（e-h）激发。为了量化这些贡献，可以定义各种局域态密度（LDOS）。

局域态密度的一般形式源于局域算符A [50]在频域中的自相关函数，

$$\begin{aligned} G_A(\omega + i\gamma) &= -i \int_0^\infty \langle A^\dagger(t) A \rangle \, e^{i(\omega+i\gamma)t} \mathrm{d}t \\ &= -i \int_0^\infty \langle e^{iHt} A^\dagger e^{-iHt} A \rangle \, e^{i(\omega+i\gamma)t} \mathrm{d}t, \end{aligned} \tag{16}$$

其中，我们加入了有限的展宽 γ 以确保收敛。虽然期望值可以相对于任意态取值，但目前基态是一个不错的选择，即 $\langle \ldots \rangle = \langle 0| \ldots |0\rangle$，使得

$$G_A(\omega + i\gamma) = \langle 0|A^\dagger \frac{1}{\omega + i\gamma - H + E_0} A|0\rangle \,, \tag{17}$$

其中，$E_0 = \langle 0|H|0\rangle$ 是基态的能量。LDOS 定义为其虚部，并乘以一个归一化因子，

$$\rho_A(\omega + i\gamma) = -\frac{1}{\pi} \operatorname{Im} G_A(\omega + i\gamma). \tag{18}$$

为了计算局域态密度（LDOS），我们对基态采用 Lanczos 算法，并通过连分数展开来求得态 $(\omega + i\gamma - H + E_0)^{-1} A\,|0\rangle$ 在 $A\,|0\rangle$ [51, 52] 上的投影。

在本节中，我们重点讨论半填充情形，$N = L$。费米子与腔构成的相互作用系统，其基态是缀饰真空 [，见图 4] 。从这一基态出发，我们考察腔的局域态密度（LDOS），

$$\rho^{\mathrm{cav}} = \rho_{a^\dagger} \tag{19}$$

以及格点 j 处电子和空穴的局域态密度，

$$\begin{aligned} \rho_j^{\mathrm{el}} &= \rho_{c^\dagger_{2,j}} \\ \rho_j^{\mathrm{h}} &= \rho_{c_{1,j}} \end{aligned} \tag{20}$$

以及电子-空穴激发的局域态密度，

$$\rho^{\mathrm{eh}}_{j,r} = \rho_{c^\dagger_{2,j+r} c_{1,j}}. \tag{21}$$

电子-空穴激发有两个坐标，我们将其表示为质心（COM） j 和电子-空穴对的相对坐标 r。由于采用周期性边界条件，可以将空穴的位置选作质心，从而简化记号。分别对这两个坐标取迹、消去另一个坐标，可以进一步考察各坐标对应的粗粒化局域态密度，

$$\begin{aligned} \rho_j^{\mathrm{COM}} &= \sum_r \rho^{\mathrm{eh}}_{j,r}, \\ \rho_r^{\mathrm{rel}} &= \sum_j \rho^{\mathrm{eh}}_{j,r}. \end{aligned} \tag{22}$$

最后，我们可以将所有坐标求和，定义电子、空穴和电子-空穴激发的总态密度（DOS），即

$$\begin{aligned} \mathrm{DOS}^{\mathrm{el/h}} &= \sum_j \rho_j^{\mathrm{el/h}} \\ \mathrm{DOS}^{\mathrm{eh}} &= \sum_{j,r} \rho^{\mathrm{eh}}_{j,r}. \end{aligned} \tag{23}$$

我们注意到，这些态密度仍比哈密顿量的总态密度 $D(\omega) = \sum_n \delta(E_n - \omega)$ 更稀疏，其谱为 $\{E_n\}$，因为某些态在式（23）的激发中可能权重很小，甚至没有权重。

A. 光子谱函数

腔的局域态密度 ρ^{cav} 如图 5 所示，分别给出了其作为耦合 $\tilde{g} = g\sqrt{L}$ 和频率 ω 的函数关系：（a）均匀情形；（b）含有最多 $M = 5$ 个激发的无序情形。与本节其余部分一样，此处的展宽 γ 选取得足够小，以便分辨各个态。即使在相对较大的

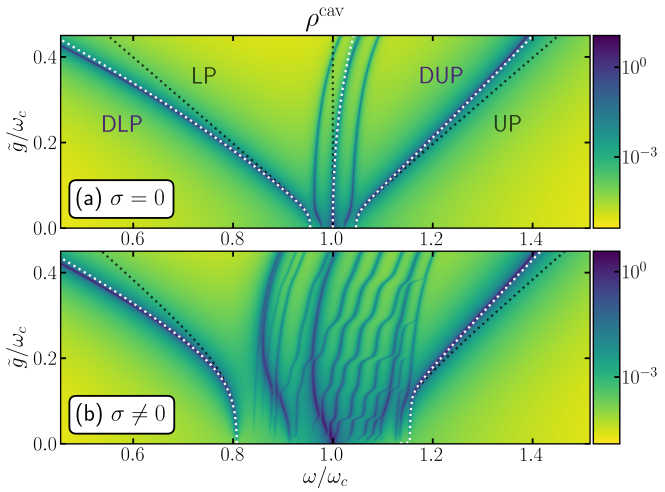


图 5. (a) 均匀情形和 (b) 单个无序实现下的腔局域态密度对数尺度图 $\rho^{\rm cav}$。系统尺寸为 $L = 6$，并计入了多达 $M = 5$ 个激发。白色（灰色）点线分别表示 $M = 3$ （$M = 1$）时缀饰上极化激元和下极化激元的能量，以及面板 (a) 中带隙内态区域的中心。

耦合下，对于 $M = 5$ 和 $M = 3$，下、上极化激元劈裂（白色点线）也非常接近，这表明就 M 而言，相关计算已经收敛。

有趣的是，图 5(a) 中的腔局域态密度表明，即使无序趋于零，仍存在光子含量显著、最高达 $\tilde{g} \sim 0.1\omega_{\rm c}$ 的带隙内态；仅从图 2 的谱中无法看出这一点。这与纯激子模型或自旋二分之一模型（如 Dicke 模型）形成对比：在无序趋于零时，这些带隙内态完全是暗态。这些亮带隙内态的成因在于导带与价带的色散关系并不相同，即 $J_1 \neq J_2$。因此，式 (8) 的亮模算符会产生一组非简并本征态的叠加态 $b^\dagger_{2,\,k} b_{1,\,k} |FS\rangle$，其能量为 $2(J_2 - J_1)\cos(k) + \epsilon_2 - \epsilon_1$。只有在耦合远大于这些能量的展宽时，也就是 $\tilde{g} \gg |J_2 - J_1|$，我们才能像式 (12) 中那样，将极化激元近似描述为单个物质激发。相反，在中等耦合强度下，带隙内态与亮模之间存在显著重叠。

无序系统中 $\rho^{\rm cav}$ 的显著特征是峰的数量更多，如单个无序实现的图 4(b) 所示。事实上，若将亮模算符表示为无序哈密顿量的电子本征态的形式，得到的将是 L^2 的叠加态，而非 L 个态，即

$$B^\dagger = \sum_{n,m} B_{nm} d^\dagger_{2,n} d_{1,m}. \tag{24}$$

这里 $d_{\nu,\,m} = \sum_j U^{(\nu)}_{mr} c_{\nu,\,r}$ 是一个本征态，而下方与上能带由 $B_{nm} = \sum_{r,s} \left(U^{(2}_{\;mr}\right)^\dagger U^{)(1)}_{ns}$ 给出。

原则上，这些激发中的每一种都会对$\rho^{\rm cav}$有所贡献。然而，图 5(b) 中只有 $\sim L$个峰较为显著。我们可以将此理解为安德森局域化的结果：由 $c^\dagger_{\nu,\,r}$ 产生的紧束缚轨道与当前本征态之间存在近似对应关系。按照适当的顺序排列指标后，基变换矩阵的元素呈指数衰减，即 $|U_{mr}| \sim \exp(-\xi|m-r|)$，其局域化长度为 ξ。由于亮模只包含相对距离为 $r = 0$的电子-空穴激发，因此它主要与这类电子和空穴本征态对重叠。图 5(b) 中的结果表明，局域化长度 ξ 约为晶格间距。最后，我们指出，明亮的带隙内态可能与文献 [53]中讨论的半局域暗态有关。

B. 激子态密度和电子-空穴关联

为进一步展开前述分析，我们在图 6(a) 和 (b) 中展示了不同相对距离 r 下、 $\tilde{g} = 0.3\omega_{\rm c}$ 处电子-空穴激发的局域态密度 $\rho^{\rm rel}_r$。在极化激元峰处，非零距离 $r \neq 0$ 明显有所贡献。然而，这些贡献会随 $\rho^{\rm rel}_r \sim e^{-r/\ell}$ 指数衰减，这一点在图 6(a) 中对应均匀情形的极化激元峰处尤为明显。这表明，极化激元形成伴随着激子的形成，而这类激子的特征玻尔半径为 ℓ。此外，图 6(a) 中的旋波近似 [黑线] 仅使峰位发生偏移，却不影响这种指数关系。因此，激子-极化激元形成是一种共振现象。

通过明确考察电子-空穴关联函数，我们使激子形成这一概念更加精确

$$C(r) = \sum_j \langle (1 - n_{1,j}) n_{2,j+r} \rangle \,, \tag{25}$$

见图 6(c)-(e)。如图 6(a) 所证实，我们采用旋波近似，将讨论限制在单激发扇区 ($M = 1$)。这使得即使在系统尺寸较大时 $L \sim 100$，也能进行完整对角化。此外，我们计算了每个所得本征态对应的光子数 $n_{\rm c}$。通过选取 $n_{\rm c}$ 值最大的三个态，我们找出了两个极化激元和一个额外的态，即使它们在能谱中仍不明显。在无序情形下，总有可能出现能量为 $E < E_{\rm LP}$ 或 $E > E_{\rm UP}$ 的离群态。

在图 6(c) 和 (d) 中，我们展示了相对距离为 $r = 0$ 处的电子-空穴关联函数 $C(0)$（绿色线），以及光子数 $n_{\rm c}$ （红色线）和空穴数$n_{\rm h} = \sum_j (1 - n_{1,j})$（黑色线），其中 $n_{\nu,j} = \langle c^\dagger_{\nu,j} c_{\nu,j} \rangle$。通过选择 $N = L$ 的未掺杂子空间，导带电子数等于

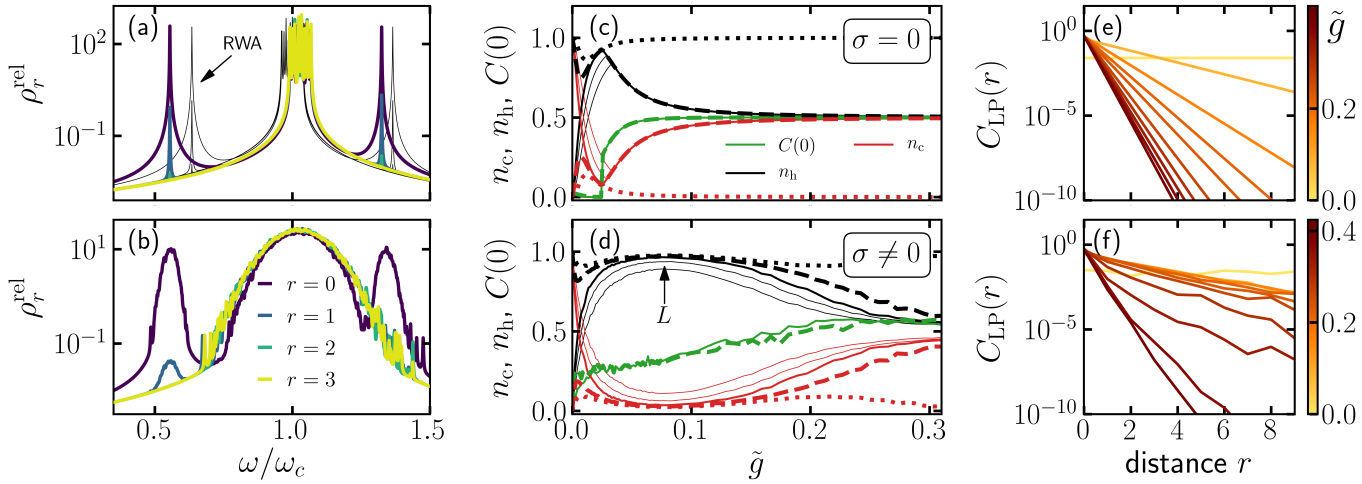


图 6。上方各图 (a)、(c) 和 (e) 显示均匀情形的数据，下方各图 (b)、(d) 和 (f) 显示无序情形的数据。底行的无序平均取自 2000 次实现。左侧各图 [(a) 和 (b)]：相对坐标为 $r = 0$，1，2，3 时的激子局域态密度 ρ_r^{rel}，对应 $\tilde{g}/\omega_c = 0.3$ 和 $N = L = 6$。计算中考虑了至多 $M = 5$ 个激发。细黑线表示 $M = 1$ 时的旋波近似。中间各图 [(c) 和 (d)]：绘出了电子-空穴关联函数 $C(0)$、空穴数 n_h 和光子数 n_c，对应于光子数最多的态（实线）、第二多的态（虚线）和第三多的态（点线）。系统尺寸为 $L = 79$；对于第一个态，还额外显示了 $L = 19$，39（细线）。右侧 [(e) 和 (f)]，显示了第二个态的电子-空穴关联函数 $C(r) = C_{\mathrm{LP}}(r)$，它们随相对坐标 r 的变化情况，参数为 $L = 39$，不同的 $\tilde{g}$ 取值由色条标示。

空穴数 $n_e = n_h$。对 $M = 1$ 的限制意味着$0 \leq n_{e/h} \leq 1$。

在所有情况下，光子数最多的态（实线）都从 $n_c = 1$和 $n_h = 0$ 开始，在 $\tilde{g} = 0$处取值为 $|\mathrm{FS}\rangle \otimes |1\rangle$。与此同时，第二个态（虚线）和第三个态（点线）从 $n_c = 0$ 和 $n_h = 1$开始。如图 6(e) 和 (f) 所示，对于第二个态，空穴与导带电子 [$C(0) \approx 1/L$]在 $\tilde{g} = 0$处不相关。对于均匀情形，这是二体布洛赫态 $b_{2,k}^{\dagger} b_{1,k'} |\mathrm{FS}\rangle$ 的性质；而在无序系统中，这则是对无序实现取平均的结果。至于耦合较大的相反极限，我们发现，第一个态和第二个态可以明确地分别识别为上极化激元和下极化激元，其空穴数和光子数几乎相等（$n_h \approx n_c \approx 1/2$）。此时，电子与空穴几乎完全相关$C(0)/\sqrt{n_h n_e} \approx 1$。在这一强耦合区，相关函数 $C(r)$ 确实呈现指数衰减 [，如预期的那样，其行为与局域态密度 ρ_r^{rel}一致（见图 6(e) 和 (f)], ）。这些在空间上相关的电子和空穴可视为激子。

在这两个极限之间，存在一个过渡区域，其中可观测量的非解析性是均匀情形下能级交叉的明显特征，见图 6(c)。无序平均会抹去这些特征[见图 6(d)]。然而，在这两种情形下，都存在某个耦合强度 $\tilde{g} = \tilde{g}^{\mathrm{macro}} < g^{\mathrm{pol}}{}_{\mathrm{th}}$，此时腔激发几乎均匀地分布在宏观数量的态中；请注意，图中展示了光子数最大的态对应的系统尺寸不断增大（细实线），这表明 $n_c \to 0$, $n_h \to 1$ 对于 $L \to \infty$。这一点是否标志着真正的相变，仍是一个悬而未决的问题。

在后续的极化激元形成区域$\tilde{g}^{\mathrm{macro}} < \tilde{g} \lesssim g^{\mathrm{pol}}{}_{\mathrm{th}}$ 中，光子数和空穴数仍显著低于 1/2的值，但电子-空穴关联函数已接近 1/2。因此，激子形成先于激子-极化激元形成。此外，存在无序时，随着 L 增大，极化激元形成似乎会向更大的耦合值移动，$\tilde{g}^{\mathrm{pol}} = \tilde{g}^{\mathrm{pol}}(L)$。这是电子谱中的离群态所导致的，正如第三节 B 小节中所发现的那样。这两种效应都会在第五节所展示的逆参与率中引发特征。

C. 电子和空穴态密度

除了激子和通过 $H_{\text{el-cav}}$耦合的腔光子之外，人们可能还会好奇腔如何影响单个电子和空穴。在最初关于腔增强电荷输运的实验研究 [36],中，有人提出，在强光-物质耦合作用下，电子态会发生离域化。另一项研究 [43], 提出了一种机制，即空穴的迁移率会由于通过上能带的额外跃迁通道而增加。虽然我们将在下一节讨论前一种观点，但现在我们将在电子和空穴态密度的框架下讨论后一种观点。

均匀系- 统和无序系统中带电自由度的态密度如图 7 所示。电子和空穴带宽的差异分别源于不同的跃迁参数 J_ν 以及随机变量 J_ν 和标准偏-

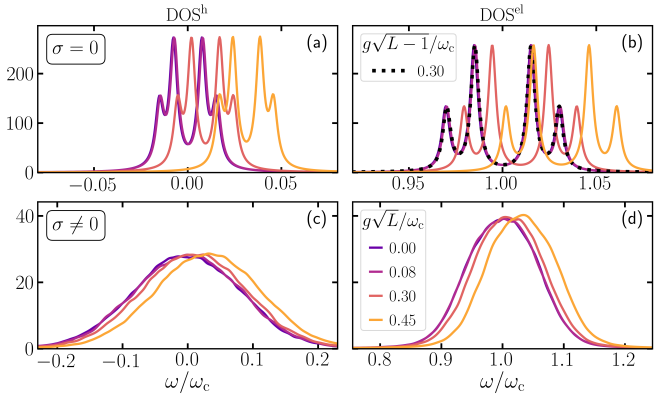


图 7. 在耦合 $\sqrt{L}g$、 $L = 6$ 条件下，激发数最多为 $M = 6$ 时，不同耦合取值对应的空穴（左）和电子（右）态密度。面板 (a) 和 (b) 展示均匀情形，面板 (c) 和 (d) 展示无序情形。黑色虚线表示大耦合强度下的态密度：基态 $|0\rangle$ 是在某个有效值 $\tilde{g} = \sqrt{L}g$下计算的，但计算态密度时使用了重新缩放后的有效值 $\tilde{g}' = \sqrt{L-1}g$。

变量的偏差。光-物质耦合的主要影响是相对于基态的能量位- 移。然而，这完全是因为在计算基态时微观耦合强度 g 相同，此时 $\tilde{g} = g\sqrt{L}$；而计算局域态密度时，微观耦合强度为 $\rho^{\mathrm{el/h}}$，此时由于电荷的影响，$\tilde{g} = g\sqrt{L-1}$。如果适当重新缩放 g，能量位移就会消失； [见图 7(b) 中的黑色虚线]。

更重要的是，带宽不受光-物质耦合的影响。这表明，在当前的封闭系统模型中，电荷迁移率并未增加。我们将在第五节中再次讨论这一点。此外，电子和空穴的带宽受到的影响相同，这意味着空穴的额外跃迁通道在此处并不起作用，这与参考文献 [43] 中研究的开放系统形成对比。

V. 局域化

在从不同自由度激发的角度刻画了本征态之后，我们现在从这些激发的局域化角度讨论传导性质。作为局域化的度量，我们采用基于上述（可能经过粗粒化的）局域态密度定义的广义逆参与率（GIPR） [54] ，

$$G(\omega + i\gamma) = \frac{\sum_j \rho_j(\omega + i\gamma)^2}{\left(\sum_j \rho_j(\omega + i\gamma)\right)^2}. \tag{26}$$

分母确保了归一化，因此可以比较总态密度不同的情形；而分子衡量能量接近 ω 的态在一组局域激发中的分布情况。

局域化的表现是 GIPR 在有限尺寸标度下保持不变。事实上，在完全局域极限下，我们有 $\rho_j \sim \delta_{j,\ j_0}$；而在离域极限下，对于所有 j，我们有 $\rho_j \sim 1/L$ ，假设求和包含 L 项。对于 GIPR，可得

$$G(L) \sim \begin{cases} \text{const.} & \text{(localized)} \\ 1/L & \text{(delocalized/extended)} \end{cases}. \tag{27}$$

如图 8 所示，这里我们考察质心为 j 的电子、空穴和电子-空穴激发，

$$\begin{aligned} G^{\mathrm{el/h}} &= \frac{\sum_j \left(\rho_j^{\mathrm{el/h}}\right)^2}{\left(\mathrm{DOS}^{\mathrm{el/h}}\right)^2} \\ G^{\mathrm{COM}} &= \frac{\sum_j \left(\rho_j^{\mathrm{COM}}\right)^2}{\left(\mathrm{DOS}^{\mathrm{COM}}\right)^2}. \end{aligned} \tag{28}$$

更具体地说，对于电子，我们选择频率为腔频率 $\omega = \omega_c$，这对应于上能带中的态，如图 7(b) 和 (d) 所示的电子态密度所示。类似地，对于空穴，频率为$\omega = 0$。最后，对于电子-空穴激发，我们尤其关注下极化激元。因此，频率的选取取决于耦合强度，即$\omega_{\mathrm{LP}}(\tilde{g})$，该值取自图 5。

此外，展宽 γ需要根据系统尺寸进行调整。参考文献 [54] 针对一个简单模型系统详细阐述了这一问题的微妙之处。根据这些结果，我们为电子和空穴选择了 $\gamma \sim 1/L$ ，为电子-空穴激发选择了 $\gamma \sim 1/L^2$ 。

首先，我们讨论图 8(a) 所示的电子-空穴激发情形。在耦合趋于零时（深紫色），无序会导致局域化，而均匀系统中的激发则是离域的。随着耦合增强，无序的影响逐渐消退（黄色），这些态变为离域态。这一观察结果与先前关于强光-物质耦合下激子迁移率增强的研究一致 [31, 32]。此外，我们发现，旋波近似之外的效应并不起关键作用 [，见图 8(a) 中的圆点]。

此外，在中间耦合强度区间内，对于较小的 L，我们观察到 $G^{\mathrm{COM}}(\omega_{\mathrm{LP}}) \sim 1/L$ ；而当 L较大时，GIPR 会再次增大。这一现象可由图 6(d) 解释：我们发现，激子和激子-极化激元形成（即强耦合区）存在一个依赖于系统尺寸的阈值 $\tilde{g}^{\mathrm{pol}}$ 第(L)；GIPR 随之下降，而 $\tilde{g} > \tilde{g}^{\mathrm{pol}}$ 第(L)。然而，当 $\tilde{g} < \tilde{g}^{\mathrm{pol}}$ 第(L) 时，这一趋势会反转，此时依赖于L的无序很强，系统不再处于强耦合区。

其次，对于单个电荷 [见图 8(b)], ，我们发现强耦合对局域化没有影响。在无序存在的情况下，电子（不透明线）和空穴（透明线）仍保持局域化。电子与空穴的 GIPR 之间仅存在定量差异，这是因为我们在下能带中选择了比上能带更大的无序场。

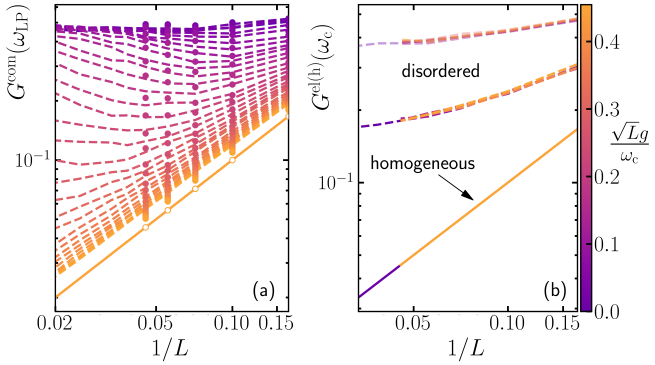


图 8. (a) 图 5 中提取的下极化激元能量 ω_{LP} 处电子-空穴激发质心的 GIPR，以及 (b) 电子（不透明曲线）和空穴（透明曲线）的 GIPR。比较均匀（实线）和无序（虚线）两种情况。(a) 中最多纳入 $M = 3$ 个（圆点）或 $M = 1$ 个（曲线）激发，(b) 中最多纳入 $M = 2$ 个激发。

这一观察与强耦合不影响电子和空穴带宽这一事实一致 [见图 7]。因此，尽管在强耦合下，态可能被光子和激子显著修饰，但局域化（或离域化）的电荷基本不受此类激发的影响。激子修饰唯一可能产生的影响，是泡利原理导致电荷迁移率下降。然而，在我们的模型中，当 L 较大时，这些相互作用变得无关紧要，因为激子密度会随 $1/L$ 增大而降低。

VI. 结论

本文研究了与腔模耦合的无序双能带电子的激发谱与局域化之间的关系。我们证明，该模型与 Dicke 模型十分相似，其中电子掺杂和空穴掺杂会改变能谱的标度形式。向强耦合过渡时，会出现一个特殊点，此时腔激发由宏观数量的本征态共同承担。与先前关于电子波函数离域化的研究结论不同，逆参与率表明电子和空穴仍处于局域化状态。然而，我们还发现，无序导致局域化的激子可以在光-物质耦合作用下离域化；若与电极结合，这可能间接提升电子电导率。我们的结果有助于深入理解强耦合系统的输运行为，并为设计高效固态器件提供了一条潜在途径。

致谢

作者谨向 Jianshu Cao 和 Michael Thoss 致以谢意，感谢他们富有成效的讨论。我们感谢巴登-符腾堡州通过 bwHPC 提供支持，并感谢德国研究基金会（ DFG ）通过资助项目 INST 40/575-1 FUGG（JUS- TUS 2 集群）提供支持。JO 还感谢 Georg H. Endress基金会的支持。

[1] A. Frisk Kockum、A. Miranowicz、S. De Liberato、S. Savasta 和 F. Nori, 《光与物质之间的超强耦合》, Nat. Rev. Phys. **1**, 19 (2019)。[2] M. Hertzog、M. Wang、J. Mony 和 K. B¨orjesson, 《强光-物质相互作用：化学领域的新方向》, Chem. Soc. Rev. **48**, 937 (2019)。[3] F. J. Garcia-Vidal、C. Ciuti 和 T. W. Ebbesen, 《通过与真空场的强耦合操控物质》, Science **373**, eabd0336 (2021)。[4] M. Reitz、C. Sommer 和 C. Genes, 《光-物质平台中的协同量子现象》, PRX Quantum **3**, 010201 (2022)。[5] F. Herrera 和 F. C. Spano, 《分子系综中的腔控化学》, Phys. Rev. Lett. **116**, 238301 2016( )。[6] J. Galego、F. J. Garcia-Vidal 和 J. Feist, 《利用量子化光场抑制光化学反应》, Nat. Commun. **7**, 13841 (2016)。[7] F. Herrera 和 J. Owrutsky, 《利用量子光学控制化学的分子极化激元》, J. Chem. Phys. **152**, 100902 (2020)。[8] K. Nagarajan、A. Thomas 和 T. W. Ebbesen, 《振动强耦合下的化学》, J. Am. Chem. Soc. **143**, 16877 (2021)。

[9] H. Deng、G. Weihs、D. Snoke、J. Bloch 和 Y. Yamamoto, 《半导体微腔中的极化激元激光与光子激光》, 《美国国家科学院院刊》**100**, 15318 2003( ). [10] J. Kasprzak、M. Richard、S. Kundermann、A. Baas、P. Jeambrun、J. M. J. Keeling、F. M. Marchetti、M. H. Szyma´nska、R. Andr´e、J. L. Staehli、V. Savona、P. B. Lit- tlewood、B. Deveaud 和 L. S. Dang, 《激子极化激元的玻色–爱因斯坦凝聚》, 《自然》**443**, 409 (2006). [11] J. Keeling、F. M. Marchetti、M. H. Szyma´nska 和 P. B. Littlewood, 《平面半导体微腔中的集体相干性》, 《半导体科学与技术》**22**, R1 (2007). [12] T. Byrnes、N. Y. Kim 和 Y. Yamamoto, 《激子–极化激元凝聚体》, 《自然·物理》**10**, 803 (2014). [13] M. D. Fraser、S. H¨ofling 和 Y. Yamamoto, 《激子–极化激元激光器的物理学与应用》, 《自然·材料》**15**, 1049 2016( ). [14] D. Sanvitto 和 S. K´ena-Cohen, 《极化激元器件的发展之路》, Nature Mater **15**, 1061 (2016). [15] A. Kavokin、T. C. H. Liew、C. Schneider、P. G. Lagoudakis、S. Klembt 和 S. Hoefling, 《用于经典与量子计算的极化激元凝聚体》, Nat. Rev. Phys. **4**, 435 (2022). [16] C. Ciuti、G. Bastard 和 I. Carusotto, 《腔内子带间极化激元场的量子真空

性质》，物理评论B 72, 115303 (2005). [17] F. P. Laussy、A. V. Kavokin 和 I. A. Shelykh，《激子极化激元介导的超导》，Phys. Rev. Lett. 104, 106402 (2010). [18] B. Kolaric、B. Maes、K. Clays、T. Durt 和 Y. Caudano，《强光-物质耦合作为分子与材料工程的新工具：量子方法》，《先进量子技术》1, 1800001 (2018). [19] N. Bartolo 和 C. Ciuti，《真空修饰的腔内二维电子气磁输运》，物理评论B 98, 205301 (2018). [20] C. Naudet-Baulieu、N. Bartolo、G. Orso 和 C. Ciuti，《腔内半导体异质结构的暗态垂直电导》，《新物理学杂志》21, 093061 (2019). [21] J. Q. Quach、K. E. McGhee、L. Ganzer、D. M. Rouse、B. W. Lovett、E. M. Gauger、J. Keeling、G. Cerullo、D. G. Lidzey 和 T. Virgili，《有机微腔中的超吸收：迈向量子电池》，《科学进展》8, eabk3160 (2022). [22] A. Blais、A. L. Grimsmo、S. M. Girvin 和 A. Wallraff，《电路量子电动力学》，《现代物理评论》93, 025005 2021( ). [23] M. S. Tame、K. R. McEnery、S.. K. ¨Ozdemir、J. Lee、S. A. Maier 和 M. S. Kim，《量子等离激元学》，《自然·物理》9, 329 (2013). [24] P. T¨orm¨a 和 W. L. Barnes，《表面等离激元极化激元与发射体之间的强耦合：综述》，《物理学进展报告》78, 013901 (2014). [25] P. Ginzburg，《腔量子电动力学在等离激元学和超材料中的应用》，《物理评论》1, 120 2016( ). [26] S. I. Bozhevolnyi 和 J. B. Khurgin，《量子等离激元学的必要性》，《自然·光子学》11, 398 (2017). [27] X. Zhong、T. Chervy、S. Wang、J. George、A. Thomas、J. A. Hutchison、E. Devaux、C. Genet 和 T. W. Ebbe- sen，《混合光-物质态介导的非辐射能量转移》，《应用化学国际版》55, 6202 (2016). [28] X. Zhong、T. Chervy、L. Zhang、A. Thomas、J. George、C. Genet、J. A. Hutchison 和 T. W. Ebbesen，《空间分离的纠缠分子之间的能量转移》，《应用化学国际版》56, 9034 (2017). [29] F. J. Garcia-Vidal 和 J. Feist，《能量转移的长距离算符》，Science 357, 1357 (2017). [30] M. Reitz、F. Mineo 和 C. Genes，《腔内供体-受体构型中的能量转移与关联》，《科学报告》8, 9050 (2018). [31] J. Feist 和 F. J. Garcia-Vidal，《强耦合诱导的非凡的激子电导》，Phys. Rev. Lett. 114, 196402 (2015). [32] J. Schachenmayer、C. Genes、E. Tignone 和 G. Pupillo，《腔增强激子输运》，Phys. Rev. Lett. 114, 196403 (2015). [33] N. C. Ch´avez、F. Mattiotti、J. A. M´endez-Berm´udez、F. Borgonovi 和 G. L. Celardo，《长程跃迁下无序增强和无序无关的输运：在光学腔分子链中的应用》，Phys. Rev. Lett. 126, 153201 (2021). [34] C. Sommer、M. Reitz、F. Mineo 和 C. Genes，《致密介观无序系综中的分子极化激元学》，《物理评论研究》3, 033141 (2021). [35] G. Engelhardt 和 J. Cao，《异常动力学性质

微腔中无序极化激元的，Phys. Rev. B 105, 064205 (2022)。[36] E. Orgiu, J. George, J. A. Hutchison, E. Devaux, J. F. Dayen, B. Doudin, F. Stellacci, C. Genet, J. Schachen- mayer, C. Genes, G. Pupillo, P. Samor`ı, and T. W. Ebbe- sen，晶态有机半导体中与真空场杂化的电导率，Nat. Mater. 14, 1123 (2015)。[37] K. Nagarajan, J. George, A. Thomas, E. Devaux, T. Chervy, S. Azzini, K. Joseph, A. Jouaiti, M. W. Hos- seini, A. Kumar, C. Genet, N. Bartolo, C. Ciuti, and T. W. Ebbesen，超强耦合下p型有机半导体的电导率和光电导率，ACS Nano 14, 10219 (2020)。[38] V. Coropceanu, J. Cornil, D. A. da Silva Filho, Y. Olivier, R. Silbey, and J.-L. Br´edas，有机半导体中的电荷输运，Chem. Rev. 107, 926 (2007)。[39] H. B¨assler and A. K¨ohler，有机半导体中的电荷输运，载于 *Unimolecular and Supramolecular Electronics I*，第312卷，R. M. Metzger 编（Springer Berlin Heidelberg，柏林，海德堡，2011），第1–65页。[40] S. Ciuchi, S. Fratini, and D. Mayou，晶态有机半导体中的瞬态局域化，Phys. Rev. B 83, 081202 (2011)。[41] W. Li, J. Ren, and Z. Shuai，具有非局域电子-声子耦合的有机半导体中的一般电荷输运图景，Nat. Commun. 12, 4260 (2021)。[42] M. A. Zeb, P. G. Kirton, and J. Keeling，有机极化激元凝聚态中的非相干电荷输运，Phys. Rev. B 106, 195109 (2022)。[43] D. Hagenm¨uller, J. Schachenmayer, S. Sch¨utz, C. Genes, and G. Pupillo，腔增强输运中的电荷，Phys. Rev. Lett. 119, 223601 (2017)。[44] D. Hagenm¨uller, S. Sch¨utz, J. Schachenmayer, C. Genes, and G. Pupillo，腔辅助费米子介观输运：相干与耗散动力学，Phys. Rev. B 97, 205303 (2018)。[45] D. Wellnitz, G. Pupillo, and J. Schachen mayer，腔中光诱导电子转移的量子光学方法，J. Chem. Phys. 154, 054104 (2021)。[46] I. Bialynicki-Birula and K. Rz.a˙zewski，关于原子系统中超辐射相变的禁戒定理，Phys. Rev. A 19, 301 (1979)。[47] P. Nataf and C. Ciuti，腔量子电动力学中超辐射量子相变的禁戒定理及电路量子电动力学中的反例，Nat. Commun. 1, 72 (2010)。[48] D. De Bernardis, T. Jaako, and P. Rabl，非微扰区间中的腔量子电动力学，Phys. Rev. A 97, 043820 (2018)。[49] P. Pilar, D. D. Bernardis, and P. Rabl，超强耦合光-物质系统的热力学，Quantum 4, 335 (2020)。[50] H. Bruus and K. Flensberg, *Many-Body Quantum Theory in Condensed Matter Physics - an Introduction*（牛津大学出版社，2004）。[51] E. R. Gagliano and C. A. Balseiro，零温量子多体系统的动力学性质，Phys. Rev. Lett. 59, 2999 (1987)。[52] M. Gr¨uning, A. Marini, and X. Gonze，随机相位近似特征值问题的基于兰佐斯的算法的实现与测试，Comp. Mat. Sci. 50, 2148 (2011)。[53] T. Botzung, D. Hagenm¨uller, S. Sch¨utz, J. Dubail,

G. Pupillo, and J. Schachenmayer，腔中量子发射体暗态的半局域化，Phys. Rev. B **102**, 144202 (2020)。

[54] N. C. Murphy、R. Wortis 和 W. A. Atkinson，《广义逆参与率：作为相互作用系统局域化的一种可能度量》，物理评论B **83**, 184206（2011）。[55] K. Hepp 和 E.H. Lieb，《量子化辐射场中分子的超辐射相变：Dicke 微波激射器模型》，物理年鉴 **76**，360（1973）。[

56] Y . K. Wang 和 F . T. Hioe，《超辐射 Dicke 模型中的相变》，物理评论A **7**, 831 (1973).

附录A：平均场理论与超辐射相变

我们的模型可以类比 Dicke 模型建立平均场理论。假设腔处于相干态 $|\alpha\rangle$，其定义为 $a|\alpha\rangle = \alpha|\alpha\rangle$，便可得到一族以参数表示的电子哈密顿量，

$$H(\alpha) = H_{\rm el} + \omega_{\rm c}|\alpha|^2 + g(\alpha+\alpha^*)\sum_r \left[c^\dagger_{2,r}c_{1,r} + c^\dagger_{1,r}c_{2,r}\right], \tag{A1}$$

由此得到相应的 有效配分函数 $Z(\alpha)$ 和自由能 $F(\alpha)$。下文假设 α 为实数。 e 数。

在 Dicke 模型中，超辐射相的定义是光子数随系统尺寸 [55, 56] 的增长速度快于其平方根。因此，引入重标度的序参量以及重标度的耦合强度，

$$\tilde{\alpha} = \frac{\alpha}{\sqrt{L}}, \qquad \tilde{g} = \sqrt{L}g. \tag{A2}$$

临界点 $\tilde{g}_{\rm c}$ 定义为

$$\lim_{L\to\infty} \tilde{\alpha} \begin{cases} = 0 & \text{for } \tilde{g} \le \tilde{g}_{\rm c} \\ > 0 & \text{for } \tilde{g} > \tilde{g}_{\rm c}. \end{cases} \tag{A3}$$

然而，对于当前的费米子模型，用发射体数目替代系统尺寸会更准确，而发射体数目受掺杂影响。因此，我们稍后将引入一个重标度的 α。请注意，重标度前后都可以进行计算。哈密顿量唯一的变化是腔能量的重标度，以及在相互作用项中进行平凡替换 $\alpha g \to \tilde{\alpha}\tilde{g}$。

为简单起见，我们考虑均匀情形，此时电子哈密顿量可由平面波模式对角化，其色散关系为

$$E_{\nu,k} = -2J_\nu \cos(k) + \epsilon_\nu. \tag{A4}$$

In 在这种情况下，平均场哈密顿量分解为各个波数对应的项的直和。 r,

$$H(\alpha) = \omega_{\rm c}\alpha^2 + \sum_k \left(E_{2,k}b^\dagger_{2,k}b_{2,k} + E_{1,k}b^\dagger_{1,k}b_{1,k} + 2g\alpha\left[b^\dagger_{2,k}b_{1,k} + b^\dagger_{1,k}b_{2,k}\right]\right). \tag{A5}$$

本征值为

$$\begin{aligned} E^\pm_k(\alpha) &= \bar{\epsilon}_k \pm K_k(\alpha) \\ &= \frac{E_{2,k}+E_{1,k}}{2} \pm \sqrt{\frac{(E_{2,k}-E_{1,k})^2}{4} + 4g^2\alpha^2} \end{aligned} \tag{A6}$$

表示上能带和下能带的杂化态。为方便后续讨论，我们还引入了

$$\delta_k = \frac{E_{2,k}-E_{1,k}}{2}. \tag{A7}$$

为使推导更具一般性，并将配分函数表示为各个波数和轨道贡献的乘积，我们引入化学势 μ，并在有限温度下采用巨正则系综（零温极限将在后文推导）。因此，配分函数可表示为

$$\begin{aligned} Z(\alpha) &= \mathrm{Tr}\left\{e^{-\beta(H(\alpha)-\mu N)}\right\} \\ &= e^{-\beta\omega_{\rm c}\alpha^2}\prod_k \left(1+e^{-\beta\left(E^+_k(\alpha)-\mu\right)}\right)\left(1+e^{-\beta\left(E^-_k(\alpha)-\mu\right)}\right). \end{aligned} \tag{A8}$$

随后，我们可以将自由能 $F(\alpha) = -\beta^{-1}\ln Z(\alpha)$ 计算为

$$\begin{aligned} F(\alpha) &= \omega_{\mathrm{c}}\alpha^2 - \frac{1}{\beta}\sum_k \ln\left(1 + e^{-\beta\left(E_k^+(\alpha)+E_k^-(\alpha)-2\mu\right)} + e^{-\beta\left(E_k^+(\alpha)-\mu\right)} + e^{-\beta\left(E_k^-(\alpha)-\mu\right)}\right) \\ &= \omega_{\mathrm{c}}\alpha^2 - \frac{1}{\beta}\sum_k \ln\left(2e^{-\beta(\overline{\epsilon}_k-\mu)}\left[\cosh\left(\beta\left(\overline{\epsilon}_k-\mu\right)\right) + \cosh\left(\beta K_k(\alpha)\right)\right]\right), \end{aligned} \tag{A9}$$

其中，我们分别将括号内的前两项和后两项合并为一个双曲余弦，并使用了式 A6 和 A7 中的缩写。

1. 超辐射相变的临界点

临界点的鞍点条件是

$$\left.\frac{\partial}{\partial\alpha}F(\alpha)\right|_{\alpha=0} = 0\,, \qquad \left.\frac{\partial^2}{\partial\alpha^2}F(\alpha)\right|_{\alpha=0} = 0. \tag{A10}$$

要计算这些量，需要求出 $K_k(\alpha)$ 的导数，即即。

$$K_k'(\alpha) = \frac{4g^2\alpha}{K_k(\alpha)}\,, \qquad K_k''(\alpha) = \frac{4g^2}{K_k(\alpha)} - \frac{4g^2\alpha K_k'(\alpha)}{K_k(\alpha)^2}. \tag{A11}$$

在 $\alpha = 0$ 处，这些表达式可简化为

$$K_k'(0) = 0\,, \qquad K_k''(0) = \frac{4g^2}{\delta_k}. \tag{A12}$$

对于在 $\alpha = 0$ 处自由能的一阶导数，情况显而易见，因为 $F'(0) = K_k'(0) = 0$。另一方面，对于二阶导数，我们得到

$$\begin{aligned} 2\omega_{\mathrm{c}} &= \sum_k \frac{K_k''(0)\sinh\left(\beta K_k(0)\right)}{\cosh\left(\beta\left(\overline{\epsilon}_k-\mu\right)\right) + \cosh\left(\beta K_k(0)\right)} \\ &= 4g^2\sum_k \frac{\sinh\left(\beta\delta_k\right)}{\delta_k\left[\cosh\left(\beta\left(\overline{\epsilon}_k-\mu\right)\right) + \cosh\left(\beta\delta_k\right)\right]}, \end{aligned} \tag{A13}$$

其可通过求解得到临界值 g_{c},

$$g_{\mathrm{c}} = \sqrt{\frac{\omega_{\mathrm{c}}}{2}\frac{1}{\sum_k \frac{\sinh(\beta\delta_k)}{\delta_k[\cosh(\beta(\overline{\epsilon}_k-\mu))+\cosh(\beta\delta_k)]}}}. \tag{A14}$$

让我们将这一表达式与 N 个发射体的 Dicke 模型进行比较,

$$H^{\mathrm{Dicke}} = \omega_{\mathrm{c}}\alpha^2 + \sum_{j=1}^{N}\Delta\sigma_j^+\sigma_j^- + 2g\alpha\sum_{j=1}^{N}\left(\sigma^+ + \sigma^-\right), \tag{A15}$$

其平均场临界点位于

$$g_{\mathrm{c}}^{\mathrm{Dicke}} = \sqrt{\frac{\omega_{\mathrm{c}}}{2N}\frac{\frac{\Delta}{2}\cosh\left(\frac{\beta\Delta}{2}\right)}{\sinh\left(\frac{\beta\Delta}{2}\right)}}. \tag{A16}$$

请注意， $g_{\mathrm{c}} \sim \sqrt{N^{-1}}$。如果计算采用公式 A2 中的 $\tilde{\alpha}$ 和 $\tilde{g}$ 进行，那么该相变将与系统尺寸无关。

这两个模型有两个本质区别。首先，Dicke 模型中的所有二能级发射体都简并，其激发能为 Δ；而费米子模型中上能带和下能带的非对称色散

会导致依赖于 k 的激发能 $2\delta_k$。其次，式 A14 分母中的一个额外项通过化学势控制总粒子数。

为了得到一个以总粒子数而非化学势表示的公式，我们考虑零温极限与平带极限相结合的情况。采用平带极限是合理的，因为带隙显著大于带宽，但必须在零温极限之后再取平带极限，否则能带将处于完全占满或完全空置的状态。为了取零温极限，我们比较式 (A14) 中 sinh 和 cosh 的自变量，因为

$$\lim_{\beta\to\infty}\frac{\cosh\left(\beta(\bar{\epsilon}_k-\mu)\right)}{\sinh\left(\beta\delta_k\right)}=\begin{cases}\infty & \text{if } |\bar{\epsilon}_k-\mu|>\delta_k\\ 0 & \text{if } |\bar{\epsilon}_k-\mu|<\delta_k\\ 1 & \text{if } |\bar{\epsilon}_k-\mu|=\delta_k.\end{cases} \tag{A17}$$

忽略最后一种等式情况，式 (A14) 分母中对 k 求和的唯一贡献来自 $|\epsilon_k-\mu|<\delta_k$，其中

$$\lim_{\beta\to\infty}\frac{1}{\frac{\cosh(\beta(\bar{\epsilon}_k-\mu))}{\sinh(\beta\delta_k)}+1}=1. \tag{A18}$$

相应地，式（A14）中的临界耦合可简化为

$$g_{\mathrm{c}}=\sqrt{\frac{\omega_{\mathrm{c}}}{2}\frac{1}{\sum_{k\text{ with }\atop|\bar{\epsilon}_k-\mu|<\delta_k}\frac{1}{\delta_k}}}. \tag{A19}$$

求和中的条件可以展开为

$$|\bar{\epsilon}_k-\mu|<\delta_k\Leftrightarrow\begin{cases}E_{1,k}=\bar{\epsilon}_k-\delta_k<\mu & \text{if } \bar{\epsilon}_k>\mu\\ E_{2,k}=\bar{\epsilon}_k+\delta_k>\mu & \text{if } \bar{\epsilon}_k<\mu.\end{cases} \tag{A20}$$

我们可以看到，化学势必须位于特定波数对应的上、下布洛赫态之间，即下布洛赫态被占据，而上布洛赫态未被占据。因此，求和中有 $L(1-n_{\mathrm{d}})$ 项，其中$n_{\mathrm{d}}=|N-L|/L$ 是正文中定义的掺杂密度。

最后，取平带极限 $E_{\nu,\ k}=E_\nu$，这意味着 $\delta_k=\delta$，由此得到临界耦合的广义标度形式，

$$g_c\approx\sqrt{\frac{\omega_c\delta}{2}\cdot\frac{1}{L(1-n_{\mathrm{d}})}}\quad\xrightarrow[\text{resonance}]{2\delta=\omega_{\mathrm{c}}}\quad\frac{\omega_{\mathrm{c}}}{2}\frac{1}{\sqrt{L(1-n_{\mathrm{d}})}}. \tag{A21}$$

相比之下，Dicke 模型更简单的零温极限为

$$g_c^{\mathrm{Dicke}}=\sqrt{\frac{\omega_c\Delta}{4N}}\quad\xrightarrow[\text{resonance}]{\Delta=\omega_{\mathrm{c}}}\quad\frac{\omega_{\mathrm{c}}}{2}\frac{1}{\sqrt{N}}. \tag{A22}$$

利用式（A2）中重新标度后的耦合强度和序参量，可得到与 L 无关的费米子模型临界点，

$$\tilde{g}_c^{\mathrm{MF,SR}}\approx\sqrt{\frac{\omega_c\delta}{2}\cdot\frac{1}{(1-n_{\mathrm{d}})}} \tag{A23}$$

2. 临界指数 β

通过证明超辐射相变属于同一普适类，可以进一步扩展与 Dicke 模型的对应关系。在此，我们仅计算临界指数 β，该指数将序参量 α 与耦合强度联系起来，适用于 $g>g_{\mathrm{c}}$。通过最小化自由能 $\frac{\partial}{\partial_\alpha}F(\alpha)=0$，我们得到

$$0=\left(\frac{\omega_{\mathrm{c}}}{2}\frac{1}{\sum_k\frac{1}{K_k(\alpha)}\frac{\sinh(\beta K_k(\alpha))}{[\cosh(\beta(\bar{\epsilon}_k-\mu))+\cosh(\beta K_k(\alpha))]}}-g^2\right), \tag{A24}$$

其中，我们代入了方程（A11）中 $K_k(\alpha)$ 的一阶导数。

在这里，我们可以像处理临界点时那样，采用零温极限和平带近似。虽然化学势取决于 α，但粒子数是固定的，因此我们得到与式 (A19) 相同类型的表达式，只需将 δ 替换为 $K(\alpha) = K_k(\alpha)$：

$$\begin{aligned} 0 &= \frac{\omega_{\mathrm{c}}}{2}\frac{K(\alpha)}{L(1-n_{\mathrm{d}})} - g^2 \\ &\approx g_{\mathrm{c}}^2 - g^2 + \frac{2\omega_c}{\delta L(1-n_{\mathrm{d}})}\alpha^2 g^2. \end{aligned} \tag{A25}$$

在第二步中，我们代入了 $K(\alpha)$ 的泰勒展开，

$$K_k(\alpha) \approx \delta_k\left(1 + \frac{4g^2\alpha^2}{\delta_k^2} + \mathcal{O}\left(\left(\frac{4g\alpha}{\delta_k}\right)^4\right)\right) \tag{A26}$$

以及根据公式 (A21) 得到的 $g_{\mathrm{c}}^2 = \omega_c\delta/(2L(1-n_{\mathrm{d}}))$。

由式（A25）可知，在临界点附近， α 的标度为

$$\alpha \sim \sqrt{g^2 - g_{\mathrm{c}}^2} \sim \sqrt{g - g_{\mathrm{c}}}. \tag{A27}$$

因此，我们发现了一个临界指数 $\beta = \frac{1}{2}$，这与 Dicke 模型中的情况相同。