arXiv:2603.11037v1 [cond-mat.quant-gas] 11 Mar 2026

# 在光学晶格中实现 Emery 模型，以对铜酸盐和镍酸盐进行量子模拟

Hannah Lange, [1, 2, *] Liyang Qiu, [3, 2, †] Robin Groth, [3,2] Andreas von Haaren, [3,2] Luca Muscarella, [3,2] Titus Franz, [3,2] Immanuel Bloch, [3,2,4] Fabian Grusdt, [1,2] Philipp M. Preiss, [3,2] 和 Annabelle Bohrdt[1,2]

[1] *Department of Physics and Arnold Sommerfeld Center for Theoretical Physics (ASC), Ludwig-Maximilians-Universität München, Theresienstr. 37, München D-80333, Germany*

[2] *Munich Center for Quantum Science and Technology (MCQST), Schellingstr. 4, München D-80799, Germany*

[3] *Max-Planck-Institute for Quantum Optics, Hans-Kopfermann-Str.1, Garching D-85748, Germany*

[4] *Department of Physics, Ludwig-Maximilians-Universität, 80799 Munich, Germany*（日期：2026年3月12日）

铜酸盐中高温超导的微观起源，仍是凝聚态物理领域悬而未决的核心问题之一。越来越多的实验和理论证据表明，裸单带费米-哈伯德模型可能无法全面描述铜酸盐的超导性等性质，这促使我们重新审视铜氧平面的经典三带模型——Emery模型，而单带模型最初正是由该模型推导而来。在此，我们提出并分析了一种量子模拟方案，借助当今的超冷原子量子模拟平台，在与铜酸盐和无限层镍酸盐相关的参数区间内实现Emery模型，从而能够在当前数值方法难以处理的系统尺度上探索三带物理。具体而言，我们证明，通过在二维光学晶格上叠加特定排列的排斥势，可以设计出一种系统，用于研究与铜酸盐及无限层镍酸盐相关的Emery模型在不同参数区间下的低温性质。我们的研究为利用超冷原子量子模拟器开展真实材料模拟铺平了道路，并有助于进一步理解非常规超导体的物理机制。

自铜酸盐基超导体于四十多年前被发现以来， [1], 揭示高温超导性背后的微观机制，仍然是凝聚态物理领域最重要的未解问题之一。人们开展了大量研究，试图理解这些强关联材料背后的电子性质。氧化铜层中的电子自由度可以用利布晶格几何结构上的三带描述来建模，即 Emery模型 [2], ，其中每个晶胞包含一个铜位点和两个氧位点，并具有一个能隙 $\Delta_{pd}$，见图1。通过构造以铜格点为中心的Wannier函数，Emery模型可以下折叠为一种简化描述，即著名的单带费米-哈伯德模型 [3], ，该模型在过去几十年中得到了广泛研究 [4]。然而，越来越多的证据表明，这种简化描述可能不足以刻画铜酸盐化合物的物理性质 [5–10]。这引发了一个问题：为了准确描述铜酸盐超导体，是否必须考虑次近邻或密度辅助隧穿等额外项。为回答这一问题，有必要退一步，重新审视采用Emery模型形式的铜酸盐多带描述。尽管张量网络 [5, 11, 12], 蒙特卡罗方法 [13–15] 和动力学平均场理论 [16], 近年来取得了进展，但对这一三带模型进行精确模拟仍然具有挑战性，大多数数值方法。

近年来，光学晶格中的超冷原子 [17,18] 已成为研究强关联体系的异常强大且高度可调的量子模拟平台。该领域长期以来的更广泛目标之一，是模拟真实材料的物理；近年来已取得重大里程碑，包括实现超低温 [19],、自旋分辨探测 [20–24],, ，以及实现利布晶格等多能带晶格模型 [25]。

在此，我们朝着这一目标又迈进一步，展示如何在光学晶格实验中模拟三带埃默里模型，其参数范围与铜酸盐及其他材料相关。为此，我们从图1所示的利布晶格几何结构出发，该结构此前已通过实验实现 [25], ，并通过在 $p$格点上引入势能偏移——即电荷转移能 $\Delta_{pd}$（见图1a、b）对其进行扩展。该偏移 $\Delta_{pd}$ 是研究与多种不同材料相关参数范围内的 Emery模型的关键要素：（$i$）铜酸盐，其中 $\Delta_{pd}$ 是影响转变温度的关键参数 [26–29]。（$ii$）无限层镍酸盐超导体，其中 [30], 该参数 $\Delta_{pd}$ 甚至大于铜酸盐中的对应值 [31–33]；以及（$iii$）交替磁性等其他现象 [34]。我们将展示，在所提出的装置中，$\Delta_{pd}$ 可通过两束偏振角可调的激光束之间的干涉进行调控。我们证明，该装置借助先进的量子模拟器，为研究 Emery模型的大尺度物理提供了全新视角，使我们能够直接探究张-赖斯单重态形成和磁关联的掺杂依赖性等关键现象。类似的参数范围

* 这些作者对这项工作做出了同等贡献
†这些作者对这项工作做出了同等贡献；liyang.qiu@mpq.mpg.de

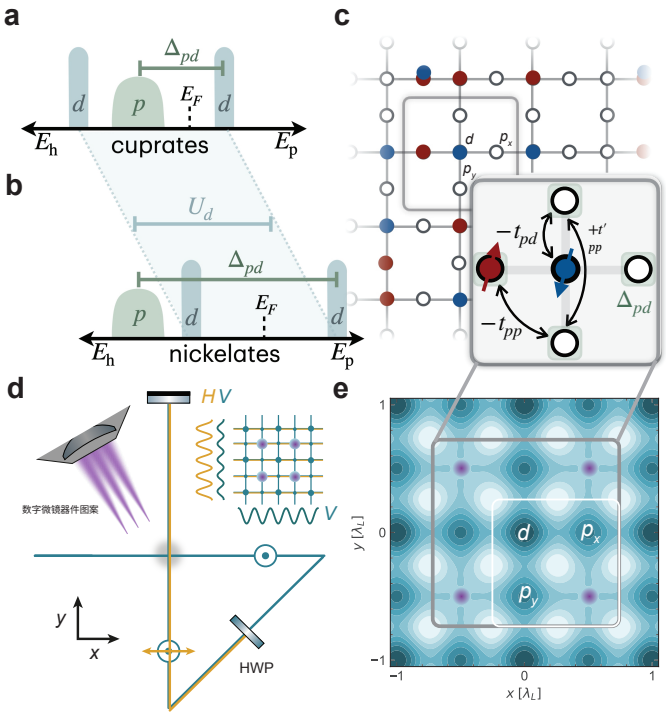


图1. 冷原子量子模拟器中的铜酸盐三带埃默里模型：铜酸盐（a）和镍酸盐（b）的能带结构，包含铜 $d$ 和氧 $p$ 能带。进行粒子-空穴变换，实际上相当于反转能量 $E_{\rm p} \to E_{\rm h}$的符号。c) $d$ 和 $p_x, p_y$轨道也出现在铜酸盐中铜氧层的晶格描述里，其跃迁强度为 $t_{pd}$, $t_{pp}^{(\prime)}$。在空穴描述中， $p_x, p_y$ 轨道的能量偏移为 $\Delta_{pd} > 0$。d) 实验装置：单束激光沿 $x$和 $y$ 轴依次穿过原子云（灰色），并经反射后形成二维晶格。在第一次和第二次通过之间插入半波片（HWP），即可动态调节晶格沿 $y$轴的偏振，使其从初始输入偏振（$V$，绿色）变为完全正交的状态（$H$，橙色）。如右上角插图所示，形成的被动相位稳定晶格具有可编程的最近邻格点偏移。通过数字微镜器件（DMD）经物镜投射排斥性局域势（紫色阵列）——屏蔽每第四个格点——即可生成用于Emery模型的动态可控势（e）。

也可以通过一种稍复杂的装置实现，该装置使用两束波长不同的激光束，正如文献 [35, 36]所提出的那样。我们的工作不仅具有实验意义，也具有理论价值，因为它为确定多能带模型的物理性质以及识别有效单带描述的关键要素提供了一种新方法。

模型。– 我们从无掺杂时铜酸盐和镍酸盐的典型能带结构开始， [28], 如图 1a、b 所示。在粒子描述中（能量 $E_{\rm p}$），这对应于（弱相互作用的）氧 $p$能带完全填满，而铜 $d$ 能带半填充，相互作用能为 $U_p < U_d$。通过粒子-空穴变换（反转能量轴的符号$E_{\rm p} \to E_{\rm h}$），可以将其映射为一个 $d$能带半填充、 $p$能带为空的系统。对于镍酸盐，能量偏移 $\Delta_{pd}$ 远大于铜酸盐中的情况，从而在空穴掺杂时产生不同的物理性质，后文将对此进行说明。

在铜酸盐的氧化铜层中，晶格由 Lieb 晶格几何结构构成，每个晶胞分别包含 $d$-、 $p_x$ 和 $p_y$-轨道，见图 1c。跃迁振幅由 $p$-轨道和 $d$-轨道的波函数重叠决定。我们选择一种 $p$-轨道的规范，使整个晶格上的所有跃迁振幅符号相同，见图1c的插图和补充材料（SM） [37]，由此得到利布晶格上的以下 Emery模型形式

$$\hat{\mathcal{H}} = -t_{pd}\sum_{\langle \mathbf{ij}\rangle,\sigma}(\hat{d}^{\dagger}_{\mathbf{i}\sigma}\hat{p}_{\mathbf{j}\sigma} + \text{h.c.}) - \sum_{\mathbf{jj}',\sigma} t_{pp}^{\mathbf{jj}'}(\hat{p}^{\dagger}_{\mathbf{j}\sigma}\hat{p}_{\mathbf{j}'\sigma} + \text{h.c.}) + \Delta_{pd}\sum_{\mathbf{j},\sigma}\hat{p}^{\dagger}_{\mathbf{j}\sigma}\hat{p}_{\mathbf{j}\sigma} + \sum_{\nu\in\{p,d\}} U_{\nu}\sum_{\mathbf{i}}\hat{n}^{\nu}_{\mathbf{i}\uparrow}\hat{n}^{\nu}_{\mathbf{i}\downarrow}. \quad (1)$$

这里，$\hat{d}^{(\dagger)}\,\mathbf{i}\sigma$ 和$\hat{p}^{(\dagger)}\,\mathbf{i}\sigma$ 分别湮灭（产生） $d$-格点以及 $p = p_x$、 $p_y$-格点上的空穴，空穴密度由$\hat{n}^{d}_{\mathbf{i}\sigma} = \hat{d}^{\dagger}\,\mathbf{i}\sigma\,\hat{d}_{\mathbf{i}\sigma}$、$\hat{n}^{p}\,\mathbf{i}\sigma = \hat{p}^{\dagger}\,\mathbf{i}\sigma\hat{p}_{\mathbf{i}\sigma}$给出。最近邻$d$-$p$ 格点以 $\langle\ldots\rangle$表示。对于（次）近邻 $p$-$p$ 跃迁，我们取 $t_{pp}^{\mathbf{ij}} = t_{pp}^{(\prime)}$；其他情况下则取 $t_{pp}^{\mathbf{ij}} = 0$。电荷转移能记为$\Delta_{pd} = \epsilon_p - \epsilon_d$；$U_{d(p)}$ 分别表示 $d$ （$p$）格点上的位点哈伯德相互作用。此前采用并估算出的、与铜酸盐和镍酸盐相关的现实参数取值为 $t_{pp}/t_{pd} = 0, \ldots, 0.5$； $t'_{pp}/t_{pd} = 0, \ldots, (t_{pp}/t_{pd})$; $U_d/t_{pd} = 4.5, \ldots, 9.2$; 以及 $U_p/t_{pd} = 0, \ldots, 5.7$ 和 $\Delta_{pd}/U_d = 0.3, \ldots, 0.5$ （铜酸盐）或 $\Delta_{pd}/U_d = 1, \ldots, 1.5$（镍酸盐） [5, 11, 16, 28, 31–33, 38–46]。在一些研究中，还考虑了 $p$ 格点与 $d$ 格点之间的排斥项[37, 40, 41], ，但通常会忽略该项，同时略微增大 $\Delta_{pd}$ [5]。本文将表明，利用冷原子实验可以实现这些参数范围。除此之外，Emery模型还呈现许多其他有趣的物理机制，包括平带物理、分数化和交替磁性 [34, 47]。

在本文余下部分，我们将采用粒子-空穴变换后的描述（空穴图像），并提出用光学晶格中的费米原子来模拟这些空穴。选择这种描述，是因为在低至中等掺杂范围内，它对应较小的空穴填充率， $\langle\hat{n}\rangle = \frac{1}{3L_xL_y}\sum_{\mathbf{i}\nu}\langle\hat{n}^{\nu}_{\mathbf{i}}\rangle = 1/3$，而非粒子填充率 $\langle\hat{n}^{(p)}\rangle = 5/3$；后者在数值和实验上都更难实现。本文中，占据 均指空穴图像中的占据。在半填充时，空穴主要占据$d$位点，因为 $p$位点的占据会受到能隙 $\langle$的抑制。

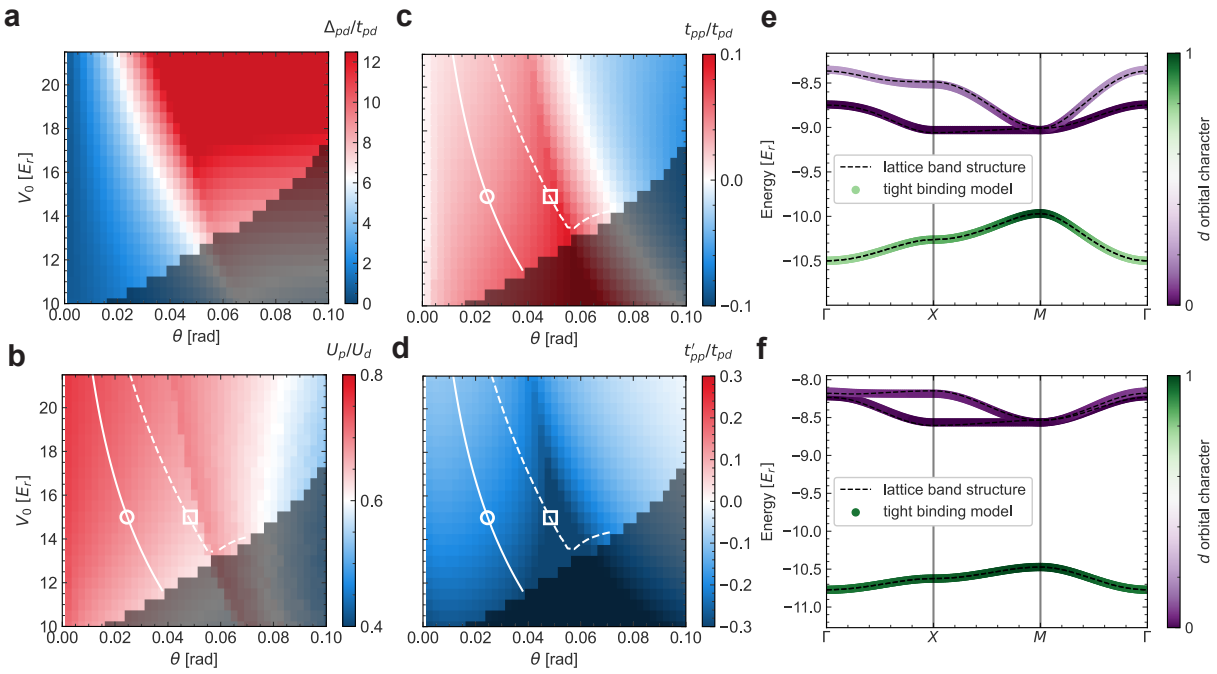


图 2. 所提出的光学晶格装置中可实现的 Emery模型参数： $\Delta/t_{\mathrm{pd}}$ (a)、 $U_p/U_d$ (b)、 $t_{pp}/t_{pd}$ (c) 和 $t'_{pp}/t_{pd}$ (d)。右下角的灰色遮罩表示第四能带过窄、无法支持准确的三能带紧束缚描述的区域。b 图中 $\theta \sim 0.05\,\mathrm{rad}$ 附近出现的尖锐特征源于能带结构的变化： $d$和 $p$能带开始解耦；这一变化与其他参数的趋势一致 [48]。在 b、c 和 d 图中，两条白色曲线分别表示与铜酸盐相关的 $\Delta_{pd}/t_{pd} = 3.5$（实线）和与镍酸盐相关的 $\Delta_{pd}/t_{pd} = 9$（虚线）。e、f 图分别展示了 $V_0/E_r = 15$ 在 $\theta = 0.025\,\mathrm{rad}$ 和 $\theta = 0.049\mathrm{rad}$ 处的能带色散（对应 c、d 图中的白色圆圈和方块）。对于 c 图（铜酸盐）， $\Delta_{pd}/t_{pd} = 3.5$，其中 $t_{pd} = 0.31\,E_r$、 $t_{pp}/t_{pd} = 0.03$ 和 $t'_{pp}/t_{pd} = -0.2$；对于 d 图（镍酸盐）， $\Delta_{pd}/t_{pd} = 9$，其中 $t_{pd} = 0.24\,E_r$、 $t_{pp}/t_{pd} = 0.06$ 和 $t'_{pp}/t_{pd} = -0.3$。虚线表示由实验晶格势得到的精确色散，彩色线表示由紧束缚Emery模型重构的色散，颜色表示 $d$轨道的特征。

系统可以通过添加（移除）空穴来掺杂，分别对应于空穴掺杂时的 $\langle \hat{n} \rangle > 1/3$（粒子掺杂时的$\langle \hat{n} \rangle < 1/3$ ）。空穴掺杂后的行为在很大程度上取决于 $\Delta_{pd}$：对于 $\Delta_{pd} \gtrsim U_d$ （镍酸盐），额外掺杂剂很可能占据 $d$位点；而对于$\Delta_{pd} < U_d$ （铜酸盐），它们则主要占据 $p$位点。在 $t_{pd} \ll \Delta_{pd} < U_d$ 极限下，暂且令 $t_{pp}^{(\prime)} = 0$，微扰处理表明， $d$位点与相邻的 $p$位点之间存在反铁磁（AFM）自旋交换 [3, 44]。这会促使铜酸盐中一个 $d$位点与对称的氧轨道叠加态形成著名的张-里斯单态，从而能够将以 $d$ 位点为中心的相应瓦尼尔函数映射到单带 $t$-$J$ 模型 [3]。对于铜酸盐的参数范围，这些张-里斯单态的形成与其他状态之间存在能隙 $\Delta_{\mathrm{ZR}} \gtrsim t_{pd}$，见补充材料（SM） [37]。此外，在此极限下可得到相邻 $d$位点之间的反铁磁超交换耦合 $J_{dd} \propto t_{pd}^4/\left(\Delta_{pd}^2 U_d\right)$ [3]。因此，铜酸盐和镍酸盐的铜位点内都预期会出现反铁磁有序；但在有限温度下或掺杂时，随着 $J_{dd}$ 与其他能量尺度 [46, 49–51]竞争，镍酸盐中的反铁磁有序衰减得更快。

下面我们将解释如何在冷原子实验中实现具有相关哈密顿量参数的Emery模型，以研究铜酸盐和镍酸盐的物理性质。

光学晶格装置.–如图 1c 所示，从几何上看，Emery模型描述的氧化铜平面等价于利布晶格，例如，近期已在冷原子实验中实现的利布晶格 [25], ，但还具有额外的电荷转移能 $\Delta_{pd}$，它相当于中心铜（$d$）格点与周围氧（$p$）格点之间的能量偏移。虽然 $\Delta_{pd} \neq 0$可通过参考文献 [25, 52], 中的装置，利用数字微镜器件（DMD）实现，但在下文中，我们提出一种可调节$\Delta_{pd}$的替代性被动相位稳定装置。该装置从蝴蝶结几何结构中的单光束被动相位稳定正方晶格开始 [52–54], ，通过在晶格光束两次通过时引入偏振差，在 $\Delta_{pd}$ 与 $d$ $p$ 格点之间形成这种能量偏移，如图 1d 所示。我们将沿 $x$ 轴传播的光束偏振方向设为垂直于晶格平面，记为 $V$。在光束第一次穿过原子后插入一片半波片，即可调节沿 $y$ 路径传播的光束偏振。由于反射回程光束会再次通过这片波片，反射回程 路径上的偏振仍为

。令 $\theta$ 表示 $y$ 路径相对于晶格平面的偏振角（$\theta = 0$ 和 $\pi/2$ 分别对应纯 $H$ 偏振和纯 $V$ 偏振）。于是，两条轴之间的干涉对比度与 $\sin\theta$成正比，由此产生的光学晶格势可写为：

$$V(x,y)/V_0 = -\frac{1}{2}\left(\cos^2(k_L x) + \cos^2(k_L y)\right) - \sin\theta\cos(k_L x)\cos(k_L y) \quad (2)$$

其中 $k_L = 2\pi/\lambda_L$ 是激光波长为 $\lambda_L$时的晶格波矢；$V_0$ 控制晶格深度。通过调节角度 $\theta$，我们可以控制 $\Delta_{pd}$格点与 $p$ 格点之间的能量偏移。我们还注意到，实现这种晶格势的另一种方法是使用三束偏振不同、相位主动锁定的晶格光束 [19, 55]。在这类最近邻格点之间存在能量偏移的正方晶格上，我们建议叠加一个图案化的排斥势阵列，如参考文献 [25], 所示，利用高分辨率显微镜投影系统选择性地抬高每四个“铜”格点中的一个的能量，从而实现利布晶格几何结构 [25, 52]。

通过将 Emery 模型的单粒子能带结构（式（1））拟合到光学晶格能带结构，我们提取出图2a、c、d所示的有效电荷转移能隙和跃迁参数。具有显著正偏移的区域 $\Delta_{pd}/t_{pd} \approx 2, \ldots, 8$，与最近邻跃迁 $t_{pp}/t_{pd} \approx 0.1$ 和次近邻跃迁 $t'_{pp}/t_{pd} \approx -0.2$相对应。尽管后者的绝对值大于铜酸盐中通常采用的数值，但我们在补充材料中表明，与标准铜酸盐参数组 [37]相比，相关可观测量仅发生微弱变化。可实现的相互作用强度约为 $U_p/U_d \approx 0.6$，与铜酸盐相关（见图2b和补充材料 [37]），整体尺度可通过 Feshbach 共振 [56]进行调节。在铜酸盐区，图2e显示，代表性角度 $\theta = 0.025$ 弧度（1.4度）对应的 $\Delta_{pd}/t_{pd} = 3.5$，其拟合能带结构与该模型的完整能带结构吻合良好。这里，晶格深度以反冲能 $E_r = h^2/(2ma^2)$ 为单位表示；在此装置中，原子质量为 $m$，晶格常数为 $a$，等于 $\lambda_L$（见图1d、e）。作为参考，使用 $^6$Li 原子和波长为 $\lambda_L = 1064$nm 的激光时，反冲能为$E_r = h \times 7.3$kHz。采用这些参数，轨道间跃迁为 $t_{pd} = 0.31\, E_r = h \times 2.26$kHz。如此大的能量尺度使量子模拟能够适配当前的量子气体显微镜及其可实现的实验时间尺度 [57]。在晶格深度不变的情况下增大 $\theta$，可以连续增大相对电荷转移能隙 $\Delta_{pd}/t_{pd}$，从而进入镍酸盐区；例如，在 $\theta = 0.049$弧度（2.8度）时，$\Delta_{pd}/t_{pd} = 9$，如图2f所示。使用标准的高质量光学元件并进行仔细校准，可以实现低于1度的偏振控制精度和纯度 [58, 59]。注意

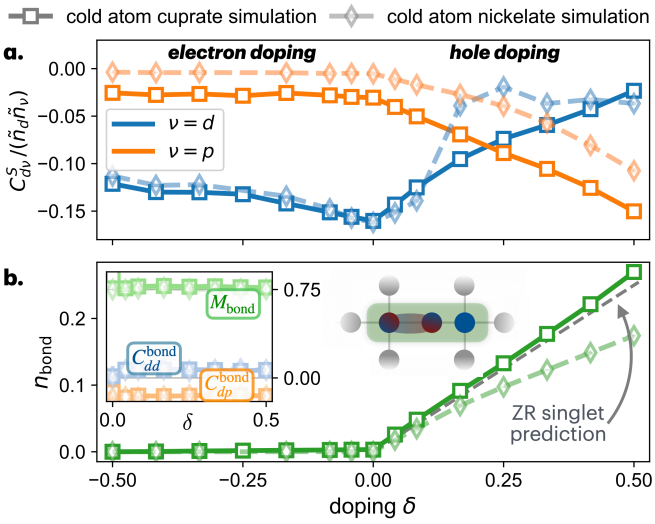


图 3. 对于具有 $12 \times 2$ 个晶胞（72 个格点）的圆柱，在两组与铜酸盐（$\Delta/t_{pd} = 3.5$）和无限层镍酸盐（$\Delta/t_{pd} = 9.0$）相关的参数下，量子模拟平台可实现这些参数，并可改变掺杂 $\delta = N_{\rm h}/(L_x L_y)$。a) 平均最近邻自旋关联 $C^S_{d\nu}$ 除以平均密度 $\tilde{n}_\nu$，见式（3）；$\nu = d\,(p)$ 分别以蓝色（橙色）表示。b) 占据的 $d$-$p$-$d$ 键的数量（见示意图）。对于张-赖斯单态，我们预期 $N_{\rm bond} = N_{\rm h}/2$（灰线），见补充材料 [37]。插图显示了自旋关联 $C^{\rm bond}_{d\nu}$（蓝色和橙色）以及总自旋 $M_{\rm bond}$（绿色），两者均针对占据的 $d$-$p$-$d$ 键进行了后选择。所有计算中，我们设定 $U_d/t_{pd} = 8.0$、$U_p/t_{pd} = 3.0$、$t_{pp}/t_{pd} = 0.1$ 和 $t'_{pp}/t_{pd} = -0.2$。所有可观测量均由从矩阵乘积态中抽取的 2000 个快照计算得出；表示均值误差的误差条小于标记。

能带结构中的动量相对于未包含规范变换的埃默里模型模拟发生了平移 [16, 60]，平移量为$\mathbf{k} \to \mathbf{k} + (\pi, \pi)$，见补充材料 [37]。为进入低温区域，我们提出采用基于熵再分配的冷却方案，类似于文献 [19]。

在下文中，我们将证明，利用我们提出的实验所能达到的参数，可以观测到关键现象，例如张-赖斯单重态形成，或空穴掺杂与粒子掺杂下磁态的不对称性。此外，我们还将展示如何$\Delta_{pd}$ 实现从明显由张-里斯单态主导的铜酸盐区域，到与无限层镍酸盐相关的哈伯德-莫特区域之间的插值。

数值结果。– 上述设置使我们能够突破数值方法的限制，研究大尺度Emery模型的物理性质。在此，我们仍对可进行密度矩阵重整化群计算的、含有 $12 \times 2$ 个晶胞的圆柱开展数值模拟，以便（$i$）预测拟议实验中可能观测到的现象，并（$ii$）比较不同哈密顿量参数取值下的结果。考虑到实验可实现的参数 $U_d/t_{pd} = 8.0$，$U_p/t_{pd} = 3.0$，$t_{pp}/t_{pd} = 0.1$ 和$t'_{pp}/t_{pd} = -0.2$，我们

将电荷转移能从 $\Delta_{pd}/t_{pd} = 3.5$ 铜酸盐相关的 [5, 37, 40–42] 变化到 $\Delta_{pd}/t_{pd} = 9.0$ 无限层镍酸盐相关的 [30]。所有计算均使用SyTen完成 [61, 62],，并利用 $U(1) \times U$（1）对粒子数和磁化强度守恒所对应的对称性 $S_z$，见补充材料 [37]。

图 3 展示了根据以下内容计算的可观测量： $N_S$自旋投影快照， $s = s_1$， $s_2 \ldots s_N$其中 $N$ =3$L_xL_y$ 以及 $s_i = \{-1/2, +1/2, 0\}$，这些数据取自矩阵乘积态，与具有完整自旋分辨能力的实验中可获得的数据类似 [23]。我们同时考察空穴掺杂和电子掺杂，分别对应于从 $\pm N_{\mathrm{h}}$ 填满态中添加或移除 $\langle n \rangle = 1/3$空穴， $\delta = N_{\mathrm{h}}/$（$L_xL_y$）。在图 3a 中，我们计算最近邻自旋关联

$$C^S_{d\nu} = \frac{1}{L_xL_y} \sum_s \sum_{\langle \mathbf{ij} \rangle_{d\nu}} s_{\mathbf{i}} \cdot s_{\mathbf{j}}, \tag{3}$$

其中 $\langle \mathbf{ij} \rangle_{d\nu}$ 涉及一个 $d$-格点和一个最近的 $\nu \in \{p, d\}$-格点。我们除以平均自旋密度（其中双占据和空格点均有贡献 $s_{\mathbf{i}} = 0$），$\tilde{n}_\nu$ =$\frac{1}{3L_xL_y} \sum_{\mathbf{i} \in \nu-\text{格点}} |2s_{\mathbf{i}}|$。正如从 $t_{pd} \to 0$ 极限下的反铁磁（超）交换所预期的那样，$C^S_{dd}/(\tilde{n}_d^2)$ 和 $C^S_{dp}/(\tilde{n}_d\tilde{n}_p)$ 均为负值，这与先前的数值结果一致 [5, 12, 15]。对于电子掺杂和粒子掺杂，关联 $C^S_{dd}/(\tilde{n}_d^2)$ 均随掺杂 $\delta$增加而减弱。这与正方晶格上的单带费米-哈伯德模型非常相似，在该模型中，自旋关联也会随掺杂 [24]增加而减弱。不过需要注意的是，此处考察的自旋关联 $C^S_{dd}/\tilde{n}_d$ 与单带粒子自旋对应量并不完全相同，因为严格降阶为单带描述时，除了进行粒子-空穴变换之外，还需要使用以 Cu 位点为中心的瓦尼尔态，而非裸 Cu 位点 [5]。

此外，单带 $t$-$J$模型和不含次近邻隧穿的费米-哈伯德模型无法捕捉粒子掺杂侧与空穴掺杂侧之间的不对称性，而这一不对称性在此处清晰可见。对于 $\Delta_{pd} > U_d$ 尤其如此；在与镍酸盐相关的区域，预计反铁磁序会受到抑制 [46, 49–51]。在所考察的整个电子掺杂范围内，相邻$d$与 $p$格点之间的自旋关联 $C^S_{dp}/(\tilde{n}_d\tilde{n}_p)$始终极小；而在空穴掺杂时，它们会随 $\delta$线性增加，且在铜酸盐区的绝对值更大。这初步表明铜酸盐中形成了张-里斯单态；这种形成仅预期出现在空穴掺杂区，此时额外的空穴会在 $p$格点上离域。

为了进一步深入了解张-赖斯单重态形成，我们考虑占据的 $d$-$p$-$d$键（下文以 $|_{\mathbf{ijk}=\mathrm{occ.}}$ 表示）。此类占据键的数目 $N_{\mathrm{bond}}$ 按晶胞数目归一化后为 $n_{\mathrm{bond}} = N_{\mathrm{bond}}/($ $L_xL_y$)，在电子掺杂区消失，而在空穴掺杂区与掺杂浓度$n_{\mathrm{h}} = N_{\mathrm{h}}/(L_xL_y)$成正比。具体而言，

我们观察到 $n_{\mathrm{bond}} = n_{\mathrm{h}}/2$ （见图3b中的灰色虚线）在空穴掺杂铜酸盐区成立，这正是张-赖斯单重态形成所预期的，见补充材料 [37]。在镍酸盐区，较大的电荷转移能抑制了张-赖斯单重态形成 [46]， $n_{\mathrm{bond}}$ 显著更小。

对于铜酸盐区和镍酸盐区的占据键，我们计算了最近邻自旋关联 $C^S_{d\nu}|_{\mathbf{ijk}=\mathrm{occ.}}$，以及绝对键磁化强度，

$$M_{\mathrm{bond}} = \frac{3}{\tilde{N}} \sum_s \sum_{\mathbf{ijk} \in (d\text{-}p\text{-}d)} (s_{\mathbf{i}} + s_{\mathbf{j}} + s_{\mathbf{k}})^2 \Big|_{\mathbf{ijk}=\mathrm{occ.}}, \tag{4}$$

˜其中 $N = N_{\mathrm{bond}}N_S$ ，因子 3 考虑了系统的 SU(2)对称性，见补充材料 [37]。在图 3b 的插图中，我们观察到 $M_{\mathrm{bond}}$ 在所有考察的空穴掺杂 $\delta > 0$下，其值几乎保持不变，接近可能的最小值 0。75。数值 0。75 表明梯级横档上形成了一个单态（对 $M_{\mathrm{bond}}$的贡献为 0），而第三个自旋使数值达到 0。75。在无限温度下，所有可能的占据键构型都会出现，此时 $M_{\mathrm{bond}} \to 3($ $6 \cdot 0.5^2 + 2 \cdot 1.5^2)/8 = 2.25$的值会显著更大。结合后选择得到的 $d$自旋关联$C^{\mathrm{bond}}_{dd}$: = $C^S_{dd}|_{\mathbf{ijk}=\mathrm{occ.}}$ 略呈铁磁性，而 $C^{\mathrm{bond}}_{dp}$: = $C^S_{dp}|_{\mathbf{ijk}=\mathrm{occ.}} \approx -0.15$ 为反铁磁性这一观察结果，我们得出结论：单态主要形成于 $p$- 与 $d$-格点之间，这与张-赖斯单态的预期一致。

结论与展望。– 我们提出了一种实验上稳健的方案，可在最先进的超冷原子量子模拟器中实现三带埃默里模型。通过结合利布晶格几何，并在 $p$-格点与 $d$-格点之间设置可调的电荷转移能隙，我们的方法能够探索与铜酸盐和无限层镍酸盐超导体相关的参数区域。以密度矩阵重整化群计算为基准，我们证明了铜酸盐物理的标志性特征——尤其是张-里斯单态的形成以及磁关联中的粒子-空穴不对称性——在实验可及的参数窗口内都能稳健地观测到。因此，我们的工作确立了冷原子平台作为研究多带强关联模型的有力途径，使研究能够在超出现有数值计算能力的系统尺度上进行。我们的方案在实验上的实现具有两方面意义：第一，它使人们能够在比单带模型更接近真实材料的模型中研究铜酸盐或镍酸盐物理，包括磁极化子等准粒子的出现、与铜酸盐实验 [63, 64]，类似的张-赖斯单态形成，或三带模型中的超导性。第二，通过测量

单粒子相干 [65–67] ，并据此构造多体Wannier轨道，这与参考文献 [5]中的数值研究类似。更广泛地说，我们的研究结果为利用冷原子平台模拟真实材料哈密顿量，并深入理解非常规超导性的微观机制铺平了道路。

注。– 在完成这项工作期间，我们了解到一项相关提案，该提案考虑了如何利用双色光学晶格实现 Emery 模型 [68]。

致谢。–我们感谢 Xiaoxiao Wang 提供的宝贵讨论。本研究得到马克斯·普朗克学会（MPG）、德国联邦研究、技术与航天部（BMFTR 项目协议 13N15890，FermiQP）、德国研究基金会（DFG）根据德国卓越战略 EXC-2111（项目编号 390814868）提供的资助，以及欧洲研究理事会（ERC）通过欧盟地平线2020研究与创新计划（项目协议编号 948141）提供的资助，包括 ERC 起始资助项目 SimUcQuam、ERC 起始资助项目 UniRand（项目编号 94824）和 ERC 起始资助项目 QuaQuaMA（项目编号 101217531）。数值模拟在阿诺德·索末菲集群上进行。密度矩阵重整化群计算使用了SyTen 工具包，该工具包由 C. Hubig、F. Lachenmaier、N.-O. Linden、T. Reinhard、L. Stenzel、A. Swoboda、M. Grunder、S. Mardazad、F. Pauw 和 S. Paeckel 开发并维护。更多信息请访问www.syten.eu。

[1] J. G. Bednorz 和 K. A. M¨uller，《Ba-La-Cu-O体系中可能存在的高温超导性》，Z. Phys. B Condens. Matter 64, 189 (1986). [2] V. J. Emery，《氧化物高温超导理论》，《物理评论快报》58, 2794 (1987). [3] F. C. Zhang 和 T. M. Rice，《超导铜氧化物的有效哈密顿量》，《物理评论B》37, 3759 (1988). [4] D. P. Arovas, E. Berg, S. A. Kivelson 和 S. Raghu，《哈伯德模型》，Annu. Rev. Condens. Matter Phys. 13, 239 274 2022– ( ). [5] S. Jiang, D. J. Scalapino 和 S. R. White，《基于密度矩阵重整化群的三带哈伯德模型降阶：密度辅助跃迁的重要性》，《物理评论B》108, L161111 (2023). [6] H. Xu, C.-M. Chung, M. Qin, U. Schollw¨ock, S. R. White 和 S. Zhang，《哈伯德模型中超导性与部分填充条纹共存》，《科学》384, eadh7691 (2024). [7] H. Padma, J. Thomas, S. F. R. TenHuisen, W. He, Z. Guan, J. Li, B. Lee, Y. Wang, S. H. Lee, Z. Mao, H. Jang, V. Bisogni, J. Pelliciari, M. P. M. Dean, S. Johnston 和 M. Mitrano，《铜氧化物梯子中的超越哈伯德配对》，《物理评论X》15, 10.1103/phys- revx.15.021049 (2025). [8] A. Scheie, P. Laurell, J. Thomas, V. Sharma, A. I. Kolesnikov, G. E. Granroth, Q. Zhang, B. Lake, M. M. Jr., R. I. Bewley, R. S. Eccleston, J. Akimitsu, E. Dagotto, C. D. Batista, G. Alvarez, S. Johnston 和 D. A. Tennant，《铜氧化物梯子磁动力学中的库珀对局域化》（ 2025 2501 10296 ），[ ] arXiv: . 凝聚态物理—强关联电子系统 . [9] J. Li, D. Jost, T. Tang, R. Wang, Y. Zhong, Z. Chen, M. Garcia-Fernandez, J. Pelliciari, V. Bisogni, B. Moritz, K. Zhou, Y. Wang, T. P. Devereaux, W.-S. Lee 和 Z.- X. Shen，《掺杂 d 铜酸盐 Ba CuO 中双自旋子激发的掺杂依赖性》，《物理评论快报》( ). [10] H. Lange, T. Blatz, U. Schollw¨ock, S. Paeckel 和 A. Bohrdt，《迈向低维铜氧化物有效模型：从基态哈密顿量重构到谱函数》，《物理评论B》113, 075153 (2026). [11] S. R. White 和 D. J. Scalapino，《三轨道 $CuO_2$ 哈伯德模型中的掺杂不对称性与条纹序》，《物理评论B》92, 205112（2015）。[12] B. Ponsioen、S. S. Chung 和 P. Corboz，《空穴掺杂三带哈伯德模型中的超导条纹》，《物理评论B》108，205154（2023）。[13] A. Chiciak、E. Vitali 和 S. Zhang，《 Emery 模型基态中的磁序与电荷序：精确数值结果》，《物理评论B》102，214512（2020）。[14] E. W. Huang、C. B. Mendl、S. Liu、S. Johnston、H.- C. Jiang、B. Moritz 和 T. P. Devereaux，《高¡i¿t¡/i¿¡sub¿c¡/sub¿ 铜酸盐超导体正常态中涨落条纹的数值证据》，《科学》358, 1161（2017）。[15] J. Mei、S.-H. Shi、P. Xu、Z. Chen、H.-K. Jin、M. Qin、Z.-X. Li 和 K. Jiang，《铜酸盐中的磁性电子-空穴不对称性：一次计算研究的再审视》（2025），arXiv:2511.15608 [凝聚态物理—强关联电子系统]。[16] Y.-T. Tseng、M. O. Malcolms、H. Menke、M. Klett、T. Sch¨afer 和 P. Hansmann，《Emery 模型中的单粒子谱与磁化率：一种动力学平均场视角》，《SciPost物理》18，145（2025）。[17] I. Bloch、J. Dalibard 和 W. Zwerger，《超冷气体的多体物理》，《现代物理评论》80，885（2008）。[18] C. Gross 和 I. Bloch，《光学晶格中超冷原子的量子模拟》，《科学》357，995（2017）。[19] M. Xu、L. H. Kendrick、A. Kale、Y. Gang、C. Feng、S. Zhang、A. W. Young、M. Lebrat 和 M. Greiner，《低温环境下的中性原子哈伯德量子模拟器》，《自然》642，909（2025）。[20] M. Boll、T. A. Hilker、G. Salomon、A. Omran、J. Nespolo、L. Pollet、I. Bloch 和 C. Gross，《费米-哈伯德链中反铁磁关联的自旋与密度分辨显微成像》，《科学》353，1257（2016）。[21] T. A. Hilker、G. Salomon、F. Grusdt、A. Omran、M. Boll、E. Demler、I. Bloch 和 C. Gross，《通过弦关联函数揭示掺杂哈伯德链中隐藏的反铁磁关联》，《科学》357，484（2017）。[22] J. Koepsell、J. Vijayan、P. Sompet、F. Grusdt、T. A. Hilker、E. Demler、G. Salomon、I. Bloch 和 C. Gross，《对掺杂费米–哈伯德

模型中磁极化子的成像》，《自然》572，358（2019）。[23] J. Koepsell、S. Hirthe、D. Bourgund、P. Sompet、J. Vijayan、G. Salomon、C. Gross 和 I. Bloch，《用于自旋与密度分辨量子气体显微术的稳健双层电荷泵浦》，《物理评论快报》125，010403（2020）。[24] J. Koepsell、D. Bourgund、P. Sompet、S. Hirthe、A. Bohrdt、Y. Wang、F. Grusdt、E. Demler、G. Salomon、C. Gross 和 I. Bloch，《掺杂莫特绝缘体从极化子金属到费米液体的微观演化》，《科学》374，82（2021）。[25] M. Lebrat、A. Kale、L. H. Kendrick、M. Xu、Y. Gang、A. Nikolaenko、P. M. Bonetti、S. Sachdev 和 M. Greiner，《多能带哈伯德系统中超冷费米子的亚铁磁性》（2025 2404 17555），[ ] arXiv: . 凝聚态物理—强关联电子系统 . [26] C. Weber、C. Yee、K. Haule 和 G. Kotliar，《空穴掺杂铜酸盐超导体转变温度随电荷转移能的标度关系》，《欧洲物理学快报》100，37001（2012）。[27] W. Ruan、C. Hu、J. Zhao、P. Cai、Y. Peng、C. Ye、R. Yu、X. Li、Z. Hao、C. Jin、X. Zhou、Z.-Y. Weng 和 Y. Wang，《铜酸盐中母体电荷转移能隙与最高转变温度之间的关系》，《科学通报》61，1826（2016）。[28] Z. Wang、C. Zou、C. Lin、X. Luo、H. Yan、C. Yin、Y. Xu、X. Zhou、Y. Wang 和 J. Zhu，《$Bi_2Sr_2Ca_{n-1}Cu_nO_{2n+4+\delta}$中电荷转移能隙与最高转变温度的关联》，《科学》381，227（2023）。[29] C.-H. Yee 和 G. Kotliar，《调控空穴掺杂铜酸盐中的电荷转移能》，《物理评论B》89，094517（2014）。[30] B. Y. Wang、K. Lee 和 B. H. Goodge，《镍酸盐超导体的实验进展》，《现代凝聚态物理年度评论》15，305（2024）。[31] A. S. Botana 和 M. R. Norman，《$LaNiO_2$ 与 $CaCuO_2$ 之间的相似性和差异及其对超导性的影响》，《物理评论X》10，011024（2020）。[32] J. Q. Lin、P. Villar Arribi、G. Fabbris、A. S. Botana、D. Meyers、H. Miao、Y. Shen、D. G. Mazzone、J. Feng、S. G. Chiuzb˘aian、A. Nag、A. C. Walters、M. Garc´ıa- Fern´andez、K.-J. Zhou、J. Pelliciari、I. Jarrige、J. W. Freeland、J. Zhang、J. F. Mitchell、V. Bisogni、X. Liu、M. R. Norman 和 M. P. M. Dean，《共振非弹性X射线散射揭示镍酸盐 $d^{9-\delta}$ 中的强超交换作用》，《物理评论快报》126，087001（2021）。[33] Z. Chen、M. Osada、D. Li、E. M. Been、S.-D. Chen、M. Hashimoto、D. Lu、S.-K. Mo、K. Lee、B. Y. Wang、F. Rodolakis、J. L. McChesney、C. Jia、B. Moritz、T. P. Devereaux、H. Y. Hwang 和 Z.-X. Shen，《共振光电子能谱探测镍酸盐超导体的电子结构》，《物质》（在线）5，10 1016 2022 01 020 2022 . / j.matt. . . ( )。[34] N. Kaushal 和 M. Franz，《修正 Lieb 晶格哈伯德模型中的交替磁性》（2024 2412 16421），[ ] arXiv: . 凝聚态物理—强关联电子系统 . [35] S. Flannigan、L. Madail、R. G. Dias 和 A. J. Daley，《光学 Lieb 晶格中的哈伯德模型与态制备》，《新物理学杂志》23，083014（2021）。[36] M. Di Liberto、A. Hemmerich 和 C. Morais Smith，《光学晶格中的拓扑瓦尔玛超流体》，《物理评论快报》117，163001（2016）。[37] 补充材料。[38] M. S. Hybertsen、M. Schl¨uter 和 N. E. Christensen，《库仑相互作用参数的计算针对$La_2CuO_4$ 的约束密度泛函方法，《物理评论B》39，9028 (1989)。[39] R. L. Martin，铜酸盐中的电子局域化，《物理评论B》53, 15501 (1996)。[40] W. Hanke、M. L. Kiesel、M. Aichhorn、S. Brehm和E. Arrigoni，高温铜酸盐的三带哈伯德模型与单带模型之比较：配对动力学、超导性与基态相图，《欧洲物理学杂志专题》188, 15 (2010)。[41] Z.-H. Cui、C. Sun、U. Ray、B.-X. Zheng、Q. Sun和G. K.-L. Chan，基于密度矩阵嵌入理论的三带哈伯德模型基态相图，《物理评论研究》2, 043259 (2020)。[42] A. K. McMahan、R. M. Martin和S. Satpathy，针对$la_2CuO_4$ 计算的有效哈密顿量及其在杂质安德森近似中的解，《物理评论B》38, 6650 1988( )。[43] P. R. C. Kent、T. Saha-Dasgupta、O. Jepsen、O. K. Andersen、A. Macridin、T. A. Maier、M. Jarrell和T. C. Schulthess，结合密度泛函与动态簇量子蒙特卡罗计算空穴掺杂铜酸盐超导体的三带哈伯德模型，《物理评论B》78, 035132 (2008)。[44] G. Dopf、A. Muramatsu和W. Hanke，三带哈伯德模型：一项蒙特卡罗研究，《物理评论B》41, 9264 1990( )。[45] N. Kowalski、S. S. Dash、P. S´emon、D. S´en´echal和A.-M. Tremblay，氧空穴含量、电荷转移能隙、共价性与铜酸盐超导性，《美国国家科学院院刊》118, e2106476118 (2021)。[46] M. Jiang、M. Berciu和G. A. Sawatzky，掺杂$NdNiO_2$, 中镍自旋态的临界性质，《物理评论快报》124, 207004 (2020)。[47] A. Nikolaenko、P. M. Bonetti、A. Kale、M. Lebrat、M. Greiner和S. Sachdev，近四分之一填充的利布晶格哈伯德模型金属态中的倾斜磁性与$z_2$ 分数化，《物理评论B》112, 045129 (2025)。[48] 在该尖锐特征附近，拟合过程仍然定义良好。由于该区域中响应随角度迅速变化，提取参数可能对实验不确定性更为敏感；因此，角度精度有限的实验可选择避免在靠近该线处运行。[49] M. A. Hayward和M. J. Rosseinsky，通过用氢化钠对$NdNiO_3$ 进行低温还原合成无限层 Ni(I) 相$NdNiO_{2+x}$，《固态科学》5, 839 (2003)。[50] Z. Liu、Z. Ren、W. Zhu、Z. Wang和J. Yang，无限层 $NdNiO_2$的电子与磁结构：反铁磁金属的痕迹，《npj量子材料》5, 31 (2020)。[51] R. A. Ortiz、P. Puphal、M. Klett、F. Hotz、R. K. Kremer、H. Trepka、M. Hemmida、H.-A. K. von Nidda、M. Isobe、R. Khasanov、H. Luetkens、P. Hansmann、B. Keimer、T. Sch¨afer和M. Hepting，无限层镍酸盐中的磁关联：一项实验与理论多方法研究，《物理评论研究》4, 023093 (2022)。[52] D. Wei、D. Adler、K. Srakaew、S. Agrawal、P. Weckesser、I. Bloch和J. Zeiher，可编程光学晶格中膜宇称序的观测，《物理评论X》13, 021042 2023( )。[53] J. Sebby-Strabley、M. Anderlini、P. S. Jessen和J. V.

波尔图，用于操控冷原子对的双势阱晶格，《物理评论A》73, 033605 (2006)。[54] P. T. Brown、D. Mitra、E. Guardado-Sanchez、P. Schauß、S. S. Kondov、E. Khatami、T. Paiva、N. Trivedi、D. A. Huse和W. S. Bakr，二维费米-哈伯德系统中的自旋不平衡，《科学》357, 1385 (2017)。[55] L. Tarruell、D. Greif、T. Uehlinger、G. Jotzu和T. Esslinger，利用可调谐蜂窝晶格中的费米气体产生、移动并合并狄拉克点，《自然》483, 302 (2012)。[56] C. Chin、R. Grimm、P. Julienne和E. Tiesinga，超冷气体中的费什巴赫共振，《现代物理评论》82, 1225 2010( )。[57] C. Gross和W. S. Bakr，用于单原子与自旋探测的量子气体显微术，《自然·物理》17, 1316 (2021)。[58] K. Wen、Z. Meng、L. Wang、L. Chen、L. Huang、P. Wang和J. Zhang，$^{87}$Rb玻色-爱因斯坦凝聚中自旋依赖光晶格调零波长的实验研究，《美国光学学会会志B》38, 3269 (2021)。[59] C. Robens、J. Zopes、W. Alt、S. Brakhane、D. Meschede和A. Alberti，偏振合成光晶格中中性原子的低熵态，《物理评论快报》118, 065302 (2017)。[60] S. A. Maier、J. Ortloff和C. Honerkamp，泛函重整化群中的多轨道效应：Emery模型的弱耦合研究，《物理评论B》88, 235112 2013( )。[61] C. Hubig、F. Lachenmaier、N.-O. Linden、T. Reinhard、L. Stenzel、A. Swoboda、M. Grundner、S. Mardazad 和 S. Paeckel，The SyTen 工具包。[62] C. Hubig，*Symmetry-Protected Tensor Networks*，博士论文，慕尼黑 LMU（2017）。[63] S. Ye、J. Zhao、Z. Yao、S. Chen、Z. Dong、X. Li、L. Shi、Q. Liu、C. Jin 和 Y. Wang，《铜酸盐中的张-里斯单态、分子轨道与对形成的可视化》（2023），arXiv:2309.09260 [cond-mat.supr-con]。[64] C. Ye、P. Cai、R. Yu、X. Zhou、W. Ruan、Q. Liu、C. Jin 和 Y. Wang，《原子尺度可视化 $Ca_2CuO_2Cl_2$ 莫特绝缘体的电子结构》，《自然通讯》4, 1365（2013）。[65] M. Gluza 和 J. Eisert，《从相互作用猝灭中恢复光学晶格中的量子关联》，《物理评论快报》127，090503（2021）。[66] J. Denzler、A. A. Mele、E. Derbyshire、T. Guaita 和 J. Eisert，《通过随机平移不变哈密顿量演化来学习费米子关联》，《物理评论快报》133，240604（2024）。[67] M. Kiser、M. McGinley 和 D. Malz，《冷原子模拟器的高斯层析》（ 2025 2510 23591 ），[ ] arXiv: . quant-ph . [68] C. McCabe、J. Boyd、K. Wang、M. Lebrat、C. Regal、A. M. Rey 和 L. Homeier，正在准备中。[69] Y. F. Kung、C.-C. Chen、Y. Wang、E. W. Huang、E. A. Nowadnick、B. Moritz、R. T. Scalettar、S. Johnston 和 T. P. Devereaux，《利用行列式量子蒙特卡洛表征三轨道哈伯德模型》，《物理评论B》93，155166（2016）。

# 补充材料

## 附录 A：规范变换

若不采用正文中使用的规范变换，铜酸盐的氧化铜层可由以下哈密顿量描述：

$$\hat{\mathcal{H}} = \sum_{\mathbf{i},\mathbf{j},\sigma} V_{\mathbf{ij}}^{dp} \left( \hat{d}_{\mathbf{i}\sigma}^{\dagger} \hat{p}_{\mathbf{j}\sigma} + \text{h.c.} \right) + \sum_{\mathbf{j},\mathbf{j}',\sigma} V_{\mathbf{jj}'}^{pp} \left( \hat{p}_{\mathbf{j}\sigma}^{\dagger} \hat{p}_{\mathbf{j}'\sigma} + \text{h.c.} \right) + \Delta_{pd} \sum_{\mathbf{j},\sigma} \hat{p}_{\mathbf{j}\sigma}^{\dagger} \hat{p}_{\mathbf{j}\sigma} + \sum_{\nu=p,d} U_{\nu} \sum_{\mathbf{i}} \hat{n}_{\mathbf{i}\uparrow}^{\nu} \hat{n}_{\mathbf{i}\downarrow}^{\nu} \tag{S1}$$

这里，$\hat{p}^{\dagger}_{\mathbf{j}\sigma}$ 和 $\hat{d}^{\dagger}_{\mathbf{i}\sigma}$ 分别在 $p_x$、$p_y$= 和 $d_{x^2-y^2}$格点上产生空穴。 $U_{d(p)}$ 是 a$d$($p$格点上的位点库仑排斥。杂化矩阵 $V_{\mathbf{ij}}$ 与 $d$ 和 $p$ 轨道的波函数重叠成正比，其示意图见图 S1a，即

$$V_{\mathbf{ij}}^{dp} = (-1)^{M_{\mathbf{ij}}^{dp}} t_{pd}, \quad V_{\mathbf{jj}'}^{pp} = (-1)^{M_{\mathbf{jj}'}^{pp}} t_{pd} \tag{S2}$$

（其中 $t_{pd(p)}$ 是杂化的振幅），对于最近 $d$-$p$ 近邻和最近及次近邻 $p$-$p$近邻均如此。以最近邻 $d$-$p$ 距离为单位长度 $a = 1$，则有

- $M_{\mathbf{ij}}^{dp} = 0$ if $\mathbf{j} = \mathbf{i} - \hat{x}$ or $\mathbf{i} + \hat{y}$ and $M_{\mathbf{ij}}^{dp} = 1$ if $\mathbf{j} = \mathbf{i} + \hat{x}$ or $\mathbf{i} - \hat{y}$.
- $M_{\mathbf{jj}'}^{pp} = 0$ if $\mathbf{j}' = \mathbf{j} - \hat{x} + \hat{y}$ or $\mathbf{j} + \hat{x} - \hat{y}$ and $M_{\mathbf{jj}'}^{pp} = 1$ if $\mathbf{j}' = \mathbf{j} + \hat{x} + \hat{y}$ or $\mathbf{j} - \hat{x} - \hat{y}$.

从图 S1a 可以看出，轨道的相位以颜色表示。 $M^{dp}{}_{\mathbf{ij}}$、 $M^{pp}{}_{\mathbf{jj}'}$的符号由这些相位相乘得到。我们还考虑了次近邻 $p$-$p$ 跃迁，其 $V^{pp}{}_{\mathbf{jj}'} = -t'_{pp}$，并将所有其他更远距离的跃迁矩阵元设为零。更多详情请参见参考文献 [3, 69]。

现在，我们按照图 $p^{\dagger}{}_{\mathbf{j}\sigma}$ 和 $d^{\dagger}{}_{\mathbf{i}\sigma}$ 所示，对轨道进行变换S1b，使得变换后跃迁的符号处处为负。更确切地说，这相当于

$$\hat{p}_{\mathbf{j}} \to -(-1)^{M_{\mathbf{ij}}^{pd}} \hat{p}_{\mathbf{j}}, \tag{S3}$$

即每隔一个晶胞，我们就改变 $\hat{}$ 的符号$p_{\mathbf{j}}$ 算符，见图 S1c。在此变换下，

$$\sum_{\langle \mathbf{i},\mathbf{j} \rangle,\sigma} V_{\mathbf{ij}}^{dp} \left( \hat{d}_{\mathbf{i}\sigma}^{\dagger} \hat{p}_{\mathbf{j}\sigma} + \text{h.c.} \right) \to -t_{pd} \sum_{\langle \mathbf{i},\mathbf{j} \rangle,\sigma} (-1)^{M_{\mathbf{ij}}^{dp} + M_{\mathbf{ij}}^{dp}} \left( \hat{d}_{\mathbf{i}\sigma}^{\dagger} \hat{p}_{\mathbf{j}\sigma} + \text{h.c.} \right) = -t_{pd} \sum_{\langle \mathbf{i},\mathbf{j} \rangle,\sigma} \left( \hat{d}_{\mathbf{i}\sigma}^{\dagger} \hat{p}_{\mathbf{j}\sigma} + \text{h.c.} \right) \tag{S4}$$

and

$$\sum_{\langle\langle \mathbf{j},\mathbf{j}' \rangle\rangle,\sigma} V_{\mathbf{jj}'}^{pp} \left( \hat{p}_{\mathbf{j}\sigma}^{\dagger} \hat{p}_{\mathbf{j}'\sigma} + \text{h.c.} \right) \to t_{pp} \sum_{\langle\langle \mathbf{j},\mathbf{j}' \rangle\rangle,\sigma} (-1)^{M_{\mathbf{ij}}^{pd} + M_{\mathbf{ij}'}^{pd} + M_{\mathbf{jj}'}^{pp}} \left( \hat{p}_{\mathbf{j}\sigma}^{\dagger} \hat{p}_{\mathbf{j}'\sigma} + \text{h.c.} \right) = -t_{pp} \sum_{\langle\langle \mathbf{j},\mathbf{j}' \rangle\rangle,\sigma} \left( \hat{p}_{\mathbf{j}\sigma}^{\dagger} \hat{p}_{\mathbf{j}'\sigma} + \text{h.c.} \right). \tag{S5}$$

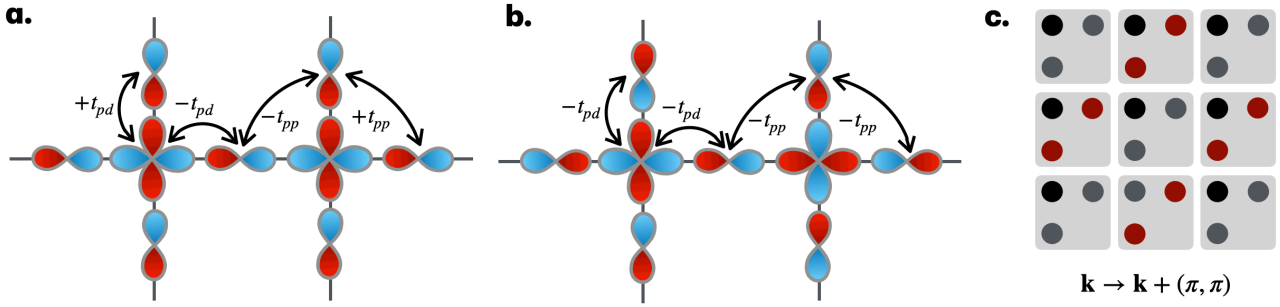


图 S1。 **a**。 带有铜 $d_{x^2-y^2}$ 和氧 $p_{x\text{的氧化铜层轨道及其显式相位}y}$ 轨道。 **b**。 经过规范变换方程（S3）后的氧化铜层轨道。 **c**。 方程（S3）的变换会改变每隔一个晶胞处 $p_{\mathbf{j}}$ 算符的符号，从而使准动量从 $\mathbf{k} \to \mathbf{k} + (\pi, \pi)$ 重新定义。

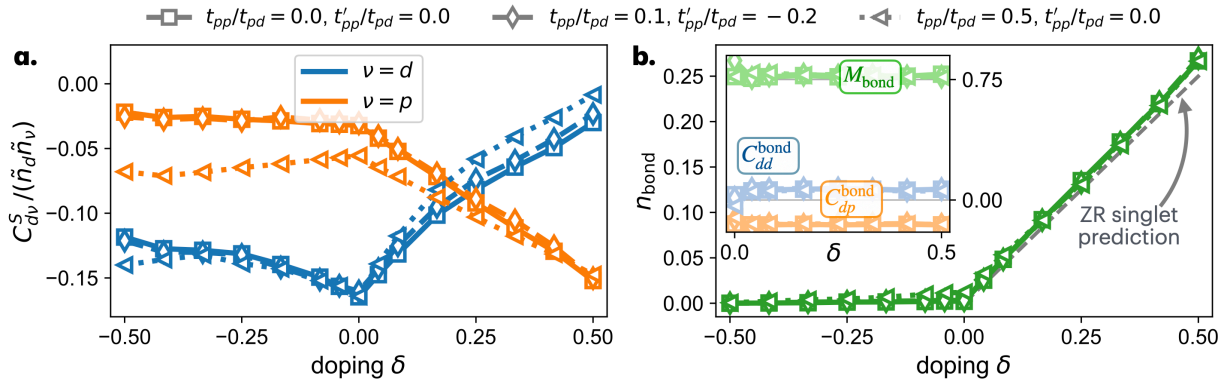


图 S2. 对含有 $12 \times 2$ 个晶胞（72 个格点）的圆柱，针对与铜酸盐相关的两组参数（$t_{pp}/t_{pd} = 0.0$(0.5)， $t'_{pp}/t_{pd} = 0.0$）以及实验上可实现的一组参数（$t_{pp}/t_{pd} = 0.1$, $t'_{pp}/t_{pd} = -0.2$），改变掺杂 $\delta = N_{\rm h}/(L_xL_y)$ 得到的数值结果。a. 平均最近邻自旋关联 $C^S_{d\nu}$，见式 (3)，其中 $\nu = d(p)$ 分别以蓝色（橙色）表示，并除以平均 $\nu$ 格点密度 $\tilde{n}_\nu$ （未进行双占据 - 空穴分辨）。b. 占据的 $d$-$p$-$d$ 键数量（见示意图）。对于张 - 里斯单态，我们预期 $N_{\rm bond} = N_{\rm h}/2$ （灰线），见补充材料 [37]。插图显示了自旋关联 $C^{\rm bond}_{d\nu}$（蓝色和橙色）以及总自旋 $M_{\rm bond}$ （绿色），二者均针对占据的 $d$-$p$-$d$ 键进行后选择。所有计算中，我们设定 $U_d/t_{pd} = 8.0$, $U_p/t_{pd} = 3.0$ $\Delta_{pd}/t_{pd} = 3.5$ 2000 和 。所有可观测量均由从矩阵乘积态抽取的快照计算得到；表示均值误差的误差棒小于标记。

对于次近邻 $p$-$p$ 跃迁，该变换会产生正的重叠 $+t'_{pp}$。变换后的总哈密顿量由式（S2）给出。注意，此变换不会改变涉及两个 $\hat{}$ 的任何可观测量$p_i$ 算符，例如密度、密度关联或自旋关联。不过，在考虑涉及 S3）所示变换的配对关联时，例如涉及 $p$能带的配对关联时，必须考虑该变换。此外，该变换还会重新定义准动量 $\mathbf{k} \to \mathbf{k} + (\pi,\ \pi)$，如图 S1c 所示。

### 附录 B：与铜酸盐公认参数集的比较

如正文所述，文献中铜酸盐的公认埃默里参数为 $t_{pp}/t_{pd} = 0, \ldots, 0.5$;$t'_{pp}/t_{pd} = 0, \ldots, t_{pp}/t_{pd}$; $\Delta_{pd}/t_{pd} = 2.8, \ldots, 3.5$; $U_d/t_{pd} = 4.5, \ldots, 9.2$; 以及 $U_p/t_{pd} = 0, \ldots, 5.7$。尽管我们提出的实验装置可以实现大多数参数 —— 包括 $U_d$, $U_p$, 和 $\Delta_{pd}$ ——但跃迁项受到限制，只能取 $t_{pp}/t_{pd} \approx 0.1$，而 $t'_{pp}/t_{pd} \approx -0.2$ 相对较大。不过，图 S2 显示， $t'_{pp}$ 的具体取值不会显著改变我们研究的可观测量。将 $t_{pp}$ 从 $t_{pp} = 0.0$ 显著增大到 $t_{pp}/t_{pd} = 0.5$，会使 $C^S_{dp}/(\tilde{n}_d\tilde{n}_p)$ 略有变化，但其他所有可观测量几乎保持不变（见三角形标记）。

### 附录 C：对角密度基中的张-赖斯单态数目

本节将解释为何在空穴掺杂铜酸盐区中， $d$-$p$-$d$ 键的数量 $N_{\rm bond}$ 被观察到按 $N_{\rm bond} = N_{\rm h}/2$ 的比例缩放。

根据正文中的分析，我们预计键的数量 $N_{\rm bond}$ 与张-赖斯单态的数量成正比；每引入一个掺杂剂 $N_{\rm h}$，就会形成一个张-赖斯单态。额外的因子 $1/2$ 源于 $N_{\rm bond}$ 是在对角密度基中测量的，而实际的张-赖斯密度由 $\langle(\hat{}\psi^{\rm ZR}_{\mathbf{i}})^\dagger\ \hat{}\psi^{\rm ZR}_{\mathbf{i}}\rangle$ 给出，其中 $\psi^{\rm ZR}_{\mathbf{i}} = \frac{1}{\sqrt{2}}\left(\hat{}d_{\mathbf{i}\uparrow}\hat{}P^S_{\mathbf{i}\downarrow} - \hat{}d_{\mathbf{i}\downarrow}\hat{}P^S_{\mathbf{i}\uparrow}\right)$，并且

$$\hat{P}^{(S,A)}_{\mathbf{i}\sigma} = \frac{1}{2}\sum_{\mathbf{l}:\langle\mathbf{i},\mathbf{l}\rangle}(\pm 1)^{M_{\mathbf{i},\mathbf{l}}}\,\hat{p}_{\mathbf{l}\sigma}, \tag{S1}$$

因此也包含非对角项。

通过计数被占据的 $d$-$p$-$d$ 键所测得的 $\langle(\hat{}\psi^{\rm ZR}_{\mathbf{i}})^\dagger\ \hat{}\psi^{\rm ZR}_{\mathbf{i}}\rangle$ 的对角贡献为

$$\mathrm{Diag}\left[\sum_{\mathbf{i}}\langle(\hat{\psi}^{\rm ZR}_{\mathbf{i}})^\dagger\hat{\psi}^{\rm ZR}_{\mathbf{i}}\rangle\right] = \frac{1}{8}\sum_{\mathbf{i}}\langle\hat{n}^d_{\mathbf{i}}\sum_{\mathbf{l}:\langle\mathbf{i},\mathbf{l}\rangle}\hat{n}^p_{\mathbf{l}}\rangle \approx \frac{1}{8}\sum_{\mathbf{i}}\langle\hat{n}^d_{\mathbf{i}}\rangle\sum_{\mathbf{l}:\langle\mathbf{i},\mathbf{l}\rangle}\langle\hat{n}^p_{\mathbf{l}}\rangle \approx \frac{1}{8}\sum_{\mathbf{i}}1\cdot\sum_{\mathbf{l}:\langle\mathbf{i},\mathbf{l}\rangle}\frac{N_{\rm h}}{L_xL_y} = \frac{N_{\rm h}}{2}. \tag{S2}$$

在此，我们假设 $d$-格点处于半填充状态，而额外的 $N_{\mathrm{h}}$ 空穴位于 $p$-格点上。

### 附录 D：张-赖斯能标的估算

下文将说明，张-赖斯态形成非常稳健，因为它受到大能隙的保护。通过微扰论证（参见文献 [3]）或对单个张-赖斯基本单元进行精确对角化，即一个被四个 $d$格点包围的 $p$格点，可以清楚地看出这一点。

为定义张-赖斯单态，我们遵循文献 [3]，并考虑周围的四个 $p$格点 $\{\mathbf{i}\}$，它们围绕着一个$p$格点。它们的叠加由式（S1）给出，其中经过规范变换（S3）后，$+(-)$对应于$S(A)$态。随后，$S$ 和 $A$ 均可与相邻的 $d$格点形成自旋单态或三重态。

对于 $t_{pd} \ll \Delta_{pd} < U_d$，暂且令 $t_{pp}^{(\prime)} = 0$，可以在 $t_{pd}/(U_d - \Delta_{pd})$、$t_{pd}/(U_p + \Delta_{pd})$ 中运用二阶微扰理论，求出单态和三重态的能量：对于 $S$ 态，单态（$s$）和三重态（$t$）的能量为 [3]

$$E_{Ss} = -8t_{pd}^2\left(\frac{1}{U_p + \Delta_{pd}} + \frac{1}{U_d - \Delta_{pd}}\right)$$

以及 $E_{St} = E_{At} = 0$；$A$ 的能量为 [3]

$$E_{As} = -4t_{pd}^2 \frac{1}{U_p + \Delta_{pd}}.$$

这导致能隙 $\Delta E = E_{As} - E_{Ss}$。我们将这一预测 $\Delta E$与精确对角化（ED）的结果进行比较，结果针对一个方格上的两个空穴，该方格由一个 $d$格点和周围四个 $p$格点组成。图 S3 （左）显示，预测的微扰能隙（红线）与精确对角化得到的能谱（第二低的蓝线）吻合良好，适用于 $t_{pp} = 0$ 和 $t_{pd} \ll \Delta_{pd} < U_d$。在微扰处理过程中，我们假设 $t_{pp} = 0$；不过，对于 $t_{pp} \neq 0$，吻合度仍然相当不错。对于更现实的参数选择（图S3，右），精确对角化得到的基态与第一激发态之间的能隙仍与微扰预测较为吻合。此外，我们注意到，精确对角化和微扰理论得到的能隙都很大，量级为 $\geq 1.5t_{pd}$。

### 附录 E：能带混合拟合与 Wannier 态构造

我们考虑布洛赫本征态 $\left|\phi_{\mathbf{q}}^{(n)}\right\rangle$，它们是通过在均匀的准动量网格上对光学晶格中的单粒子哈密顿量进行对角化得到的（其势由式2给出），该网格$\mathbf{q}$ 覆盖第一布里渊区（BZ）。对于每个$\mathbf{q}$，本征问题

$$\tilde{\mathcal{H}}(\mathbf{q})\left|\phi_{\mathbf{q}}^{(n)}\right\rangle = \varepsilon_{\mathbf{q}}^{(n)}\left|\phi_{\mathbf{q}}^{(n)}\right\rangle \tag{S1}$$

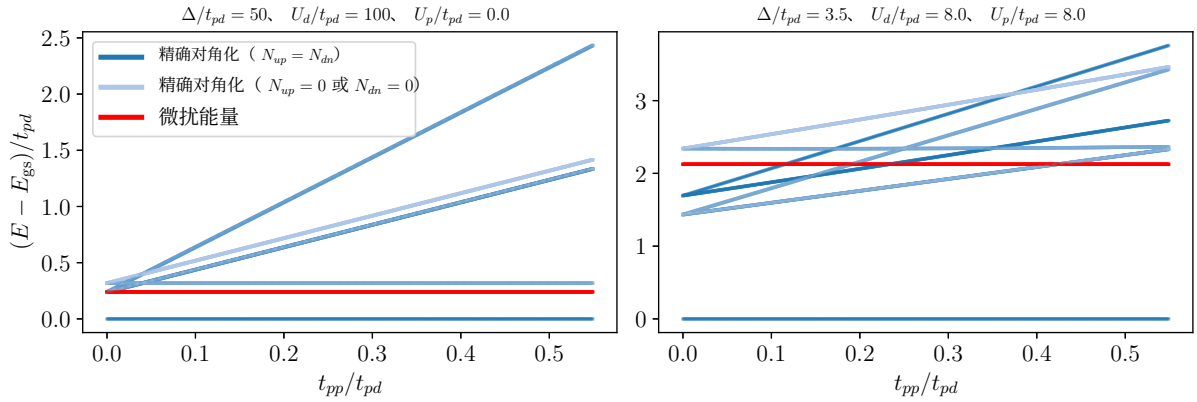


图 S3. 精确对角化（精确对角化）能量 $E$ 减去基态能量 $E_{\mathrm{gs}}$，针对含一个 $d$格点及四个周围 $p$格点的方格上的两个空穴（蓝色），并与两个面板中两种不同参数选择下的微扰估计 $E_{Ss} - E_{As}$（红色）进行比较。

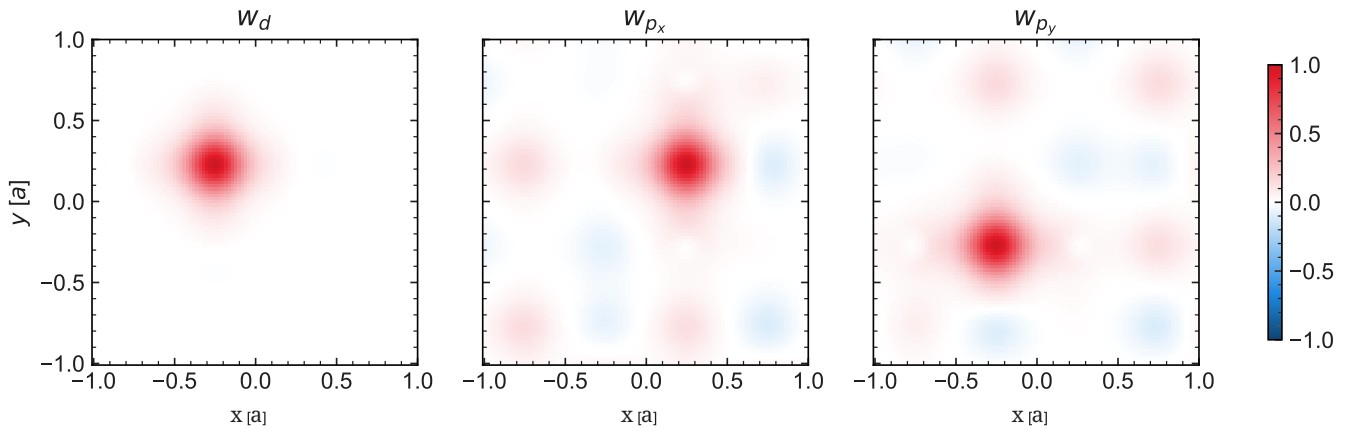


图 S4. $w_d$、 $w_{p_x}$ 和$w_{p_y}$的瓦尼尔函数，如图1e所示。 $a$ 为晶胞间距，即波长的一半，且网格沿各轴平移了 $a/4$，以与晶胞坐标轴对齐。此处我们以 $V = 15\,\mathrm{E_r}$ 和 $\theta = 0.025$ rad为例，并拟合了 $\Delta/t_{\mathrm{pd}} = 3.5$

定义了一组由 $n$ 标记的能带态。

为构造以轨道 $\nu$ 为中心、且具有 $\nu = d$、 $p_x$、 $p_y$的瓦尼尔态，我们将目标态表示为布洛赫本征态的$\mathbf{q}$空间叠加，

$$|w_\nu\rangle = \frac{1}{\sqrt{N_s}} \sum_{\mathbf{q}\in \mathrm{BZ}} \sum_n s^{(n)}_{\mathbf{q},\nu}\, e^{-i\theta^{(n)}_{\mathbf{q}}} \left|\phi^{(n)}_{\mathbf{q}}\right\rangle . \tag{S2}$$

其中 $N_s$ 为所采样的$\mathbf{q}$ 点数目。混合权重 $s^{(n)}_{\mathbf{q}}$、$\nu$ 指定轨道 $l$ 在能带子空间中的分布方式，而相位 $\theta^{(n)}_{\mathbf{q}}$则固定一种规范，从而得到局域化的实空间瓦尼尔表示。

另一方面，对于 Emery 模型的紧束缚描述，也可以在准动量 $\mathbf{q} = (q_x, q_y)$ 下，将哈密顿量 ˜写成动量空间 $\mathcal{H}_{\mathrm{TB}}(\mathbf{q})$ 中的形式：[16]

$$\begin{pmatrix} -2t_{dd}(\cos(q_x a) + \cos(q_y a)) & -2t_{pd}\cos\frac{q_x a}{2} & -2t_{pd}\cos\frac{q_y a}{2} \\ -2t_{pd}\cos\frac{q_x a}{2} & \Delta_{pd} - 2t_{pp'}(\cos(q_x a) + \cos(q_y a)) & -2t_{pp}\left(\cos\frac{(q_x+q_y)a}{2} + \cos\frac{(q_x-q_y)a}{2}\right) \\ -2t_{pd}\cos\frac{q_y a}{2} & -2t_{pp}\left(\cos\frac{(q_x+q_y)a}{2} + \cos\frac{(q_x-q_y)a}{2}\right) & \Delta_{pd} - 2t_{pp'}(\cos(q_x a) + \cos(q_y a)) \end{pmatrix}. \tag{S3}$$

如果光学晶格能带能够很好地由该紧束缚模型描述，就可以优化跃迁和现场参数，使得 $\tilde{\mathcal{H}}_{\mathrm{TB}}(\mathbf{q})$ 的本征能量与数值计算得到的 $\varepsilon^{(n)}_{\mathbf{q}}$在 $n = 1,2,3$ 处相匹配。

确定紧束缚参数后，我们还可以得到轨道基（$d, p_x, p_y$）与布洛赫能带基之间的幺正变换。该变换直接给出混合权重 $s^{(n)}_{\mathbf{q}},_{\nu_o}$。剩余的规范自由度通过选择相位来固定，使得位于格点中心$\mathbf{r}_\nu$ 处的布洛赫函数为实数且为正：

$$\theta^{(n)}_{\mathbf{q}} = \arg \phi^{(n)}_{\mathbf{q}}(\mathbf{r}_\nu) \tag{S4}$$

采用这一选择后，瓦尼尔函数可由公式 S2 得到。如图 S4 所示，我们给出了构造的瓦尼尔函数示例，其参数为 $V_0 = 15\,E_r$和 $\theta = 0.025$ 弧度。

轨道 $\nu \in \{d, p_x, p_y\}$ 的现场相互作用 $U_\nu$ 为

$$U_\nu = g \int d^2\mathbf{r}\, |w_\nu(\mathbf{r})|^4 \int \mathrm{d}z |w_\perp(z)|^4 \tag{S5}$$

其中 $g = 4\pi\hbar a_s/m$ 为相互作用强度，其中 $a_s$ $s$波散射长度（可通过 Feshbach 共振调节[56]），以及 $w_\perp$（$z$）为横向方向上的 Wannier 函数。这样， $U_\nu$ 相对于隧穿振幅或能带间隙的整体尺度可以方便地调节。然而，相对在位相互作用，即 $p$ 与 $d$ 轨道之间的相互作用，受到轨道形状通过重叠积分 $\int d\mathbf{r}\,|w_\nu$（$\mathbf{r}$）$|^4$ 的约束。在我们提出的方案中可实现的比值如图 2 所示。可实现的比值 $U_p/U_d \approx 0.6$，……，0.8 处于良好

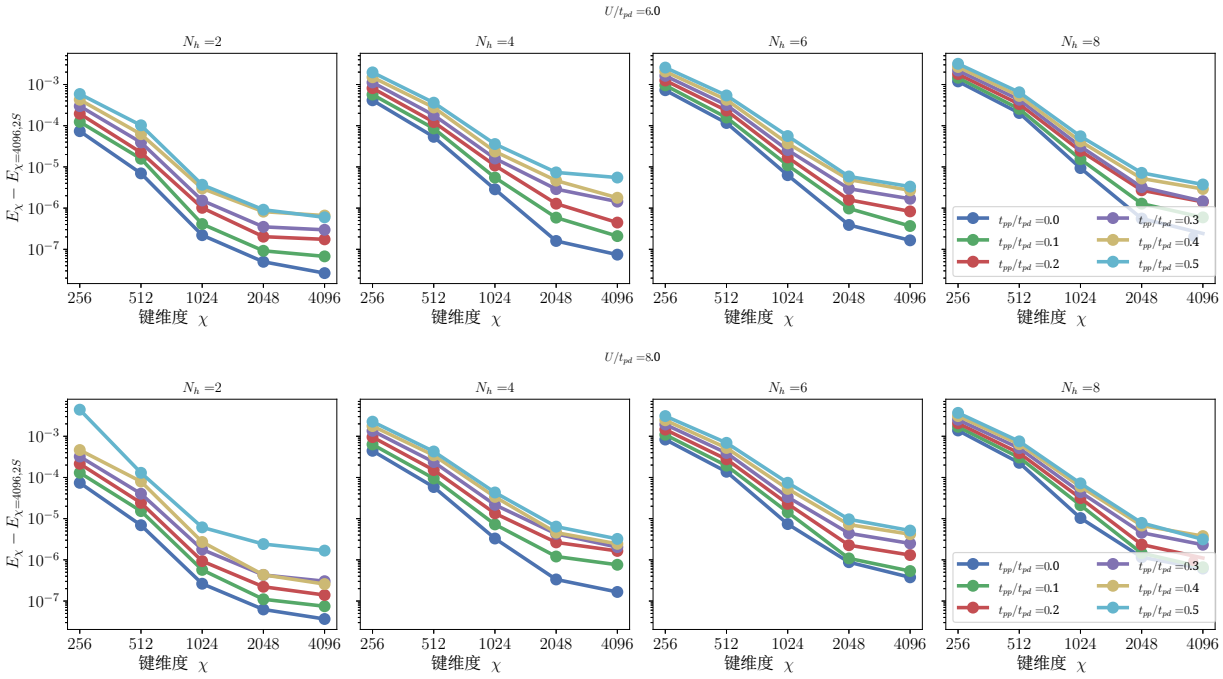


图 S5. 对于短方向采用周期性边界的 $12 \times 2$ 晶胞（72 个格点），不同键维数 $\chi$ 下的能量 $E_\chi$。我们考虑不同的 $U/t_{pd}$ 取值（上、下两幅图）、空穴掺杂 $N_\mathrm{h} = 2$、4、6、8（从左到右排列的各列）以及 $t_{pp}/t_{pd}$（不同颜色）。所示能量由单点密度矩阵重整化群计算得出，并与采用最高键维数 $\chi = 4096$ 和双格点（$2S$）算法得到的能量 $E_{\chi=4096,\ 2S}$进行比较。

的吻合，与数值 $U_p/U_d < 1$ 一致；这些数值见于文献[5, 11, 16, 37–45]。注意，对于小掺杂，仅存在平均 $p$格点密度 $N_\mathrm{h}/2 \ll 1$，因此即使对于 $U_p = 0$，双重占据的概率也非常低。因此，$U_p$ 的精确值预计不会大幅改变该体系的物理性质。

## 附录 F：实验上可实现的哈密顿量

为了了解原则上我们能够实现哪一类模型，我们进行粒子-空穴变换 $U_{ph}$，并

$$\hat{U}_{ph}^\dagger \hat{d}_{\mathbf{i}\sigma} \hat{U}_{ph} = \hat{d}_{\mathbf{i}\sigma}^\dagger, \qquad \hat{U}_{ph}^\dagger \hat{p}_{\mathbf{i}\sigma} \hat{U}_{ph} = \hat{p}_{\mathbf{i}\sigma}^\dagger. \tag{S1}$$

变换后的哈密顿量为

$$\hat{\mathcal{H}}^{ph} = +\, t_{pd} \sum_{\langle \mathbf{ij} \rangle \sigma} (\hat{d}_{\mathbf{i}\sigma}^\dagger \hat{p}_{\mathbf{j}\sigma} + \mathrm{h.c.}) + t_{pp} \sum_{\langle\langle \mathbf{jj'} \rangle\rangle \sigma} (\hat{p}_{\mathbf{j}\sigma}^\dagger \hat{p}_{\mathbf{j'}\sigma} + \mathrm{h.c.}) - \Delta_{pd} \sum_{\mathbf{j},\sigma} \hat{p}_{\mathbf{j}\sigma}^\dagger \hat{p}_{\mathbf{j}\sigma} + \sum_{\nu \in \{p,d\}} U_\nu \sum_{\mathbf{i}} \hat{n}_{\mathbf{i}\uparrow}^\nu \hat{n}_{\mathbf{i}\downarrow}^\nu. \tag{S2}$$

## 附录 G：数值结果

### 1. 收敛

所有数值计算均使用 SyTen 软件包中实现的矩阵乘积态完成 [61, 62]，$U(1)$ 电荷和 $S_z$ 自旋守恒对应的对称性。对于偶数（奇数）粒子数，我们在$S_z = 0 (0.5)$ 扇区中计算。我们保留的最大键维数为 $\chi = 4096$，前四个阶段使用单点密度矩阵重整化群（DMRG）进行优化，键维数依次为 $\chi = 256, \ldots, 4096$；最后一个阶段使用双点 DMRG，$\chi = 4096$。图S5展示了不同哈密顿量参数选择和空穴掺杂下各阶段结束后的能量。最大截断误差为 $10^{-8}$。

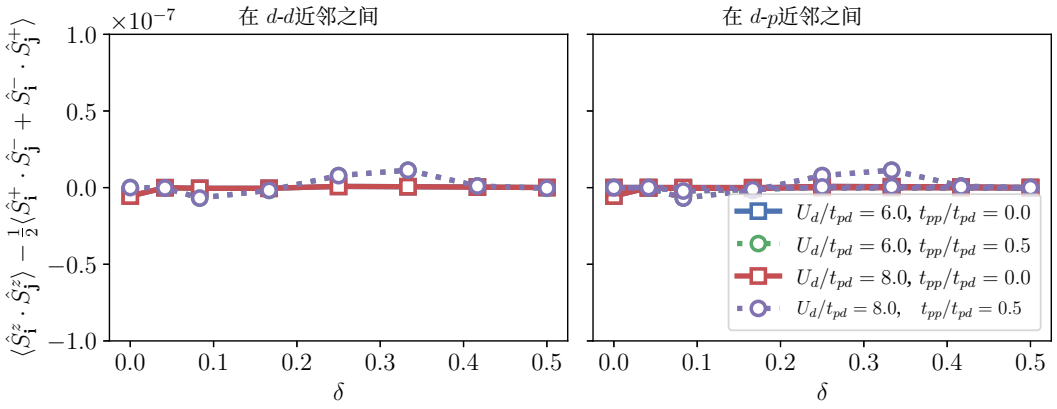


图 S6. 对于包含 $L_x \times L_y = 12 \times 2$ 个格点、具有不同掺杂 $\delta$ 的系统，$z$ 方向与 $x$，$y$ 平面中最近邻自旋关联的差异，$\langle \hat{S}_i^z \cdot \hat{S}_j^z \rangle - \frac{1}{2}\langle \hat{S}^{+}{}_i \cdot \hat{S}^{-}{}_j + \hat{S}^{-}{}_i \cdot \hat{S}^{+}{}_j \rangle$。

## 附录 H：SU(2) 不变性

在 $M_{\mathrm{bond}}$ 的定义中，式（4）假设基态具有 SU(2) 不变性。图 S6 通过考察 $z$ 方向与 $x$，$y$ 平面内最近邻自旋关联的差异，表明数值计算得到的基态确实具有这种 SU(2) 不变性，$\langle \hat{S}_i^z \cdot \hat{S}_j^z \rangle - \frac{1}{2}\langle \hat{S}^{+}{}_i \cdot \hat{S}^{-}{}_j + \hat{S}^{-}{}_i \cdot \hat{S}^{+}{}_j \rangle$。