arXiv:2603.01458v1 [physics.chem-ph] 2 Mar 2026

基于记忆核耦合理论的广义量子主方程

Rui-Hao Bi, † Wei Liu, † 和 Wenjie Dou*,†

†西湖大学化学系、理学院和未来产业研究中心，浙江省杭州市 *310024*，中国

‡西湖高等研究院自然科学研究院，浙江省杭州市 *310024*，中国

¶浙江省量子材料重点实验室，西湖大学物理系、理学院和未来产业研究中心，浙江省杭州市 *310024*，中国

电子邮箱：douwenjie@westlake.edu.cn

摘要

广义量子主方程为描述开放量子系统的非马尔可夫动力学提供了强有力的框架。然而，如何准确且高效地计算记忆核仍然是一项挑战。在这项工作中，我们提出了记忆核耦合理论（MKCT）的全面张量扩展，以克服这一瓶颈。通过将原有的标量形式提升为张量框架，扩展后的MKCT能够计算一般的期望值和交叉关联函数。我们在多个基准系统中展示了该方法的数值精度和效率：捕捉自旋-玻色子模型中的瞬态布居和相干性，解析Fenna-Matthews-Olson复合物的激子吸收谱，以及模拟一维

晶格模型中的电荷迁移率。这些成功的应用确立了张量MKCT作为研究开放量子系统复杂动力学的高效工具的地位。

1 引言

化学物理中的许多关键动力学过程——例如电子与能量转移、[1–3] 光谱响应、[4–6] 以及量子输运[7–13]——从根本上都可建模为开放量子系统。[14–16] 要准确模拟这些系统，必须在数值精度与计算可扩展性之间取得微妙的平衡。精确数值方法[17–21] 虽然能够提供可靠的基准，但计算成本仍然很高，因此其适用范围仅限于小型或中型模型。与之相对，为处理更大的系统，人们开发了种类繁多的近似技术，涵盖微扰方法、[22,23] 模耦合理论、[24,25] 半经典方法、[26–28] 以及量子-经典混合动力学。[29–32] 在这些理论框架中，广义量子主方程（GQME）[33–38] 已成为一种尤为强大的工具。当系统的记忆核衰减速度远快于约化系统动力学时，GQME 尤具优势；这一情形在复杂开放量子系统中十分常见。[39–42]

对于广义量子主方程（式 11），计算频率矩阵 $\boldsymbol{\Omega}$ （一阶矩）较为直接，但求取记忆核 $\mathcal{K}(t)$ 仍是一项重大挑战。由于蛮力计算大多局限于简单的模型系统，[43] 实际应用通常依靠无投影输入来近似 $\mathcal{K}(t)$。[38, 44–46] 此外，基于影响泛函的非微扰图解方法也已得到发展。[47] 此外，数据驱动技术——例如转移张量方法（TTM）、[48] 动态模分解，[49,50] 以及机器学习[51]——已成为从有限的短时快照中外推长时间动力学的有力工具。

在此基础上　在这些进展中，我们最近提出了记忆核耦合理论

(MKCT)[41,52,53]，用于高效计算记忆核。MKCT 无需依赖计算量巨大的时间传播，而是通过求解辅助高阶矩与记忆核的耦合方程来确定记忆核。该方法已用于准确计算玻色[41,52] 和费米[41,53] 开放量子系统的关联函数。然而，原始的标量形式仅限于计算自关联函数， C_{AA} (t。它无法计算交叉关联函数， $C_{AB}(t$，也无法求得一般期望值（如态布居和相干性）的时间演化。

本文中，我们展示了如何通过原始MKCT的直接张量扩展来解决这些局限。在第2节，我们概述了这一扩展，它在将矩和记忆核提升为张量量的同时，保留了标量表述的方程结构。第3 节全面介绍了张量MKCT在三个代表性开放量子系统中的应用：自旋-玻色子模型（第3.1节）、FMO复合物（第3.2节），以及两个一维输运模型（第3.3节）。我们在第4节作总结。

2 理论

2.1 初步考虑

让我们考 虑一个由如下哈密顿量描述的开放量子系统 :

$$\hat{H} = \hat{H}_s + \hat{H}_b + \hat{H}_{sb}. \tag{1}$$

^ ^ ^ 这里， H_s 是系统哈密顿量， H_b 是浴哈密顿量， H_{sb} 是系统-热浴相互作用哈密顿量。在海森堡绘景中，系统算符 A 遵循刘维尔方程

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}\hat{A}(t) = \frac{\mathrm{i}}{\hbar}\mathcal{L}\hat{A}(t) = e^{\mathrm{i}\mathcal{L}t}\hat{A}, \tag{2}$$

其中，总刘维尔算符 $\mathcal{L}$定义为

$$\mathcal{L}(\cdot) = (\mathcal{L}_s + \mathcal{L}_b + \mathcal{L}_{sb})(\cdot) = \Big[\hat{H}_s + \hat{H}_b + \hat{H}_{sb}, (\cdot)\Big]. \tag{3}$$

ˆ 我们关注算符 A 的量子动力学，其特征由其期望值以及与另一算符 B 的互相关来刻画。在整个工作中，我们假设因子化初始条件 $\hat{\rho}_0 = \hat{\sigma}_0 \otimes \hat{\rho}_b^{\mathrm{eq}}$，其中系统被制备于任意态 $\hat{\sigma}_0$，而热浴最初处于热平衡：$\hat{\rho}_b^{\mathrm{eq}} = e^{-\beta \hat{H}_b}/\mathbf{Tr}\Big[e^{-\beta \hat{H}_b}\Big]$。在此条件下，期望值的演化为

$$\Big\langle \hat{A}(t) \Big\rangle = \mathrm{Tr}\Big[\hat{A}(t)\hat{\rho}_0\Big], \tag{4}$$

而双时关联函数由下式给出

$$C_{AB}(t) = \Big\langle \hat{A}(t)\hat{B}(0) \Big\rangle = \mathrm{Tr}\Big[\hat{A}(t)\hat{B}^\dagger\hat{\rho}_0\Big]. \tag{5}$$

在式（5）中，我们考虑第二个算符在初始时刻取值的特定情形 $t = 0$。

ˆ 我们用一组满足 $\mathbf{Tr}\Big[\hat{\phi}_i\hat{\phi}_j^\dagger\Big] = \delta_{ij}$ 的正交归一基算符$\{\phi_i\}$ 来张成系统的刘维尔空间。利用该基，任意算符 $\hat{A}$ 可展开为

$$\hat{A} = \sum_i \mathrm{Tr}\Big[\hat{A}\hat{\phi}_i^\dagger\Big]\hat{\phi}_i = \sum_i A_i\hat{\phi}_i, \tag{6a}$$

$$\hat{A}^\dagger = A_i^*\hat{\phi}_i^\dagger = \sum_i \mathrm{Tr}\Big[\hat{\phi}_i\hat{A}^\dagger\Big]\hat{\phi}_i^\dagger. \tag{6b}$$

通过应用这一展开，我们可以将式4 表示为：

$$\Big\langle \hat{A}(t) \Big\rangle = \sum_{ij} A_i\mathcal{C}_{ij}(t)\sigma_{0,j}^*. \tag{7}$$

在此，我们引入了矩阵$\boldsymbol{\mathcal{C}}(t)$，其第 i， j个元素定义为

$$\mathcal{C}_{ij}(t) \equiv \mathrm{Tr}\Big[(e^{\mathrm{i}\mathcal{L}t}\hat{\phi}_i)\hat{\phi}_j^{\dagger} \otimes \hat{\rho}_b^{\mathrm{eq}}\Big], \tag{8}$$

这可以解释为基算符之间的自相关函数。[54,55]此外，我们注意到$\boldsymbol{\mathcal{C}}(t)$的定义与先前研究中引入的动力学映射概念密切相关。[48,56] 类似地，关联函数 $C_{AB}(t)$在式5中也可以用$\boldsymbol{\mathcal{C}}(t)$表示为：

$$C_{AB}(t) = \sum_{ij} A_i C_{ij}(t)\, \mathrm{Tr}\Big[\hat{\phi}_j(\hat{B}\hat{\sigma}_0)^{\dagger}\Big]. \tag{9}$$

下面，我们证明$\boldsymbol{\mathcal{C}}(t)$满足广义量子主方程（广义量子主方程）。[37,44,54,55] 首先，我们将投影算符 $\{\boldsymbol{\mathcal{P}}_i\}$ 定义为：

$$\boldsymbol{\mathcal{P}}_i \hat{X} = \hat{\phi}_i(\hat{X}, \hat{\phi}_i) = \hat{\phi}_i\, \mathrm{Tr}\Big[\hat{X}\hat{\phi}_i^{\dagger}\hat{\rho}_b^{\mathrm{eq}}\Big], \tag{10}$$

^ ^ ^其中 X 是复合系统-浴空间中的任意算符，且（X, ϕ_i）表示莫里积。通过对各个投影求和以构成总投影算符$\boldsymbol{\mathcal{P}} \equiv \sum_i \boldsymbol{\mathcal{P}}_i$，我们定义了一个投影，它实质上相对于热平衡态$\hat{\rho}_b^{\mathrm{eq}}$ 对浴自由度取偏迹。如附录A中所详述，算符$\boldsymbol{\mathcal{P}}$ 给出基算符自相关函数的如下广义量子主方程：

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}\boldsymbol{\mathcal{C}}(t) = \boldsymbol{\Omega}\boldsymbol{\mathcal{C}}(t) + \int_0^t \mathrm{d}\tau\, \boldsymbol{\mathcal{K}}(\tau)\boldsymbol{\mathcal{C}}(t-\tau), \tag{11}$$

其中频率矩阵 $\boldsymbol{\Omega}$ 和记忆核$\boldsymbol{\mathcal{K}}$ 定义为

$$\Omega_{ij} \equiv (\mathrm{i}\mathcal{L}\hat{\phi}_i, \hat{\phi}_j), \tag{12}$$

$$\mathcal{K}_{ij}(t) \equiv (\mathrm{i}\mathcal{L}\hat{f}_i(t), \hat{\phi}_j), \tag{13}$$

涨落算符定义为：

$$\hat{f}_i(t) = e^{\mathcal{Q}\mathrm{i}\mathcal{L}t}\mathcal{Q}\mathrm{i}\mathcal{L}\hat{\phi}_i. \tag{14}$$

这里，$\mathcal{Q} = \mathbf{1} - \mathcal{P}$ 是对互补子空间的投影，即浴自由度。

2.2 记忆核耦合理论

在 MKCT 的原始表述中，[41] 我们考察了单个算符 $C_{AA}(t)$ ˆ a 的标量自相关 A。我们发现，通过如下定义高阶矩和记忆核：

$$\Omega_n = ((\mathrm{i}\mathcal{L})^n \hat{A}, \hat{A})(\hat{A}, \hat{A})^{-1}, \tag{15a}$$

$$K_n(t) = ((\mathrm{i}\mathcal{L})^n \hat{f}(t), \hat{A})(\hat{A}, \hat{A})^{-1}, \tag{15b}$$

核 $K_n(t)$ 满足一组初值问题：

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}K_n(t) = K_{n+1}(t) - K_1(t)\Omega_n, \tag{16}$$

其中，初始条件由下式确定

$$K_n(0) = \Omega_{n+1} - \Omega_n\Omega_1. \tag{17}$$

通过适当截断，[41,57] MKCT 方程（式 16）仅利用高阶矩 $K_n(t$所包含的信息，即可得出完整的高阶记忆核层级结构 $\{\Omega_n\}$。

接下来，我们将证明，标量表述的核心思想可以推广为张量核 $\mathcal{K}(t)$ 所满足的相同 MKCT 方程。具体而言，我们

通过各元素定义 n 阶频率矩阵（矩）$\boldsymbol{\Omega}_n$ 和记忆核矩阵 $\boldsymbol{\mathcal{K}}_n(t)$:

$$\Omega_{n,ij} = ((\mathrm{i}\mathcal{L})^n \phi_i, \phi_j), \tag{18}$$

$$\mathcal{K}_{n,ij} = ((\mathrm{i}\mathcal{L})^n \hat{f}_i(t), \phi_j). \tag{19}$$

这里，下标 n, ij 表示 n 阶量的第 (i, j) 个元素。对$\mathcal{K}_{n,ik}$ (t) 取时间导数，得到:

$$\begin{aligned} \frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}\mathcal{K}_{n,ik}(t) &= \left((\mathrm{i}\mathcal{L})^n \left\{ \mathbf{1} - \sum_j \boldsymbol{\mathcal{P}}_j \right\} \mathrm{i}\mathcal{L}\hat{f}_i(t), \hat{\phi}_j \right), \\ &= \mathcal{K}_{n+1,ik}(t) - \sum_j K_{1,ij}(t)\Omega_{n,jk}, \end{aligned} \tag{20}$$

化简为矩阵方程:

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}\boldsymbol{\mathcal{K}}_n(t) = \boldsymbol{\mathcal{K}}_{n+1}(t) - \boldsymbol{K}_1(t)\boldsymbol{\Omega}_n. \tag{21}$$

ˆ ˆAt $t = 0$，将 $f_i(0) = \boldsymbol{\mathcal{Q}}\mathrm{i}\mathcal{L}\phi_i$ 代入矩阵 MKCT 方程 21 ，得到初始条件:

$$\boldsymbol{\mathcal{K}}_n(0) = \boldsymbol{\Omega}_{n+1} - \boldsymbol{\Omega}_n\boldsymbol{\Omega}_1. \tag{22}$$

方程 21 和 22 的方程结构与原标量MKCT表述中的[方程 16 和 17], 相似，只是此时矩和记忆核均为矩阵量。

尽管 MKCT 方程（方程 16和 21）形式简单，求解时仍需谨慎。已知在 n 阶进行简单截断会导致数值不稳定，[41,52,57]此前的研究提出了两种不同的数值策略：一种是动态模态分解（DMD）方法[49,50]，用于外推 $\mathcal{K}(t)$；另一种是基于 Pad´e 逼近的拟合方法[52,53]，用于拟合高阶项。最近提出的一种投影 MKCT 策略展现出系统地收敛标量 MKCT 的潜力。[57] 接下来，我们将扩

展此前针对标量核建立的基于 Pad´é 的方法，将其应用于本文研究的张量核。

Padé´方法利用了记忆核 $\boldsymbol{\mathcal{K}}(t)$ 快速衰减这一事实。因此，采用 ´对 $\boldsymbol{\mathcal{K}}_n(t)$ 的级数展开进行 Padé 逼近，便足以忠实地重现该核。[52] 通过计算 $\boldsymbol{\mathcal{K}}_n(t)$ 在 $t = 0$处各阶时间导数来构造该级数展开，这些导数通过以下方程迭代求得：

$$\begin{aligned}\frac{\mathrm{d}^m}{\mathrm{d}t^m}\mathcal{K}_{n,ik}(0) &= \left((\mathrm{i}\mathcal{L})^n\left\{\mathbf{1}-\sum_j \boldsymbol{\mathcal{P}}_j\right\}\mathrm{i}\mathcal{L}(\boldsymbol{\mathcal{Q}}\mathrm{i}\mathcal{L})^m\hat{\phi}_i,\hat{\phi}_k\right),\\ &= \frac{\mathrm{d}^{m-1}}{\mathrm{d}t^{m-1}}\mathcal{K}_{n+1,ik}(0)-\sum_j \tilde{\Omega}_{m,ij}\Omega_{n,jk}.\end{aligned} \tag{23}$$

˜这里，我们引入辅助量$\boldsymbol{\Omega}_m$，定义为

$$\tilde{\Omega}_{m,ij} = (\mathrm{i}\mathcal{L}(\boldsymbol{\mathcal{Q}}\mathrm{i}\mathcal{L})^m\hat{\phi}_i,\hat{\phi}_j). \tag{24}$$

˜辅助量 $\boldsymbol{\Omega}_m$ 在展开时自身也满足一个递归关系：

$$\begin{aligned}\tilde{\Omega}_{m,ij} &= \left(\mathrm{i}\mathcal{L}\left\{\mathbf{1}-\sum_j \boldsymbol{\mathcal{P}}_j\right\}\mathrm{i}\mathcal{L}(\boldsymbol{\mathcal{Q}}\mathrm{i}\mathcal{L})^{m-1}\hat{\phi}_i,\hat{\phi}_k\right),\\ &= ((\mathrm{i}\mathcal{L})^2(\boldsymbol{\mathcal{Q}}\mathrm{i}\mathcal{L})^{m-1}\hat{\phi}_i,\hat{\phi}_j)-\sum_j \tilde{\Omega}_{m-1,ij}\Omega_{1,jk}.\end{aligned} \tag{25}$$

通过迭代展开这些递归关系（方程23 和25），我们将$\mathrm{d}^m\ \mathrm{d}t^m\boldsymbol{\mathcal{K}}_n(0)$˜和$\boldsymbol{\Omega}_n$ 都表示为仅由高阶矩 $\{\boldsymbol{\Omega}_n\}$决定的形式：

$$\frac{\mathrm{d}^m}{\mathrm{d}t^m}\boldsymbol{\mathcal{K}}_n(0) = \boldsymbol{\Omega}_{m+n+1}-\boldsymbol{\Omega}_{m+n}\tilde{\boldsymbol{\Omega}}_0-\cdots-\tilde{\boldsymbol{\Omega}}_m\boldsymbol{\Omega}_n, \tag{26}$$

$$\tilde{\boldsymbol{\Omega}}_n = \boldsymbol{\Omega}_{m+1}-\tilde{\boldsymbol{\Omega}}_0\boldsymbol{\Omega}_m-\cdots-\tilde{\boldsymbol{\Omega}}_{m-1}\boldsymbol{\Omega}_1. \tag{27}$$

方程 26 和 27 使我们能够计算 $\boldsymbol{\mathcal{K}}_n(t)$ 在 $t = 0$ 处任意阶的时间导数

。逐元素应用 Padé 近似法，可以得到$\boldsymbol{\mathcal{K}}_n(t)$ 的近似。将此结果代入层级方程，即可在第 $(n-1)$ 阶截断 MKCT。

MKCT 的张量扩展成功解决了其标量前身的一些局限性。原始 MKCT 形式体系无法用于预测一般期望值和互相关函数，而张量框架则可得出完整的基关联矩阵 $\boldsymbol{\mathcal{C}}(t)$。该综合矩阵可直接获取 $\langle A(t)\rangle$和 $C_{AB}(t)$，分别由方程4 和 9给出（如第 3.1 节和第 3.3节所示）。

3 数值示例

本节将评估第 2.2 节介绍的张量型 MKCT 方法的性能。除非另有说明，我们采用欧姆谱密度来描述系统-浴相互作用：

$$J(\omega) = \pi \frac{\lambda}{\omega_C} \omega e^{-\omega/\omega_C} \tag{28}$$

其中 λ 是重组能，ω_C 是截断频率。自旋-玻色子模型（第$\boldsymbol{\Omega}_n$ 3.1节）和紧束缚模型（第 3.3节）的矩，使用参考文献[52] 中的精确符号方法计算。FMO 光谱（第 3.2节）和 Holstein模型（第 3.3节）的矩，则通过海森堡绘景耗散子运动方程（DEOM）方法获得。[21,41] 在 DEOM 模拟中，与欧姆谱密度对应的浴关联函数通过时域 Prony[58]和 ESPRIT[59] 方法分解，具体实现见 `QuTiP 5` 软件包。[60]

3.1 自旋-玻色子模型

考虑由以下哈密顿量定义的自旋-玻色子模型:

$$\hat{H} = \frac{\omega_s}{2}\hat{\sigma}_z + \Omega\hat{\sigma}_x + \hat{\sigma}_z \sum_j c_j \hat{q}_j + \sum_j \frac{\omega_j}{2}(\hat{p}_j^2 + \hat{q}_j^2), \tag{29}$$

其中单个谐振子浴通过$\hat{}\sigma_z$ 算符与系统耦合。对于该模型，原始MKCT能够准确计算自相关函数 $C_{AA}(t)$,[41,52]但无法计算互相关函数 $C_{AB}(t)$或一般期望值，例如态布居。

这些局限性由本文引入的张量MKCT所克服。新方法保留了原有步骤：将矩（$\boldsymbol{\Omega}_n$）映射到记忆核（$\boldsymbol{\mathcal{K}}_1(t)$），从而便于直接计算完整的基关联矩阵 $\boldsymbol{C}(t)$，这经由广义量子主方程（式11）实现。各矩阵元与精确基准的比较示于图6 （附录B ），以证明这一扩展的数值保真度。

结合式4，$\boldsymbol{\mathcal{C}}(t)$使我们能够获得精确的布居与相干动力学。例如，从初始态 $\sigma(0) = |0\rangle\langle 0|$出发，图1 表明，由本方法得到的布居和相干性均与DEOM结果吻合良好。此外，同一$\boldsymbol{\mathcal{C}}(t)$可直接给出交叉关联函数 $C_{\sigma_x\sigma_y}(t)$，经由式9。如图2所示，用该方法生成的动力学再次与DEOM的结果完全一致。

3.2 Fenna–Matthews–Olson（FMO）复合物的吸收光谱

原始 MKCT 已成功用于模拟二能级系统的吸收光谱。[41,52] 然而，它尚未应用于多能级系统。为此，我们考虑温和绿硫菌的七格点 FMO复合物，其哈密顿量描述如下:

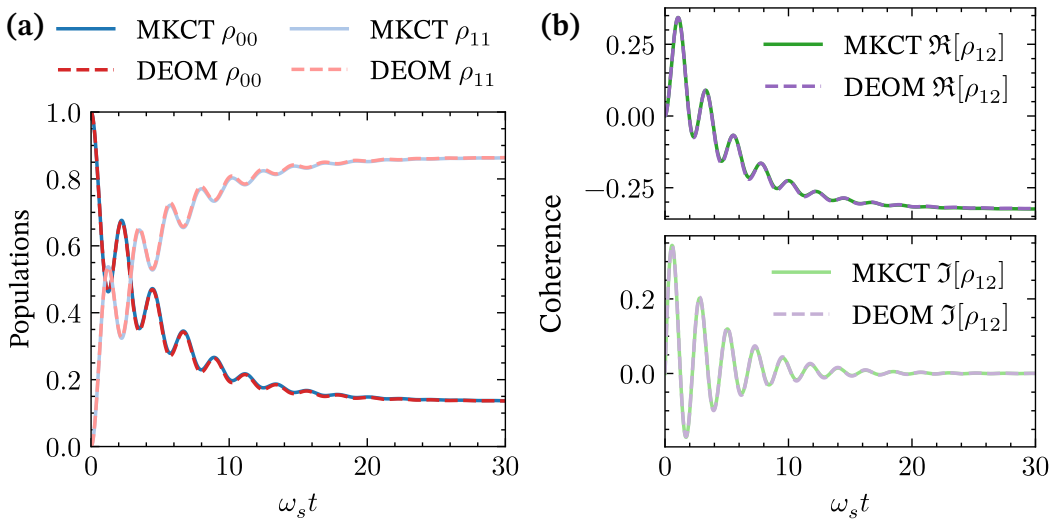

图1：自旋-玻色子模型的约化密度矩阵随时间的演化。面板(a)展示布居动力学，面板(b)展示相干性。模拟参数为 $\omega_s = 2$、$\Omega = 1$, $\beta = 2$, $\lambda = 0.2$ 和 $\omega_C = 5$。采用阶数为 [9/16] 的 Pad´e 逼近来获得记忆核$\mathcal{K}_1(t)$。

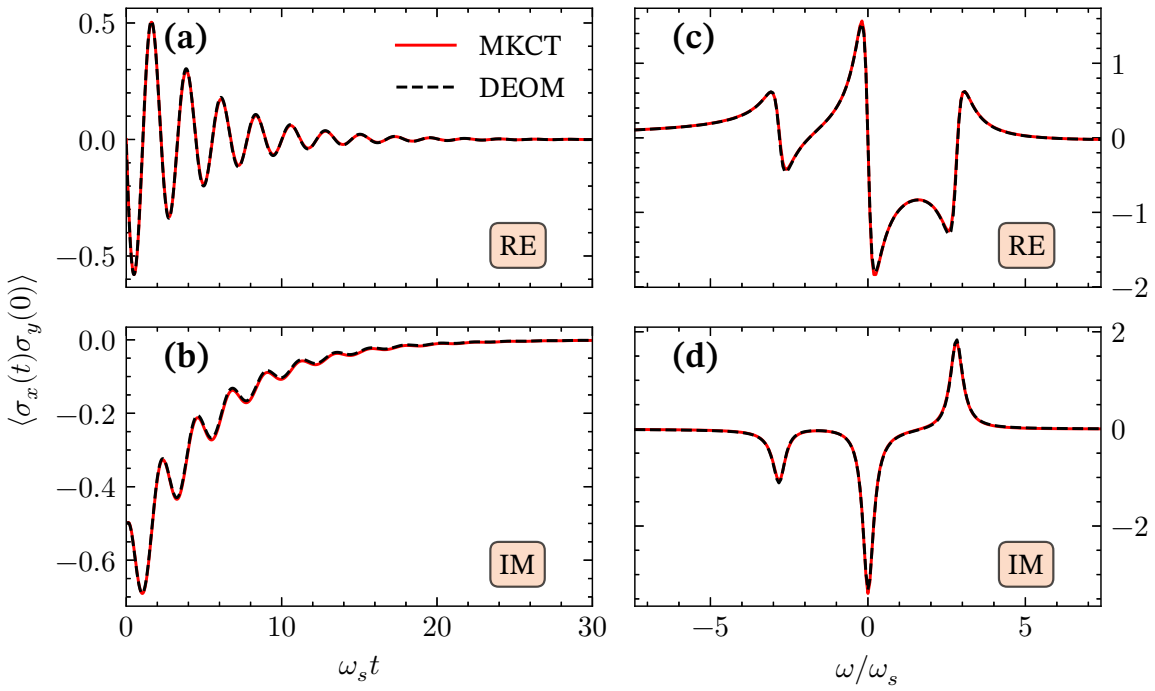

图2：自旋-玻色子模型的交叉关联函数 $\langle\sigma_x(t)\sigma_y(0)\rangle$随时间的演化。面板(a)和(b)分别展示关联函数的实部和虚部。面板(c)和(d)展示谱 $S(\omega)$。模拟参数与图1相同。

.

划分为电子、振动和耦合项：

$$\hat{H}_{\mathrm{mol}} = \hat{H}_{\mathrm{e}} + \hat{H}_{\mathrm{vib}} + \hat{H}_{\text{e-vib}}. \tag{30}$$

电子（激子）部分表示为

$$\hat{H}_{\mathrm{e}} = \sum_{m=1}^{7} \epsilon_m \left|m\right\rangle\!\left\langle m\right| + \sum_{m=0}^{7} \sum_{n<m} J_{mn}(\left|m\right\rangle\!\left\langle n\right| + \left|n\right\rangle\!\left\langle m\right|), \tag{31}$$

其中，位点能量 ϵ_m 和耦合 J_{mn} 取自文献[61] 振动浴 H_{vib}建模为与每个格点相关联的一组相互独立的谐振子：

$$\hat{H}_{\mathrm{vib}} = \sum_{m=1}^{7} \sum_{j} \frac{\omega_j}{2} (\hat{p}_{mj}^2 + \hat{q}_{mj}^2). \tag{32}$$

激子自由度与振动自由度之间的相互作用由线性耦合项描述：

$$\hat{H}_{\text{e-vib}} = \sum_{m=1}^{7} \left|m\right\rangle\!\left\langle m\right| \sum_{j} c_{mj} \hat{q}_{mj}, \tag{33}$$

其中，耦合仅存在于对角线上。我们假设谱密度 J_m（ω）对所有格点均相同，并遵循方程 28 中定义的欧姆形式。

为模拟吸收光谱，我们按如下方式计算偶极自相关函数：

$$C_{\boldsymbol{\mu}\boldsymbol{\mu}}(t) = \mathrm{Tr}\left[\left(e^{\mathrm{i}\mathcal{L}t}\hat{\boldsymbol{\mu}}\right) \cdot \hat{\boldsymbol{\mu}} \left|0\right\rangle\!\left\langle 0\right| \otimes \hat{\rho}_b^{\mathrm{eq}}\right], \tag{34}$$

它与吸收线形 $I(\omega)$ 通过傅里叶变换相关：

$$I(\omega) \propto \mathrm{Re} \int_0^\infty \mathrm{d}t \, C_{\boldsymbol{\mu}\boldsymbol{\mu}}(t) e^{\mathrm{i}\omega t}. \tag{35}$$

我们假设所有七个格点的跃迁偶极矩大小相同

格点：[62,63]

$$\hat{\boldsymbol{\mu}} = \sum_{m=1}^{7} \boldsymbol{e}_m (|0\rangle\langle m| + |m\rangle\langle 0|), \tag{36}$$

其中，假设每个发色团的取向矢量 $\boldsymbol{e}_m$ 均从每个 Bchl a 分子的 B 氮原子指向 D 氮原子。[64]

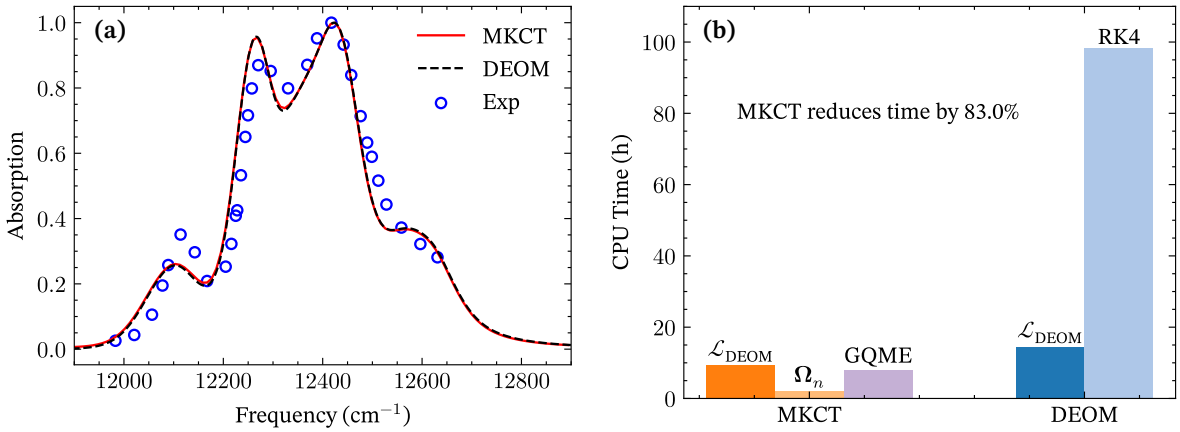

图 3：采用 MKCT 和 DEOM 计算得到的 FMO复合物吸收光谱对比。面板 (a) 显示了 MKCT（红色实线）和 DEOM（黑色虚线）得到的光谱，以及文献 [61] 中的实验光谱（黑色空心圆）。面板 (b) 对比了 MKCT 和 DEOM 在 AMD EPYC 7502 处理器上所需的 CPU 时间。所用参数为 $T = 77\,\mathrm{K}$、$\lambda = 35\mathrm{cm}^{-1}$ 和 $\omega_C = 50\,\mathrm{fs}^{-1}$。使用了阶数为 [7/13] 的 Pad´e 近似。

根据文献，[62] 通过假设独立的位点能量涨落（半峰全宽（FWHM）为 100 cm）来纳入静态无序[−1]。最终的吸收光谱通过对 1000 个随机样本取平均得到。如图3(a)所示，张量MKCT 预测的吸收线形与 DEOM 参考结果完全一致；两者均与实验数据定性吻合。平均时间关联函数 $C_{\boldsymbol{\mu}\boldsymbol{\mu}}(t)$见附录7 中的图C。

值得注意的是，图 3(b) 显示，与 DEOM 相比，MKCT 模拟所需的 CPU 时间减少了 80%。这种效率源于两者数值方法的差异：DEOM 需要传播耗散子密度算符，直到 $C_{\boldsymbol{\mu}\boldsymbol{\mu}}(t)$ 衰减，而 MKCT 只需利用 DEOM 李乌维尔算符计算少数几个矩 $\mathcal{L}_{\mathrm{DEOM}}$。随后，通过快速 Pad´é 近似，这些矩可得到记忆核，从而使相关

矩阵 $\boldsymbol{\mathcal{C}}(t)$ 能够通过量子主方程在频域中高效计算。

3.3 一维链模型中的输运性质

到目前为止，我们已在第3.1 节和3.2节证明，张量型 MKCT 框架能够有效地描述多能级开放量子系统的一般期望值及其谱特征。为进一步评估该方法的通用性，我们现将其应用于一维输运问题。具体而言，我们研究耗散型 Holstein 模型[10]和全局溶剂紧束缚模型。[65]

为高效模拟单模 Holstein 模型，原始哈密顿量[66] 通过将频率为 Ω 的振动模式纳入有效热浴而进行变换，详见文献[10,67,68] 。由此得到的有效哈密顿量为

$$\hat{H}_{\mathrm{hol}} = \hat{H}_{\mathrm{e}} + \hat{H}_{\mathrm{vib}} + \hat{H}_{\mathrm{I}}. \tag{37}$$

其中，电子组分由一维紧束缚模型描述:

$$\hat{H}_{\mathrm{e}} = J \sum_{j} (\hat{c}_{n+1}^{\dagger} \hat{c}_n + \hat{c}_n^{\dagger} \hat{c}_{n+1}), \tag{38}$$

其中，$\hat{c}_n^{\dagger}$ 和$\hat{c}_n$ 分别表示 n号格点处的电子产生与湮灭算符， J 表示格点间跃迁积分。请注意，此处采用周期性边界条件。有效振动哈密顿量为

$$\hat{H}_{\mathrm{vib}} = \sum_{n} \sum_{j} \omega_{nj} \hat{b}_{nj}^{\dagger} \hat{b}_{nj}, \tag{39}$$

其中每个格点都与一个独立的局域热浴耦合。这里，$\hat{b}_{nj}^{\dagger}$ 和$\hat{}$ b_{nj} 是第 n 个格点上第 j 个热浴模的玻色产生与湮灭算符。系统-热浴

相互作用哈密顿量定义为

$$\hat{H}_{\mathrm{I}} = \sum_n \hat{c}_n^\dagger \hat{c}_n \sum_j g_{nj}(\hat{b}_{nj}^\dagger + \hat{b}_{nj}). \tag{40}$$

其中 g_{nj} 表示与单个模式的耦合常数。这些局域相互作用的效应由布朗谱密度函数表征：

$$J(\omega) = \frac{\lambda \Omega^2 \gamma \omega}{(\omega^2 - \Omega^2)^2 + 4\gamma^2\omega^2}. \tag{41}$$

在该表达式中，无量纲参数 λ 表征电子-声子耦合强度，Ω为特征振动频率， γ 表示耗散参数，即热浴摩擦。

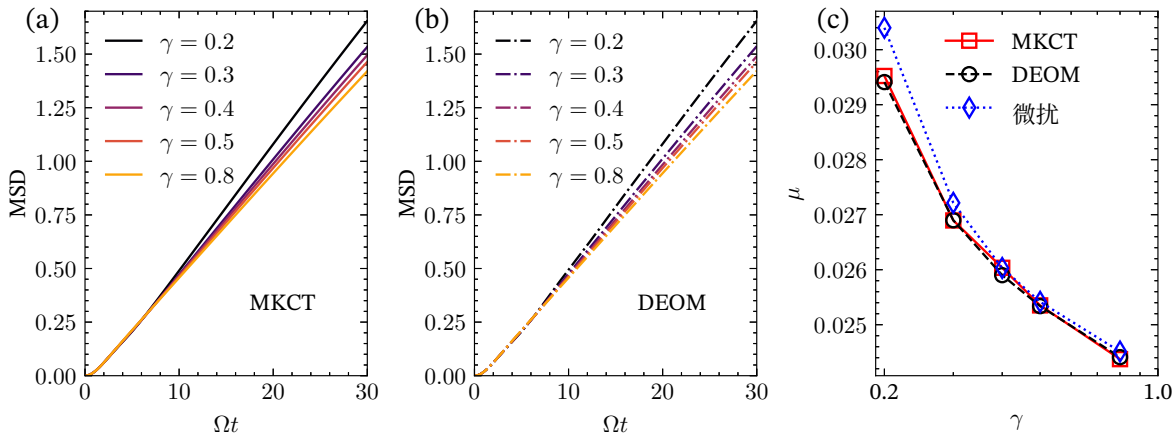

图4：在不同摩擦强度下由MKCT和DEOM模拟的均方位移与迁移率。图(a)和(b)分别展示了由MKCT和DEOM计算得到的不同 γ 值下均方位移的时间演化。图(c)给出迁移率 μ作为摩擦系数 γ的函数。模拟参数为 $J = 0.1$、 $\lambda = 1$、$\Omega = 1$和 $\beta = 1$。

Holstein模型（方程38）为研究电荷迁移率提供了一个框架。电荷迁移率 μ 由爱因斯坦关系确定： $\mu = \frac{eD}{k_{\mathrm{B}}T}$。此处，扩散

常数 D 从均方位移（MSD）的长时间极限中提取：

$$\mathrm{MSD}(t) = \sum_n n^2 P_n(t), \tag{42a}$$

$$\mathrm{D} = \frac{1}{2} \lim_{t\to\infty} \frac{\mathrm{dMSD}(t)}{\mathrm{d}t}, \tag{42b}$$

其中， $P_n(t)$表示第 n个格点的布居。在这些计算中，我们假设晶格常数为单位晶格常数，因此格点索引 n 直接对应空间坐标。

如图 4(a) 和 4(b) 所示，通过 MKCT 计算得到的均方位移的时间演化与 DEOM 结果高度吻合。值得注意的是，这些模拟是在强电子-声子耦合区间（$\lambda\Omega > J$）进行的，而近似方法在此区间通常会失效。事实上，图 4(c) 表明，微扰理论[10] 在低摩擦极限下会高估迁移率。相比之下，张量MKCT仍能保持准确。

最后，我们研究一个与全局溶剂耦合的紧束缚模型。该模型是一个基准系统，以电荷输运动力学对温度高度敏感而闻名。[65] 其哈密顿量为

$$\hat{H}_{\mathrm{tb}} = \sum_n \epsilon_n |n\rangle\langle n| - V(|n\rangle\langle n+1| + |n+1\rangle\langle n|) + \sum_j \frac{\hat{p}_j^2}{2m_j} + \frac{1}{2} m_j \omega_j^2 \left(\hat{q}_j - \frac{c_j \hat{s}}{m_j \omega_j^2} \right)^2, \tag{43}$$

其中， ϵ_n 是第 n个格点的能量， V 是最近邻耦合，而 $\hat{s}$ 是格点位移算符，定义为 $\hat{s}\,|n\rangle = n\,|n\rangle$。

我们模拟从能量为 $\epsilon_0 = 1$的给体格点出发的电荷转移，而所有后续受体位点的能量均与 $\epsilon_{n>0} = 0$简并。在$\omega_c > \epsilon_0 > V$条件下，布居转移受到热浴的强烈介导，因而会随热浴温度不同而呈现出截然不同的输运机制。

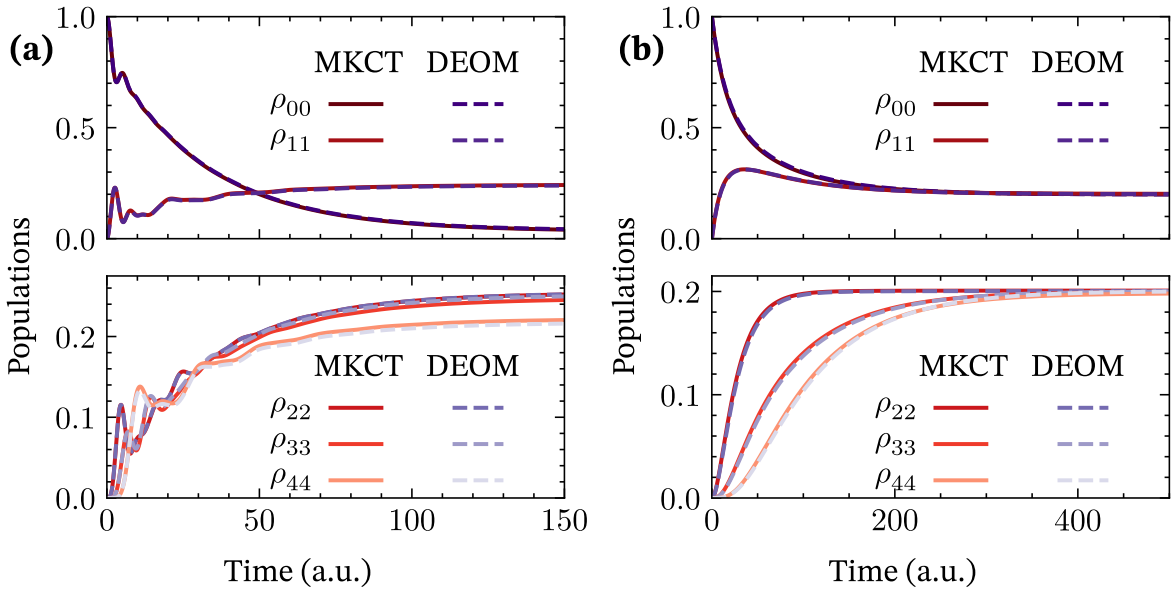

图5：具有全局浴的紧束缚模型的布居时间演化。图(a)和(b)分别展示了低温（$\beta = 2$）和高温（$\beta = 0.02$）下的结果。模拟参数为：$\epsilon_0 = 1$、$V = 0.3$、$\lambda = 0.24$和 $\omega_C = 4$。使用了阶数为 [7/13] 的Pad´e近似。

图 5 以五位点模型展示了这种依赖温度的行为。在低温下 [图 5(a)], 布居几乎同时从给体转移到所有受体位点。相比之下，在较高温度下 [图 (b)], 格点 1 首先被占据，随后布居沿链顺序传递。在这两种现象上截然不同的机制中，张量MKCT均与DEOM基准结果高度吻合。

4 结论

总之，我们提出了MKCT方法的张量扩展。这种广义方法的方程结构与其标量前身完全平行，关键区别在于，矩$\boldsymbol{\Omega}_n$ 和记忆核$\boldsymbol{\mathcal{K}}_n(t)$现在均作为张量量进行求值。新公式解决了其标量对应形式的主要局限，使得能够直接、准确地计算一般期望值，包括瞬

态布居和相干性。它还能够以远低于DEOM的计算成本，正确求取多能级系统中的关联函数。该方法在一维输运模型中的成功应用，证明了其在不同温度和耦合范围下的稳健性。这些结果表明，张量MKCT有望用于模拟更大型开放量子系统中的复杂非马尔可夫动力学。

致谢

W.D. 感谢国家自然科学基金委员会（编号：22361142829 和 22273075）以及浙江省自然科学基金（编号：XHD24B0301）的支持。我们感谢西湖大学超级计算中心提供设施支持和技术协助。

基于 Mori-Zwanzig投影技术的 C(t) 广义量子主方程。

方程 11 的推导可见先前文献（例如，参考文献[14,38,54]），但为完整起见，我们在此给出推导。我们从基算符 ϕ_i的 Liouville–von Neumann方程开始:

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}\hat{\phi}_i(t) = \mathrm{i}\mathcal{L}e^{\mathrm{i}\mathcal{L}t}\hat{\phi}_i. \tag{44}$$

完整传播子 $e^{\mathrm{i}\mathcal{L}t}$ 满足算符恒等式

$$e^{\mathrm{i}\mathcal{L}t} = e^{\mathcal{Q}\mathrm{i}\mathcal{L}t} + \int_0^t \mathrm{d}\tau\, e^{\mathrm{i}\mathcal{L}(t-\tau)}\mathcal{P}\mathrm{i}\mathcal{L}e^{\mathcal{Q}\mathrm{i}\mathcal{L}\tau}. \tag{45}$$

ˆ应用方程 45于 $\boldsymbol{\mathcal{Q}}\mathrm{i}\mathcal{L}\phi_i$ 可得:

$$e^{\mathrm{i}\mathcal{L}t}(\mathbf{1}-\sum_j \boldsymbol{\mathcal{P}}_j)\mathrm{i}\mathcal{L}\hat{\phi}_i = e^{\boldsymbol{\mathcal{Q}}\mathrm{i}\mathcal{L}t}\mathrm{i}\mathcal{L}\hat{\phi}_i + \int_0^t \mathrm{d}\tau\, e^{\mathrm{i}\mathcal{L}(t-\tau)}\sum_j \left(\boldsymbol{\mathcal{P}}_j\mathrm{i}\mathcal{L}e^{\boldsymbol{\mathcal{Q}}\mathrm{i}\mathcal{L}\tau}\boldsymbol{\mathcal{Q}}\mathrm{i}\mathcal{L}\hat{\phi}_i\right). \tag{46}$$

使用方程44、10以及频率矩阵、记忆核和涨落算符的定义 [方程 12–14],可得:

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}\hat{\phi}_i(t) = \sum_j \Omega_{ij}\hat{\phi}_j(t) + \int_0^t \mathrm{d}\tau \sum_j K_{ij}(\tau)\hat{\phi}_j(t-\tau) + \hat{f}_i(t). \tag{47}$$

在方程 47两边取迹 $\mathbf{Tr}\left[(\circ)\hat{}\,\phi_k^\dagger\hat{}\,\rho_b^{\mathrm{eq}}\right]$ 后，我们得到关联矩阵的广义量子主方程:

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}\mathcal{C}_{ik}(t) = \sum_j \Omega_{ij}\mathcal{C}_{jk}(t) + \int_0^t \mathrm{d}\tau \sum_j K_{ij}(\tau)\mathcal{C}_{jk}(t-\tau) + \mathrm{Tr}\left[\hat{f}_i(t)\hat{\phi}_k^\dagger\hat{\rho}_b^{\mathrm{eq}}\right]. \tag{48}$$

为完成方程 11的推导，我们证明项 $F_{ik}(t) \equiv \mathrm{Tr}\left[\hat{}\,f_i(t)\hat{}\,\phi_k^\dagger\hat{}\,\rho_b^{\mathrm{eq}}\right]$对所有 t均为零。首先验证 $F_{ik}(0) = 0$:

$$\begin{aligned} F_{ik}(0) &= \mathrm{Tr}\left[\left\{(\mathbf{1}-\sum_j \boldsymbol{\mathcal{P}}_j)\mathrm{i}\mathcal{L}\hat{\phi}_i\right\}\hat{\phi}_k^\dagger\hat{\rho}_b^{\mathrm{eq}}\right], \\ &= \mathrm{Tr}\left[(\mathrm{i}\mathcal{L}\hat{\phi}_i)\hat{\phi}_k^\dagger\hat{\rho}_b^{\mathrm{eq}}\right] - \sum_j \mathrm{Tr}\left[(\mathrm{i}\mathcal{L}\hat{\phi}_i)\hat{\phi}_j^\dagger\hat{\rho}_b^{\mathrm{eq}}\right]\mathrm{Tr}\left[\hat{\phi}_j\hat{\phi}_k^\dagger\hat{\rho}_b^{\mathrm{eq}}\right] = 0. \end{aligned} \tag{49}$$

这里，我们使用了正交归一条件

$$\mathrm{Tr}\left[\hat{\phi}_j\hat{\phi}_k^\dagger\hat{\rho}_b^{\mathrm{eq}}\right] = \mathrm{Tr}_s[\hat{\phi}_j\hat{\phi}_k^\dagger]\,\mathrm{Tr}_b[\hat{\rho}_b^{\mathrm{eq}}] = \delta_{jk}. \tag{50}$$

接下来，我们证明 $\mathrm{d}/\mathrm{d}t F_{ik}(t) = 0$:

$$\begin{aligned}\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}F_{ik}(t) &= \mathrm{Tr}\left[\left\{(\mathbf{1}-\sum_j \boldsymbol{\mathcal{P}}_j)\mathrm{i}\mathcal{L}\hat{f}_i(t)\right\}\hat{\phi}_k^\dagger\right], \\ &= \mathrm{Tr}\left[\left\{\mathrm{i}\mathcal{L}\hat{f}_i(t)\right\}\hat{\phi}_k^\dagger\hat{\rho}_b^{\mathrm{eq}}\right] - \sum_j \mathrm{Tr}\left[\left\{\mathrm{i}\mathcal{L}\hat{f}_i(t)\right\}\hat{\phi}_j^\dagger\hat{\rho}_b^{\mathrm{eq}}\right]\mathrm{Tr}\left[\hat{\phi}_j\hat{\phi}_k^\dagger\hat{\rho}_b^{\mathrm{eq}}\right] = 0.\end{aligned} \tag{51}$$

由于 $F_{ik}(0) = 0$ 及其时间导数均为零，因此我们得出 $F_{ik}(t) = 0$。将其代入式48 ，得到正文中的式11 。

B 自旋-玻色子模型的基组自关联函数

为补充正文（第3.1节）中讨论的布居和相干动力学，我们给出$\boldsymbol{\mathcal{C}}(t)$的完整时间演化。图6展示了各个矩阵元，并将张量MKCT的结果与DEOM基准结果进行了比较。

C FMO的时域关联函数

为补充正文中给出的FMO复合物吸收光谱，我们绘制了时域关联函数 $C_{\boldsymbol{\mu\mu}}(t)$，见图7。

参考文献

(1) Marcus, R. A. 化学中的电子转移反应：理论与实验（诺贝尔演讲）。《德国应用化学（英文版）》**1993**，*32*，1111–1121。

(2) Dou, W.; Subotnik, J. E. 观点：如何理解电子摩擦。《化学物理学杂志》**2018**，*148*，230901。

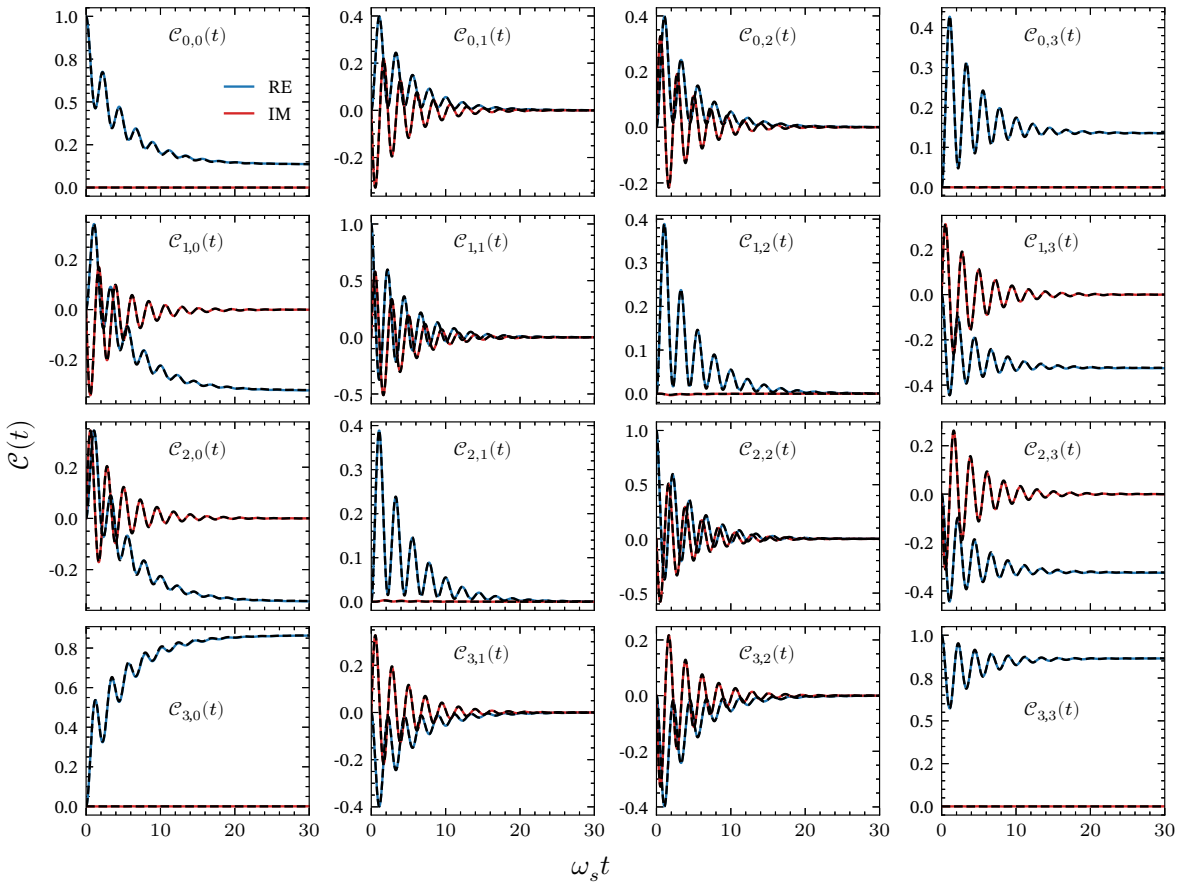

图 6：自旋-玻色子模型的基关联矩阵的时间演化 $\mathcal{C}(t)$。每个子图中的实线表示通过 MKCT 计算得到的上三角矩阵元素的实部（蓝色）和虚部（红色）。DEOM 的参考结果以黑色虚线表示。模拟参数与图 1 中所用参数相同。

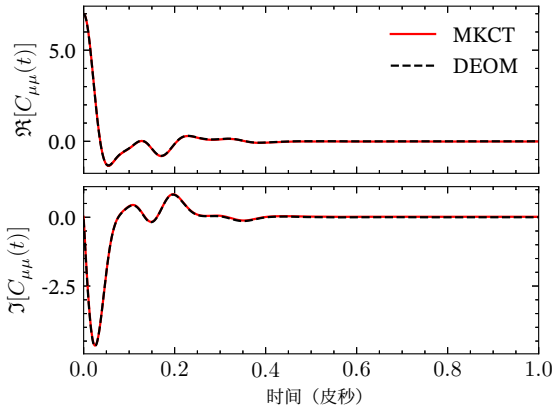

图 7：FMO复合物的偶极-偶极关联函数。模拟参数与图 3 中所用参数相同。

(3) Dou, W.; Subotnik, J. E. 金属表面的非绝热分子动力学。《物理化学杂志*A*》 **2020年**,*124*,757–771,PMID: 31916769.

(4) Tanimura, Y. 采用 Drude 加布朗振子谱分布的约化层级运动方程方法：通过二维相关光谱探究电子转移过程。《化学物理学杂志》 **2012年**, *137*, 22A550.

(5) Ma, J.; Cao, J. F¨orster 共振能量转移、多色团体系中的吸收与发射光谱。I. 完整累积量展开与系统-热浴纠缠。《化学物理学杂志》 **2015年**, *142*, 094106.

(6) Saraceno, P.; Sl´ama, V.; Cupellini, L. CP29捕光复合物中激发能转移与瞬态吸收光谱的第一性原理模拟。《化学物理学杂志》 **2023年**, *159*, 184112.

(7) Troisi, A. 高迁移率分子半导体中的电荷输运：经典模型与新理论。《化学学会评论》 **2011 年** ,*40*, 2347。

(8) Yan, Y.; Xu, M.; Liu, Y.; Shi, Q. 使用中岛-兹万齐格-森广义主方程对有机分子晶体中的电荷载流子输运进行理论研究。《化学物理学杂志》 **2019年**, *150*, 234101。

(9) Giannini, S.; Blumberger, J. 有机半导体中的电荷输运：非绝热分子动力学视角。《化学研究述评》 **2022年**,*55*, 819–830, PMID: 35196456。

(10) Li, T.; Yan, Y.; Shi, Q. 单振动模霍尔斯坦模型是否存在有限迁移率？实时模拟带来的启示。《化学物理学杂志》**2024年**, *160*, 111102。

(11) Bhattacharyya, S.; Sayer, T.; Montoya-Castillo, A. Mori广义主方程为预测和解释极化子输运提供了一种高效途径。《化学科学》 **2024年**, *15*, 16715–16723. (12) Jasrasaria, D.; Berkelbach, T. C. 强非谐性决定了I型笼形化合物的超低热导率。《物理评论*B*》 **2025年**, *112*, 014308. (13) Takahashi, H.; Borrelli, R. 有机材料Holstein–Peierls模型中的载流子迁移率：一种张量列车层级运动方程方法。《化学物理学杂志》 **2025年**, *163*, 194105. (14) Zwanzig, R. W.《非平衡统计力学》；牛津大学出版社：纽约，纽约州，2001年. (15) Yan, Y.; Xu, R. 耗散系统量子力学。《物理化学年度评论》 **2005年**, *56*, 187–219. (16) Breuer, H.-P.; Petruccione, F.《开放量子系统理论》；牛津大学出版社，2007年. (17) Tanimura, Y.; Kubo, R. 与近似高斯-马尔可夫噪声浴接触的量子系统的时间演化。《日本物理学会杂志》**1989**, *58*, 101–114. (18) Makri, N. 用于量子耗散系统长时间动力学的数值路径积分技术。《数学物理学杂志》**1995年**, *36*, 2430–2457. (19) Jin, J.; Zheng, X.; Yan, Y. 耗散电子系统和量子输运的精确动力学：层级运动方程方法。《化学物理学杂志》**2008年**, *128*, 234703. (20) Li, W.; Ren, J.; Shuai, Z. 用有限温度TD-DMRG计算载流子迁移率的

有机半导体。《物理化学快报》**2020年**, *11*, 4930– 4936,PMID: 32492339.

(21) Wang, Y.; Yan, Y. 开放系统的量子力学：耗散子理论。《化学物理学杂志》**2022年**, *157*, 170901.

(22) Redfield, A. G. 弛豫过程理论。《*IBM*研究与发展杂志》**1957**,*1*, 19–31.

(23) Tokuyama, M.; Mori, H. 玻尔兹曼方程的统计力学理论及 μ空间中的涨落。《理论物理进展》**1976**, *56*, 1073–1092.

(24) Rabani, E.; Reichman, D. R. 量子液体动力学关联的自洽模耦合理论：严格表述。《化学物理学杂志》**2002**,*116*, 6271–6278.

(25) Reichman, D. R.; Rabani, E. 量子液体中动力学关联的自洽模耦合理论：液态仲氢的应用。《化学物理学杂志》**2002**,*116*, 6279–6285.

(26) Meyer, H.; Miller, W. H. 非绝热碰撞过程中电子自由度的经典类比。《化学物理学杂志》**1979**, *70*, 3214–3223.

(27) Stock, G.; Thoss, M. 非绝热量子动力学的半经典描述。《物理评论快报》**1997**,*78*, 578–581. (28) Liu, J.; Miller, W. H. 超越线性化半经典初值表示的单一相空间积分中的实时间关联函数。《化学物理学杂志》**2007**,*126*, 234110.

(29) Tully, J. C. 分子动力学中的电子跃迁。《化学物理学杂志》**1990**, *93*, 1061–1071。

(30) Craig, C. F.; Duncan, W. R.; Prezhdo, O. V. 电子-核动力学中基于含时 Kohn-Sham 方法的轨迹表面跳跃。《物理评论快报》**2005年**，*95*，163001。

(31) Wang, L.; Akimov, A.; Prezhdo, O. V. 表面跳跃的近期进展：2011年–2015年。《物理化学快报》**2016年**，*7*，2100–2112，PMID：27171314。

(32) Mannouch, J. R.; Richardson, J. O. 表面跳跃的映射方法。《化学物理学杂志》**2023年**，*158*，104111。

(33) Nakajima, S. 关于输运现象的量子理论：稳态扩散。《理论物理进展》**1958年**，*20*，948–959。

(34) Zwanzig, R. 不可逆性理论中的系综方法。《化学物理学杂志》**1960年**，*33*，1338–1341。

(35) Zwanzig, R. 不可逆热力学中的记忆效应。物理评论**1961年**，*124*，983–992。

(36) Mori, H. 输运、集体运动与布朗运动。《理论物理进展》**1965**，*33*，423–455。

(37) Kelly, A.; Montoya-Castillo, A.; Wang, L.; Markland, T. E. 平衡与非平衡条件下的广义量子主方程：何时才能获胜？《化学物理学杂志》**2016年**,*144*, 184105. (38) Brian, D.; Sun, X. 广义量子主方程：教程综述与最新进展 †。中国化学物理学杂志**2021年**, *34*, 497–524. (39) Cohen, G.; Rabani, E. 非平衡量子杂质模型中的记忆效应。《物理评论*B*》**2011年**,*84*, 075150.

(40) Bhattacharyya, S.; Sayer, T.; Montoya-Castillo, A. 广义主方程中的空间局域记忆：以小规模晶格模拟的代价达到热力学极限。《化学物理学杂志》**2025年**, *162*, 091102.

(41) Liu, W.; Su, Y.; Wang, Y.; Dou, W. 记忆核耦合理论：从高阶矩获取时间关联函数。《物理评论快报》**2025年**，*135*，148001。

(42) Dan, X.; Xu, M.; Yan, Y.; Shi, Q. 分子结中电荷输运的广义主方程：精确记忆核及其高阶展开。《化学物理学杂志》**2022年**，*156*，134114。

(43) Zhang, H.-D.; Yan, Y. 通过分层 Liouville 空间投影算符方法构建动力学速率核。《物理化学杂志*A*》**2016年**，*120*，3241–3245，PMID：26757138。

(44) Shi, Q.; Geva, E. 一种计算任意系统–浴耦合下广义量子主方程记忆核的新方法。《化学物理学杂志》**2003**，*119*，12063–12076。

(45) Shi, Q.; Geva, E. 任意系统-热浴耦合的半经典广义量子主方程。《化学物理学杂志》**2004年**，*120*，10647–10658。

(46) Mulvihill, E.; Geva, E. 广义量子主方程记忆核计算的多种途径路线图。《物理化学杂志 *B*》**2021年**，*125*，9834–9852，PMID: 34424700。

(47) Ivander, F.; Lindoy, L. P.; Lee, J. 具有记忆效应的开放量子动力学统一框架。《自然·通讯》**2024年**，*15*。

(48) Cerrillo, J.; Cao, J. 非马尔可夫动力学映射：开放量子轨迹的数值处理。《物理评论快报》**2014**，*112*，110401。

(49) Schmid, P. J. 数值和实验数据的动态模态分解。流体力学杂志**2010年**, *656*, 5–28。

(50) Liu, W.; Chen, Z.-H.; Su, Y.; Wang, Y.; Dou, W. 通过动态模态分解预测速率核。《化学物理学杂志》**2023年**,*159*, 144110.

(51) Zeng, H.; Kou, Y.; Sun, X. 预测长时非绝热动力学需要多复杂的神经网络？《化学理论与计算杂志》**2024年**,*20*, 9832–9848, PMID：39540684.

(52) Bi, R.-H.; Liu, W.; Dou, W. 精确量子动力学中矩计算的普适结构：在任意系统–浴耦合中的应用。《化学物理学杂志》**2025年**,*162*, 224106.

(53) Liu, Y.; Dou, W. 从高阶矩到强关联系统中的时间关联函数：一种基于 DMRG 的记忆核耦合理论。《化学物理学杂志》**2025年**,*163*, 214102.

(54) Montoya-Castillo, A.; Reichman, D. R. 基于 Mori 形式的近似但精确的量子动力学：I. 非平衡动力学。《化学物理学杂志》**2016年**,*144*, 184104.

(55) Montoya-Castillo, A.; Reichman, D. R. 基于 Mori 形式的近似但精确的量子动力学。II. 平衡态时间关联函数。《化学物理学杂志》 **2017年**,*146*, 084110.

(56) Makri, N.; Makarov, D. E. 用于约化密度矩阵迭代量子时间演化的张量传播子。I. 理论。《化学物理学杂志》 **1995年**, *102*, 4600–4610.

(57) Liu, W.; Bi, R.-H.; Su, Y.; Xu, L.; Zhou, Z.; Wang, Y.; Dou, W. 基于投影的

量子动力学的记忆核耦合理论：非马尔可夫模拟的稳定框架。2026年；https://arxiv.org/abs/2602.10629。

(58) Chen, Z.-H.; Wang, Y.; Zheng, X.; Xu, R.-X.; Yan, Y. 用于优化层级量子主方程的通用时域 Prony 拟合分解。《化学物理学杂志》**2022年**,*156*, 221102.

(59) Takahashi, H.; Rudge, S.; Kaspar, C.; Thoss, M.; Borrelli, R. 任意及结构化谱密度的高精度热浴关联函数指数分解：新兴方法与新途径。《化学物理学杂志》**2024年**,*160*, 204105.

(60) Lambert, N.; Gigu`ere, E.; Menczel, P.; Li, B.; Hopf, P.; Su´arez, G.; Gali, M.; Lish- man, J.; Gadhvi, R.; Agarwal, R.; Galicia, A.; Shammah, N.; Nation, P.; J ohans- son, J.; Ahmed, S.; Cross, S.; Pitchford, A.; Nori, F. QuTiP 5：Python量子工具箱。《物理学报告》**2026年**, *1153*, 1–62， QuTiP 5：Python量子工具箱。

(61) Cho, M.; Vaswani, H. M.; Brixner, T.; Stenger, J.; Fleming, G. R. 二维电子光谱学中的激子分析。《物理化学杂志*B*辑》**2005年**, *109*, 10542– 10556, PMID: 16852278.

(62) Chen, L.; Zheng, R.; Jing, Y.; Shi,Q. 使用层级运动方程方法模拟Fenna-Matthews-Olson复合物的二维电子光谱。《化学物理学杂志》**2011年**,*134*, 194508.

(63) Hein, B.; Kreisbeck, C.; Kramer, T.; Rodr´ıguez, M. Fenna–Matthews–Olson复合物二维回波光谱中振荡的建模。《新物理学杂志》**2012年**,*14*, 023018.

(64) Tronrud, D. E.; Wen, J.; Gay, L.; Blankenship, R. E. 不同绿色硫细菌的 FMO 天线蛋白吸收光谱差异的结构基础

。*Photosynthesis Research* **2009**, *100*, 79–87。

(65) Lambert, R.; Makri, N. 长时间耗散电荷转移动力学的记忆传播子矩阵。*Molecular Physics* **2012年**,*110*,1967–1975.

(66) Holstein, T. 极化子运动研究：第二部分。“小”极化子。*Annals of Physics***1959**,*8*, 343–389.

(67) Leggett, A. J. 任意线性耗散机制存在时的量子隧穿。*Physical Review B* **1984**,*30*,1208–1218.

(68) Garg, A.; Onuchic, J. N.; Ambegaokar, V. 摩擦对生物分子中电子转移的影响。《化学物理学杂志》 **1985**, *83*,4491–4503.