

博士学位论文

自旋系综体系中的量子资源实验研究

**EXPERIMENTAL STUDY OF QUANTUM
RESOURCES IN SPIN-ENSEMBLE SYSTEMS**

研 究 生：刘鸿枫

指 导 教 师：鲁大为副教授

南方科技大学

二〇二六年五月

国内图书分类号：O413

国际图书分类号：530.145

学校代码：14325

密级：公开

理学博士学位论文

自旋系统体系中的量子资源实验研究

学位申请人：刘鸿枫

指导教师：鲁大为副教授

学科名称：物理学

答辩日期：2026年5月

培养单位：物理系

学位授予单位：南方科技大学

EXPERIMENTAL STUDY OF QUANTUM RESOURCES IN SPIN-ENSEMBLE SYSTEMS

A dissertation submitted to
Southern University of Science and Technology
in partial fulfillment of the requirement
for the degree of
Doctor of Science
in
Physics

by
Liu Hongfeng

Supervisor: Associate Prof. Dawei Lu

May, 2026

学位论文答辩委员会名单

答辩委员会名单

主席	李俊	教授	深圳大学
委员	周宇	教授	哈尔滨工业大学（深圳）
	何洪涛	副教授	南方科技大学
	陈远珍	副教授	南方科技大学
	鲁大为	副教授	南方科技大学
秘书	杜鹏	博士后	南方科技大学

DECLARATION OF ORIGINALITY AND AUTHORIZATION OF THESIS, SOUTHERN UNIVERSITY OF SCIENCE AND TECHNOLOGY

Declaration of Originality of Thesis

I hereby declare that this thesis is my own original work under the guidance of my supervisor. It does not contain any research results that others have published or written. All sources I quoted in the thesis are indicated in references or have been indicated or acknowledged. I shall bear the legal liabilities of the above statement.

Signature: 刘江峰

Date: 2026/5/19

Declaration of Authorization of Thesis

I fully understand the regulations regarding the collection, retention and use of thesis of Southern University of Science and Technology.

1. Submit the electronic version of thesis as required by the University.
2. The University has the right to retain and send the electronic version to other institutions that allow the thesis to be read by the public.
3. The University may save all or part of the thesis in certain databases for retrieval, and may save it with digital, cloud storage or other methods for the purpose of teaching and scientific research. I agree that the full text of the thesis can be viewed online or downloaded within the campus network.

(1) I agree that once submitted, the thesis can be retrieved online and the first 16 pages can be viewed within the campus network.

(2) I agree that ☒ upon submission/ ☐ 12 months after submission, the full text of the thesis can be viewed and downloaded by the public.

4. This authorization applies to decrypted confidential thesis.

Signature of Author: 刘江峰

Date: 2026/5/19

Signature of Supervisor: 刘江峰

Date: 2026/5/19

摘 要

量子系统中的非经典关联是量子信息科学的重要资源。长期以来，人们对量子资源的认识主要建立在空间维度上的量子纠缠之上，而对时间维度的量子关联以及纠缠之外非经典关联的实验研究仍相对有限。本文以核磁共振（NMR）自旋系统平台为实验基础，围绕“自旋系统平台中的量子资源实验研究”这一主题，系统开展了时间量子关联的表征与探测、量子因果推断以及非纠缠型关联在量子机器学习中的应用研究，旨在探索在系统量子平台上如何识别、刻画并利用不同形式的量子资源。

在时间量子关联的研究中，我们首先引入赝密度矩阵（PDM）作为统一描述多时刻量子系统的工具，并基于散射线路提出相应的实验测量方案，在四比特 NMR 量子处理器上实现了两时刻 PDM 的测量与重构。实验结果与理论预期吻合良好，表明该方案能够有效刻画系统在时间维度上的非经典关联。进一步地，针对完整层析在系统规模增大时开销迅速增长的问题，我们提出了一种更高效的探测方案。该方案无需完整重构 PDM，而是通过估计与其非经典性相关的关键物理量，实现对时间量子关联的有效判别。实验结果表明，该方法在显著降低测量复杂度的同时，仍能够可靠地区分经典与量子时间关联，为更大规模体系中的相关研究提供了可行路径。

在量子因果推断方面，我们进一步考察了时间量子关联在因果结构识别中的作用。基于 PDM 的相关判据，我们在 NMR 平台上系统研究了么正演化、完全退相干、共同原因以及混合因果结构等多种典型场景。结果表明，仅通过实验获得的统计信息，而无需额外的干预操作，即可判断实验数据与不同因果结构之间的相容性。特别是在完全退相干的情况下，即使量子相干性已明显减弱，因果方向仍然可以被识别，这说明时间量子关联在开放量子系统中的因果分析中仍具有重要作用。

除时间量子关联外，本文还研究了纠缠之外的另一类量子资源，即确定性单量子比特量子计算（DQC1）模型中的非纠缠型非经典关联。基于这一模型，我们提出了神经量子嵌入方案 NQE-DQC1，通过结合经典神经网络与量子特征映射，提升数据在量子特征空间中的可分性。在 NMR 平台上针对手写数字二分类任务的

实验中，引入该嵌入方案后，分类准确率由传统特征映射的 54.0% 提升至 98.0%。进一步地，我们在 IBM 超导量子处理器上完成了跨平台验证，表明该方案具有良好的可迁移性，也展示了系综平台在量子机器学习研究中的应用潜力。

综上，本文围绕自旋系综体系中的量子资源问题，建立了从时间量子关联的实验表征与高效探测，到因果推断，再到非纠缠型关联任务应用的一条较为完整的研究链条。相关结果表明，自旋系综平台不仅能够为多类量子资源的实验研究提供稳定可靠的实现基础，也为理解和利用纠缠之外的非经典量子效应提供了新的实验视角。

关键词：量子资源；时间量子关联；量子因果推断；DQC1；核磁共振

ABSTRACT

Non-classical correlations in quantum systems are important resources for quantum information science. Much of our current understanding of quantum resources has been built upon spatial entanglement, whereas experimental studies of temporal quantum correlations and non-classical correlations beyond entanglement remain relatively limited. Based on the nuclear magnetic resonance (NMR) spin-ensemble platform, this thesis systematically investigates the characterization and detection of temporal quantum correlations, quantum causal inference, and the application of entanglement-free non-classical correlations in quantum machine learning. The main goal is to explore how different forms of quantum resources can be identified, characterized, and utilized in spin-ensemble systems.

For temporal quantum correlations, we first introduce the pseudo-density matrix (PDM) as a unified tool for describing multi-time measurement statistics, and implement a corresponding measurement scheme based on scattering circuits on a four-qubit NMR quantum processor. The experimentally reconstructed two-time PDMs agree well with theoretical expectations, showing that this approach can effectively capture non-classical correlations in the temporal domain. Furthermore, to overcome the rapidly increasing cost of full tomography as the system size grows, we develop a more efficient detection scheme. Instead of reconstructing the full PDM, this method probes key quantities related to temporal non-classicality and thus enables effective discrimination of temporal quantum correlations. The experimental results demonstrate that it can reliably distinguish classical from quantum temporal correlations while substantially reducing the measurement cost, providing a practical route for studies in larger and more complex systems.

For quantum causal inference, we further examine how temporal quantum correlations can be used to identify causal structures. Based on criteria derived from the PDM framework, we experimentally study several representative scenarios on the NMR platform, including unitary evolution, fully decohering dynamics, common-cause structures, and mixed causal structures. Our results show that the compatibility between experimen-

tal data and different causal models can be determined from observed statistics alone, without requiring additional interventions. In particular, even under complete decoherence, where quantum coherence is strongly suppressed, the causal direction can still be identified. This indicates that temporal quantum correlations remain useful for causal analysis in open quantum systems.

Beyond temporal correlations, this thesis also investigates another type of quantum resource beyond entanglement, namely the non-classical correlations present in the deterministic quantum computation with one qubit (DQC1) model. Based on this model, we propose a neural quantum embedding scheme, NQE-DQC1, which combines classical neural-network optimization with quantum feature mapping to enhance class separability in quantum feature space. In NMR experiments on the MNIST handwritten-digit binary classification task, the classification accuracy is improved from 54.0% using conventional feature maps to 98.0% with the proposed embedding scheme. We further validate its cross-platform transferability on an IBM superconducting quantum processor, demonstrating its potential for broader applications in quantum machine learning.

In summary, this thesis establishes a relatively complete research line on quantum resources in spin-ensemble systems, ranging from the experimental characterization and efficient detection of temporal quantum correlations to causal inference and task-oriented applications of entanglement-free correlations. These results show that spin-ensemble platforms provide a reliable experimental setting for studying multiple forms of quantum resources, and offer a new perspective for understanding and exploiting non-classical quantum effects beyond entanglement.

Keywords: quantum resources; temporal quantum correlations; quantum causal inference; DQC1; NMR

TABLE OF CONTENTS

摘 要.....	I
ABSTRACT	III
LIST OF SYMBOLS AND ACRONYMS	VIII
CHAPTER 1 绪论.....	1
1.1 量子资源与量子关联	1
1.1.1 空间量子关联：以量子纠缠为代表	2
1.1.2 时间量子关联	7
1.2 系综量子体系与实验平台概述	11
1.2.1 单量子体系与系综量子体系的实现范式	11
1.2.2 多时刻量子关联的实验可实现性	13
1.2.3 典型系综量子实验平台介绍	13
1.2.4 核磁共振体系及其在本论文中的应用	15
1.3 论文研究内容和结构安排	16
CHAPTER 2 核磁共振量子信息处理基础.....	19
2.1 NMR 量子处理器的物理基础	20
2.1.1 核自旋与塞曼效应	20
2.1.2 化学位移	22
2.1.3 自旋间耦合相互作用	22
2.1.4 NMR 系统的总哈密顿量与旋转坐标系	23
2.2 NMR 中的量子态制备	24
2.2.1 热平衡态与高温近似	25
2.2.2 赝纯态的概念与意义	25
2.2.3 梯度磁场脉冲	26
2.2.4 空间平均法制备赝纯态	27
2.3 NMR 中的量子门实现	30
2.3.1 单比特量子门：射频脉冲操控	30
2.3.2 双比特量子门： J 耦合演化	31

TABLE OF CONTENTS

2.3.3	GRAPE 脉冲优化技术	32
2.4	NMR 的测量与信号读取	33
2.4.1	自由感应衰减信号与傅里叶变换	34
2.4.2	从谱图中提取量子态信息	39
2.4.3	密度矩阵对角元素的读取	40
2.4.4	弛豫与退相干	41
2.5	NMR 体系与散射线路及 DQC1 模型的适配性分析	42
2.5.1	散射线路与 NMR 系综测量的天然契合	42
2.5.2	DQC1 模型与 NMR 混态初始化的自然匹配	43
2.5.3	本论文实验中使用的 NMR 量子处理器	44
2.6	本章小结	44
CHAPTER 3	基于赝密度矩阵的时序关联探测与表征	46
3.1	赝密度矩阵框架	47
3.1.1	PDM 表达式	48
3.1.2	PDM 封闭形式	50
3.2	散射线路测量 PDM	52
3.2.1	散射线路	52
3.2.2	实验设置及结果	54
3.3	随机测量高效探测 PDM 负性	59
3.3.1	PDM 负性判据与二阶矩	60
3.3.2	单一时刻下虚拟制备 PDM 线路	63
3.3.3	随机测量估计二阶矩	66
3.3.4	实验实现与验证	69
3.3.5	实验结果	73
3.4	总结	74
CHAPTER 4	基于时间关联的量子因果推断	76
4.1	基于量子时序关联的因果推断框架	78
4.1.1	五种可能因果结构下的量子因果推断任务	78
4.1.2	利用时空态与时间不对称性进行因果推断	79

TABLE OF CONTENTS

4.2 不同因果结构的实验实现与结果	81
4.2.1 么正信道下 $A \rightarrow B$ 的因果结构	82
4.2.2 完全退相干信道下 $A \rightarrow B$ 的因果结构	85
4.2.3 共因因果结构	87
4.2.4 $A \rightarrow B$ 与共因混合的因果结构	88
4.3 总结	90
CHAPTER 5 基于 DQC1 的神经量子嵌入	91
5.1 DQC1	92
5.1.1 DQC1 模型的基本结构	93
5.2 基于 DQC1 的神经量子嵌入方案	94
5.3 实验验证与分类结果	98
5.3.1 实验平台与初始化	98
5.3.2 NQE-DQC1 训练过程与效果	100
5.3.3 参数化量子线路的训练与优化	103
5.3.4 分类性能评估	105
5.4 本章小结	108
CONCLUSION	110
REFERENCES	113
APPENDIX A 补充内容	127
ACKNOWLEDGEMENTS	129
RESUME AND ACADEMIC ACHIEVEMENTS	131

LIST OF SYMBOLS AND ACRONYMS

CHSH	Clauser–Horne–Shimony–Holt 不等式 (Clauser–Horne–Shimony–Holt inequality)
CJ	Choi–Jamiołkowski 同构 (Choi–Jamiołkowski isomorphism)
CNOT	受控非门 (controlled-NOT gate)
CPTP	完全正且保迹映射 (completely positive and trace preserving)
DQC1	确定性单量子比特量子计算 (deterministic quantum computation with one qubit)
EPR	Einstein–Podolsky–Rosen 佯谬
FID	自由感应衰减信号 (free induction decay)
GHZ	Greenberger–Horne–Zeilinger 态
GRAPE	梯度上升脉冲工程 (gradient ascent pulse engineering)
HS	Hilbert–Schmidt 内积 (Hilbert–Schmidt inner product)
LG	Leggett–Garg 不等式
LGI	Leggett–Garg 不等式 (Leggett–Garg inequality)
LHVTs	局域隐变量理论 (local hidden-variable theories)
NISQ	噪声中等规模量子器件 (noisy intermediate-scale quantum)
NMR	核磁共振 (nuclear magnetic resonance)
NQE	神经量子嵌入 (neural quantum embedding)
NV	氮空位色心 (nitrogen-vacancy center)
OTOC	非时序关联函数 (out-of-time-ordered correlator)
PCA	主成分分析 (principal component analysis)
PDM	赝密度矩阵 (pseudo-density matrix)
PFG	梯度磁场脉冲 (pulsed field gradient)
POVM	正算子值测度 (positive operator-valued measure)
PPS	赝纯态 (pseudo-pure state)
PQC	参数化量子线路 (parameterized quantum circuit)
QML	量子机器学习 (quantum machine learning)

LIST OF SYMBOLS AND ACRONYMS

RF	射频 (radio frequency)
SWAP	交换门 (swap gate)
B_0	静磁场强度
γ	旋磁比 (gyromagnetic ratio)
J_{ij}	核自旋 i 与 j 之间的标量耦合常数
ν_i	第 i 个核自旋的化学位移频率
ω_0	拉莫尔进动频率 (Larmor frequency)
ρ	密度矩阵
R	赝密度矩阵 (PDM)
T_1	纵向弛豫时间 (spin-lattice relaxation time)
T_2	横向弛豫时间 (spin-spin relaxation time)

CHAPTER 1 绪论

1.1 量子资源与量子关联

量子信息科学的核心目标之一，是识别、刻画并利用量子系统中超越经典物理描述的非经典性质，以实现经典手段难以达到甚至无法实现的信息处理任务。在这一研究纲领中，一个日益重要的统一视角，是将这些能够在特定任务中带来可量化优势的非经典性质理解为“量子资源”(quantum resources)^[1]。一般而言，在给定的实验约束与操作限制下，若某些量子态、量子过程或统计结构所具有的特殊性质不能由相应的自由操作生成，或至少不能在自由操作下增加，而又能够为通信、计算、计量或推断等任务带来可验证的性能提升，则可将其视为一种量子资源。

这一资源化的思想最早在量子纠缠的研究中得到系统发展。在局域操作与经典通信(local operations and classical communication, LOCC)的约束下，纠缠被视为一种不可免费获得且不可任意增加的非经典资源，其存在与否直接关系到量子隐形传态、量子密钥分发等协议的可行性^[2-3]。此后，资源理论的视角逐步推广到更广泛的非经典性质，包括量子相干性^[4-5]、量子失谐^[6-7]、非高斯性以及魔术态等，从而形成了一套用于统一讨论量子优势来源的理论语言。

在众多量子资源中，量子关联占据着尤为核心的地位。所谓量子关联(quantum correlations)，是指量子系统在不同子系统、不同自由度或不同时刻的测量统计中所呈现出的、无法由经典概率论完整刻画的非经典相关结构。量子纠缠是其中最早被认识、也最具代表性的形式。对这类关联的系统讨论可以追溯到1935年Einstein、Podolsky和Rosen提出的EPR佯谬^[8]。EPR指出，当两个粒子处于特定联合态时，对其中一个粒子的测量会即时确定另一个粒子的相应物理量，这似乎与经典物理中的局域性(locality)和实在性(realism)原则相冲突。为了回应这一挑战，Bell于1964年提出了Bell不等式^[9]，将局域隐变量理论的核心假设转化为可实验检验的定量判据。随后的大量理论与实验研究表明，量子力学的预言确实可以违反Bell不等式，从而确立了量子纠缠及相关空间量子关联的非经典本质，也使量子关联成为理解量子资源的重要起点。

然而，随着研究的深入，人们逐渐认识到，量子关联的内涵并不局限于空间纠缠。一方面，量子系统在时间维度上同样可能展现出无法由经典随机过程解释的非经典关联，即时间量子关联；另一方面，即便在纠缠很弱甚至不存在的情形下，量子系统仍可能具有超越经典相关性的关联结构，例如量子失谐等非纠缠型非经典关联，它们在特定计算模型如确定性单量子比特量子计算（deterministic quantum computation with one qubit, DQC1）中同样被认为是支撑量子优势的重要资源^[10-12]。

从研究脉络上看，量子关联大体可以沿两个彼此联系而又各具特点的方向展开：一类是空间维度上不同子系统之间的非经典关联，其中量子纠缠是最典型的代表；另一类是时间维度上同一量子系统在不同时刻测量统计中呈现出的非经典关联，即时间量子关联。前者奠定了量子资源研究的基础图景，后者则将非经典关联的讨论从静态量子态扩展到了量子演化与时序过程。下面将分别介绍空间量子关联与时间量子关联的研究背景及其发展进展。

1.1.1 空间量子关联：以量子纠缠为代表

2022 年，瑞典皇家科学院将诺贝尔物理学奖授予 Alain Aspect、John F. Clauser 和 Anton Zeilinger，以表彰他们“利用纠缠光子进行实验、确立 Bell 不等式的违反并开创量子信息科学”方面的杰出贡献^[13-16]。如图 1-1 所示，Clauser、Aspect 和 Zeilinger 的工作分别代表了 Bell 不等式实验检验、局域性漏洞压缩以及纠缠资源化应用三个关键阶段。该奖项的颁发标志着量子纠缠已经从一个长期存在争议的基础物理概念，发展为当代量子信息科学中的核心资源之一，也为本文所讨论的量子关联研究提供了直接的时代背景。

量子纠缠是量子力学的核心特征之一

2022年诺贝尔物理学奖

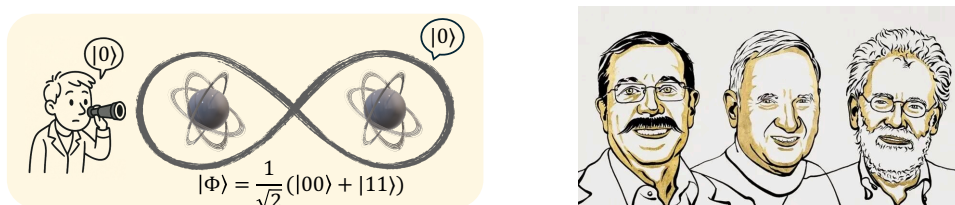


Figure 1-1 2022 年诺贝尔物理学奖与量子纠缠实验的发展脉络。Clauser、Aspect 和 Zeilinger 的工作分别代表了 Bell 不等式实验检验、局域性漏洞封堵以及纠缠资源化应用三个关键阶段，共同奠定了量子信息科学的实验基础。

空间量子关联是量子系统中最早被认识、也是最核心的非经典特性之一，其中最具代表性的形式便是量子纠缠。作为区分量子物理与经典物理的关键标志，量

子纠缠自提出以来始终在量子理论的发展中扮演着基础性角色。

量子纠缠最早在 Einstein、Podolsky 和 Rosen 的著名 EPR 论文中被用来揭示量子力学可能存在的“不完备性”。EPR 论证依赖两个关键假设：(i) 测量结果由粒子在测量之前便已携带、且与测量方式无关的预定性质决定（实在性）；(ii) 在空间分离（spacelike separated）的区域内实施的操作不会影响另一空间区域的测量结果（局域性）。若同时接受这两个假设，则自然导向这样一种设想：量子力学未能给出物理系统的全部完备描述，尚需引入某些未被直接观测的隐含变量来补充之。然而，这些讨论在随后的几十年里一直停留在理论层面。直到 1964 年，Bell 基于这一思想首次将局域实在性的假设严格形式化，进一步构建所谓的局域隐变量理论（local hidden-variable theories, LHVTs），尝试用一组隐变量 λ 来解释量子关联的统计结构，并由此推导出著名的 Bell 不等式，使得该类理论首次具备了可被实验检验的判据^[9]。

Bell 证明，若一个双体系统能够由局域隐变量模型描述，则其可观测统计相关性必须满足一组不等式约束，即 Bell 不等式。为说明这一点，我们考虑两个空间分离的观测者 Alice 与 Bob。Alice 有两种可选测量： Q 或 R ；Bob 也有两种可选测量： S 或 T 。假设所有测量的结果均取 ± 1 ，可推得：

$$S = |E(QS) + E(RS) + E(RT) - E(QT)| \leq 2. \quad (1-1)$$

这是 Bell 不等式最常用的可实验检验形式之一，即 CHSH 不等式（Clauser–Horne–Shimony–Holt inequality）。尽管 CHSH 不等式只是更大不等式集合的一部分，但由于其应用最广、形式最简，在文献中通常仍被统称为 Bell 不等式。

Bell 随后进一步展示：对某些适当的纠缠态，量子力学预言的测量结果统计将突破局域隐变量模型允许的上界，从而违反 Bell 不等式。

在量子信息理论中，纠缠的现代定义基于可分离态（separable states）与不可分离态（entangled states）的区分。考虑两个系统 A 与 B ，若其联合态 ρ_{AB} 可写为

$$\rho_{AB} = \sum_i p_i \rho_A^{(i)} \otimes \rho_B^{(i)}, \quad p_i \geq 0, \sum_i p_i = 1, \quad (1-2)$$

则称为可分离态；无法写成此形式的态即为纠缠态。典型的纠缠态包括 Bell 态，例

如：

$$|\Phi^+\rangle = \frac{|00\rangle + |11\rangle}{\sqrt{2}}. \quad (1-3)$$

下面我们展示一个具体例子，说明纠缠态如何违反 Bell 不等式。考虑如下的自旋单态（spin singlet）：

$$|\Psi^-\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|01\rangle - |10\rangle). \quad (1-4)$$

设 Alice 与 Bob 选择以下观测算子：

$$Q = Z_1 \quad S = \frac{-Z_2 - X_2}{\sqrt{2}} \quad (1-5)$$

$$R = X_1 \quad T = \frac{Z_2 - X_2}{\sqrt{2}} \quad (1-6)$$

利用量子态的期望值计算规则 $\langle \cdot \rangle$ 可得：

$$\langle QS \rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}; \quad \langle RS \rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}; \quad \langle RT \rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}; \quad \langle QT \rangle = -\frac{1}{\sqrt{2}}. \quad (1-7)$$

将这些结果代入 Bell 不等式 (1-1) 得：

$$S = 2\sqrt{2} > 2,$$

显然违反了局域隐变量理论的上界。

该结果表明：量子力学的预测与基于常识性直觉（实在性+局域性）所推导出的 Bell 不等式相冲突。因而，Bell 不等式的实验违反强有力地说明：纠缠关联无法由任何局域隐变量模型解释，是量子理论内在非经典性的直接体现。

之后 Greenberger、Horne 和 Zeilinger（GHZ）在贝尔工作基础上迈出了至关重要的一步：他们提出的 GHZ 方案表明，当纠缠涉及三粒子及以上时，可以在完全非统计的层面上——即通过对单次实验结果的确定性预言——直接与局域隐变量模型产生逻辑矛盾，而无需再诉诸概率或不等式形式^[17]。与传统 Bell 不等式所体现的统计性违背不同，GHZ 论证展示的是一种全有或全无（all-or-nothing）式的矛盾。以一个具体例子说明：考虑三比特 GHZ 态 $|\text{GHZ}-\rangle = (|000\rangle - |111\rangle)/\sqrt{2}$ ，量子力学对如下三组可观测量的乘积给出完全确定的预言 $\langle X_1 Y_2 Y_3 \rangle = \langle Y_1 X_2 Y_3 \rangle = \langle Y_1 Y_2 X_3 \rangle = +1$ 。其中 X_i, Y_i 分别表示第 i 个粒子上的泡利算符测量结果。由于在局域隐变量模型中，每个可观测量在测量前必须预先具有确定取值 $X_j = \pm 1, Y_j = \pm 1$ ，将上述三式相乘可必然推出 $X_1 X_2 X_3 = +1$ ，而量子力学却确定性预言 $\langle X_1 X_2 X_3 \rangle = -1$ 。在

GHZ 态下，量子力学对若干可观测量组合给出的结果具有绝对确定性，而任何满足局域实在性与逻辑自洽的隐变量赋值都将必然得出相反的确定性结论。与贝尔不等式的统计违背相比，GHZ 论证在概念上将“量子非定域性”的性质揭示得更加直接和极端。

尽管贝尔不等式自 1964 年提出以来就为量子非定域性研究提供了基本框架，但直到 20 世纪 90 年代初，人们才在理论上系统地澄清了其违反行为的“普遍性”。Gisin 证明，对于任意两比特纯纠缠态，总可以找到合适的测量设定，使之违反某种形式的贝尔不等式，即“所有双比特纯纠缠态都是贝尔非定域的”^[18]。紧接着，Popescu 等人进一步从更一般的角度刻画了量子相关与局域隐变量模型之间的界面，指出在一定意义下“纠缠蕴含非定域性”具有广泛成立的情形^[19]。这些工作将原本基于少数特例的理解，提升为对纠缠态非定域性质的普遍理论陈述，为后续的纠缠分类与量子信息论研究奠定了坚实基础。

在实验层面，纠缠最初长期停留于思想实验的范畴。20 世纪 60 年代末，Kocher–Commins 实验首次在原子级联跃迁产生的光子对中观测到与量子纠缠一致的偏振相关性^[20]。然而，这类实验尚未能够对贝尔不等式进行严格检验。真正具有明确贝尔不等式检验意义的实验始于 20 世纪 70 年代初的 Freedman–Clauser 工作，他们利用伽马衰变过程产生的光子对，在实验框架中首次系统性地排查了局域隐变量模型可接受的偏振相关性范围，从而观察到与其预言不相容的实验结果^[15]。尽管这些早期实验在探测效率、测量设置的随机性以及严格因果分离等方面仍存在显著技术限制，但它们为后续系统性的贝尔不等式违背检验奠定了关键的实验基础。真正被普遍视为首个具有决定性意义的贝尔不等式违背实验，是 Aspect 及其合作者在 1980 年代初完成的一系列实验^[13-14]。他们利用原子级联过程制备纠缠光子对，并首次在实验中引入时间调制的偏振分析器设置，从而在一定程度上实现了测量设定与发射事件之间的空间样分离，有效压缩了“局域性漏洞”（locality loophole），以更高的实验严谨性排除了大类局域隐变量模型，为量子非定域性提供了里程碑式的直接实验证据。在此基础上，Zeilinger 团队在 1990 年代以来系统推动了纠缠实验从“验证性实验”向“可操控量子资源”的转变。他们在自由空间与光纤信道中实现了长距离纠缠分发、严格空间样分离条件下的贝尔不等式检验，并首次在公里量级尺度上实现了量子隐形传态与纠缠交换的实验验证^[16;21-23]。这些工作不仅在实验上进一步压缩了局域性漏洞与自由选择漏洞（freedom-of-choice

loophole)，也直接奠定了后续量子通信、量子网络与量子互联网实验体系的技术基础。

紧随这些奠基性实验之后，人们逐渐认识到：量子纠缠不仅揭示了经典世界观无法容纳的量子非定域性，更构成了一类独特的“量子资源”，能够支撑并推动一系列前所未有的信息处理能力。20 世纪 90 年代中期，基于冯·诺伊曼熵的熵不等式、量子条件熵以及相干信息（coherent information）等概念的提出，使得纠缠首次获得了清晰的定量刻画，并被赋予了直接关联具体量子信息处理能力的操作性物理解释^[24-28]。在这一信息论框架下，纠缠不再只是一个哲学或解释层面的难题，而是直接决定量子信道容量、量子态传输能力以及量子相关结构的核心物理量。沿着这一方向发展，量子版 Slepian–Wolf 定理以及“负量子信息”等新概念被相继提出^[29-30]，并在近期实验中获得直接验证，例如对熵不等式违反的观测结果^[31]，从而从实验层面揭示了复合量子系统中经典统计结构的根本失效。

在此基础上，当代纠缠理论的形成深深植根于若干具有里程碑意义的发现之中，包括：基于贝尔定理的量子密码学^[32]、量子密集编码（dense coding）^[33] 以及量子隐形传态（quantum teleportation）^[34]，以及对 EPR 对纠缠本身进行传态的纠缠交换（entanglement swapping）^[35-38]。上述所有效应均建立在纠缠之上，并已在一系列开创性实验中得到验证^[22-23;39-42]。这些成果连同最早关于量子密钥分发协议的工作^[43] 以及量子计算思想的提出^[44-47]，共同奠定了一个新的跨学科研究领域——量子信息（quantum information）^[48-50]，而量子纠缠正是这一领域的核心物理支柱。

在上述一系列理论与实验工作的推动下，人们逐渐形成了一个统一而深刻的认识：量子纠缠已不再仅仅是哲学或基础物理层面的讨论对象，而是一种可被定量刻画、可被操控、并可被用于信息处理与精密测量等具体任务的核心量子资源，用于完成任何经典资源无法实现的任务^[3]。这一“资源化”的视角，深刻改变了人们对纠缠的传统理解，并直接推动了多条量子科技发展路线的形成。例如量子通信与量子网络、量子精密测量及量子计算与量子模拟等。

在量子通信与量子网络领域，纠缠构成了实现远距离量子信息可靠传输的根本物理基础。以量子隐形传态和纠缠交换为代表的一类协议表明，量子态本身无需沿通信信道进行物理传输，便可在远端节点被精确重构，从而为量子中继器（quantum repeater）、量子网络以及分布式量子计算奠定了理论与技术基础^[34;37;51-53]。在这

一意义下，纠缠在很大程度上决定了量子信道的量子容量、抗噪性能以及量子态可实现的可靠传输能力，是构建大尺度量子通信网络不可或缺的关键资源。

在量子精密测量与量子计量学中，纠缠被证明能够突破经典统计极限，从而显著提升测量灵敏度与分辨率，通过引入多体纠缠态（如 GHZ 态、自旋压缩态等），测量精度可由经典的散粒噪声极限（shot-noise limit, $1/\sqrt{N}$ 标度）提升至海森堡极限（Heisenberg limit, $1/N$ 标度）^[54-56]，这一量子优势已在频率标准、原子钟、干涉测量与弱信号探测等方向展现出重要应用前景，并为引力波探测、高精度惯性导航以及更广泛的量子传感技术提供了新的物理手段^[57-58]。

在量子计算与量子模拟领域，尽管纠缠是否构成所有量子加速的必要条件仍存在一定争论^[10;59]，但其在现有主流量子计算模型中普遍扮演着基础性角色，例如在测量驱动的单向量子计算中，大规模纠缠的簇态（cluster state）构成整个计算过程的资源底座^[60]。Shor、Grover 等典型量子算法在执行过程中不可避免地产生高度多体纠缠，而一旦将其纠缠结构限制在低秩张量网络的范畴内，演化过程即可被经典多项式时间有效模拟，从而丧失量子计算优势^[61]。此外，在量子多体系统的数值模拟中，对纠缠结构及其增长规律的理解直接催生了矩阵乘积态（MPS）和张量网络（TN）等高效算法体系^[62-64]，极大推动了强关联体系与量子相变问题的研究。

1.1.2 时间量子关联

量子关联的研究传统上主要集中在空间域，即在某个特定时间点观察和测量量子态，这种“单时间片”中多个粒子在不同位置之间的关联被归类为空间量子关联。一个自然的问题因此浮现：除了这种空间上的关联，量子系统在时间上是否也存在着这种非经典的关联性？这种时间关联与空间关联相比具有哪些独特性？如何在实验中测量这种时间关联？

从概念上说，时间量子关联并非简单的“把贝尔检验中的空间分离替换为时间分离”。其关键差异在于：在时间序列测量中，多次测量作用在同一个系统上，量子测量的回馈不可避免地改变系统状态，从而使“测量是否侵扰系统”成为时间域研究无法回避的核心问题。正是在这种背景下，人们将那些跨时间出现、无法由经典随机过程解释的统计相关称为量子时间关联。

对时间量子关联的系统研究可以追溯到 Leggett 和 Garg 在 1985 年的工作^[65]。他们并非直接从量子信息角度出发，而是从宏观物理的基本观念入手。他们首先

假设了一个随时间变化的可观测物理量 $Q(t)$ ，这个物理量在任意时刻都具有确定取值 $Q(t) = \pm 1$ ，且测量该物理量不会扰动系统的后续演化。这种描述依赖于两个核心假设^[65]：

(1) **宏观现实主义 (macrorealism)**：系统在任意时刻都客观地处于某个确定状态；

(2) **非侵扰可测性 (noninvasive measurability)**：测量可以在不改变系统未来演化统计性质的情况下完成。

在这两个假设下，多时刻相关函数之间必须满足一系列不等式约束，这些约束构成了时间域中“经典性”的判据。Leggett 与 Garg 在此基础上提出了一类时间不等式，用于检验一个系统是否满足这两条假设^[65-66]。设在三个递增时刻 $t_1 < t_2 < t_3$ 对同一系统测量同一可观测量 $Q(t)$ ，定义时间关联函数

$$C_{ij} = \langle Q(t_i)Q(t_j) \rangle. \quad (1-8)$$

若系统满足上述两条假设，则可推出

$$K_3 = C_{12} + C_{23} - C_{13} \leq 1, \quad (1-9)$$

这就是最常见形式的 Leggett–Garg 不等式 (LGI)。

然而在量子力学中，上述不等式一般会被违反，其根源在于量子演化所产生的相干干涉效应^[67]。设系统在初始时刻 $t = 0$ 处于纯态 $|\psi_0\rangle$ ，并在无测量的情况下按照薛定谔方程演化为

$$|\psi(t)\rangle = e^{-i\hat{H}t/\hbar}|\psi_0\rangle, \quad (1-10)$$

其中 \hat{H} 为系统的哈密顿量。我们引入一个二值可观测测量

$$\hat{A} = 2|\psi_0\rangle\langle\psi_0| - \mathbb{I}, \quad (1-11)$$

其本征值为 ± 1 ：测量结果 $+1$ 表示系统仍处于初始态 $|\psi_0\rangle$ ，而 -1 表示系统已偏离该态。于是，对该算符在不同时刻的测量等价于不断询问系统“是否仍然处于初始态”。

定义“生存概率” (survival probability)

$$p(t) = |\langle\psi_0|\psi(t)\rangle|^2, \quad (1-12)$$

它给出了系统在时间 t 仍然被发现处于初始态的概率。由于强投影测量会将系统

塌缩到 $|\psi_0\rangle$ 或其正交子空间，时间关联函数 $C_{ij} = \langle A(t_i)A(t_j) \rangle$ 可以直接用这些生存概率表示。例如，当取等时间间隔 $t_2 - t_1 = t_3 - t_2 = \Delta t$ 且 $t_1 = 0$ 时，那么第一次测量一定得到 $A(t_1) = +1$ 因为系统就在 $|\psi_0\rangle$ 。到 $t_2 = \Delta t$ 时再测一次，得到 $+1$ 的概率是 $p(\Delta t)$ ，得到 -1 的概率是 $1 - p(\Delta t)$ 。为了将时间关联函数 C_{ij} 用条件概率的形式表达，我们引入以下记号：设 p_{i+} (p_{i-}) 为第 i 次测量得到结果 $+1$ (-1) 的边缘概率， $q_{j|i+}$ ($q_{j|i-}$) 为在第 i 次测量得到 $+1$ (-1) 的条件下、第 j 次测量得到 $+1$ 的条件概率。利用这些记号，时间关联函数可以写为

$$C_{ij} = p_{i+} q_{j|i+} + p_{i-} q_{j|i-} - p_{i+} (1 - q_{j|i+}) - p_{i-} (1 - q_{j|i-}), \quad (1-13)$$

即 C_{ij} 等于两次测量结果同号的概率减去异号的概率。对于上述等时间间隔的情形，代入具体的生存概率可得

$$C_{12} = 2p(\Delta t) - 1, \quad C_{23} = 2p(\Delta t) - 1, \quad C_{13} = 2p(2\Delta t) - 1. \quad (1-14)$$

然而，量子演化不仅改变生存概率的大小，还引入了相干相位。若记

$$\langle \psi_0 | \psi(\Delta t) \rangle = \sqrt{p(\Delta t)} e^{i\alpha}, \quad \langle \psi_0 | \psi(2\Delta t) \rangle = \sqrt{p(2\Delta t)} e^{i\beta}, \quad (1-15)$$

则不同时间路径之间的量子干涉导致关联函数中出现相位差 $\gamma = 2\alpha - \beta$ 。将这些结果代入式 (1-9)，可以得到

$$K_3 = 4p(\Delta t)\sqrt{p(2\Delta t)} \cos \gamma - 4p(2\Delta t) + 1. \quad (1-16)$$

在经典宏观实在论框架下，系统的状态在时间上应沿确定轨迹演化，不存在不同历史路径之间的相干干涉，因此上述相位项并不存在，从而必然满足 $K_3 \leq 1$ 。然而在量子力学中，只要哈密顿量不是平凡的零算符，态矢量就会在希尔伯特空间中发生相干演化，使得生存概率呈现振荡行为，并通过干涉相位 γ 产生对 LG 不等式的违反。这表明，时间方向上的量子相干本身就是一种无法用宏观实在论描述的非经典资源。

LGI 的违背揭示了时间关联与经典时间随机过程之间的本质差异，也表明时间量子关联不仅是概念层面的非经典性信号，而具有更深层的物理内涵。随着研究的推进，人们逐渐认识到，时间量子关联的意义并不局限于基础物理检验，它同样能够在具体量子信息任务中发挥作用。例如，通过分析单个系统在不同时刻的测量统计，可以对系统的有效维数给出下界，从而在不依赖空间纠缠的情况下刻

画其量子复杂性^[68-70]。此外，在量子计量与时间保持任务中，时间量子关联被证明与量子时钟的稳定性和精度密切相关，是实现自主量子时钟以及构建高精度时间基准的重要物理资源^[71-73]。

在更加“过程化”的量子信息任务中，时间关联带来的优势体现得尤为直接，其中最具代表性的例子之一就是**量子开关**（quantum switch）。量子开关通过将两个量子操作的先后顺序置于相干叠加之中，在不预设固定因果顺序的前提下扩展了可实现的量子过程^[74-75]。一系列研究表明，相干控制操作顺序可以在不同任务中带来实际提升：在量子计算中，它能够加速某些信息处理流程或算法子任务^[76-77]；在量子通信中，量子开关在特定噪声模型下可增强经典和量子信息的传输能力^[78-79]；在量子计量中，它能够为参数估计提供二次量级的精度优势^[80-81]；而在量子热力学中，它也被用于设计新型方案，例如具有不确定因果顺序的量子冰箱^[82]。这些结果共同表明，时间量子关联是一类可以被利用、能够在实际任务中产生优势的量子资源。

除了信息处理任务中的应用外，时间量子关联还与量子因果结构的刻画密切相关。因果推断的核心问题在于如何从观测到的相关性中识别潜在的因果结构，即判断不同变量之间的因果影响关系。这一问题在医学、经济学以及各类经验科学中都具有基础性意义。在量子框架下，由于测量回馈与相干演化的存在，时间关联所蕴含的统计结构与经典随机过程显著不同，从而为因果结构的判别提供了新的工具。近年来的研究表明，时间关联中的非经典性能够增强因果结构的区分能力，在量子因果建模（quantum causal modeling）中体现出独特优势^[83-87]。例如，在某些任务中，经典因果强度（causal strength）的上界可以在量子设定下被突破^[84]。更为引人注目的是，当时间统计以赝密度矩阵形式表征时，其谱中出现的负本征值可用于排除纯“共同原因”（common-cause）模型，从而表明某些量子相关已蕴含因果方向的信息^[83;88-89]。尽管近年来已有实验工作开始探索量子因果结构的判别问题，但整体而言，该方向的实验实现仍处于发展阶段。例如，在光学量子计算平台上，有研究通过后选择（post-selection）实现不同时刻的联合测量，从而提取与时间关联相关的统计量^[85;90]。这类方案为实验研究时间关联与因果结构提供了重要探索路径。然而，由于其实现往往依赖特定平台和操作结构，在可扩展性及跨体系推广方面仍存在一定挑战。

在此背景下，亟需一种结构清晰且具有普适性的时间关联刻画方法。事实上，围

绕如何系统刻画多时刻量子统计结构及其因果关系,量子理论中已经提出了多种形式主义,例如量子梳(quantum combs)^[74]、过程矩阵(process matrices)^[91-92]、Leifer-Spekkens 因果态^[93]以及赝密度矩阵(pseudo-density matrix, PDM)^[83;88-89;94]等。这些框架从不同角度出发,为统一描述时间序列中的量子过程与因果结构提供了理论工具。在上述诸多方案中,PDM 具有一个尤为突出的特征:它直接将不同时刻的测量统计编码为一个类似“态”的矩阵对象,使时间关联能够以与空间量子态相似的方式被表示和分析。与标准密度矩阵始终保持半正定不同,PDM 的谱中允许出现负本征值,这种负性正是时间量子关联非经典性的直接体现。相比之下,仅基于单一时间截面构造的密度矩阵无法呈现这一性质,因此难以揭示跨时间量子关联所特有的结构特征。正是在这一意义上,PDM 为识别与量化时间方向上的量子非经典性提供了直接而结构化的判据。

1.2 系综量子体系与实验平台概述

随着量子信息技术的迅猛发展,相关研究重心逐步由纯理论探索转向理论与实验并行推进的阶段。量子关联结构及其在信息处理任务中的物理意义不断获得理论深化的同时,其实验可实现性与可验证性也成为研究关注的核心问题。在这一背景下,各类量子计算实验平台不断涌现,逐渐形成多种并行发展的技术路线。从物理实现机制上看,目前主流的实验路径大体可以分为两类范式:其一是对单个量子比特进行逐一操控与投影测量的“单体量子体系”,例如超导量子电路、离子阱等;其二则是基于大量相同量子系统构成的“系综量子体系”,其中实验控制与测量作用于宏观数量级的量子个体,并以统计平均的方式获得物理信息。两类体系在实验结构、测量机制以及可实现物理任务方面存在本质差异。单体体系强调单次投影测量与量子态的逐个读取,适用于可扩展量子计算与纠缠资源构造;而系综体系则通过对大量量子拷贝的统一操控与统计平均读出,实现对量子态结构与多时刻相关函数的高信噪比测量,在量子关联与量子资源的实验表征方面具有独特优势。

1.2.1 单量子体系与系综量子体系的实现范式

在单体量子体系中,实验操作针对单个量子比特进行逐一控制与读取。典型的单体平台包括超导量子电路与离子阱系统^[95-97]。在超导量子电路中,每个超导

量子比特通过微波脉冲实现量子门操作，并通过色散读出等技术对单个量子比特的状态进行投影测量^[98]，从而获得 $|0\rangle$ 或 $|1\rangle$ 的确定性结果。类似地，在离子阱系统中，单个囚禁离子的内态通过激光脉冲操控，并通过荧光探测实现单次投影测量^[96]。这类体系的核心特征在于：每次测量针对单个量子比特，测量结果为离散的本征值，且测量过程不可避免地导致量子态塌缩。这种“单次投影测量”机制使得单体体系在构造多比特纠缠态、执行量子算法以及实现可扩展量子计算方面具有天然优势。

与之相对，系综量子体系的实验操作作用于大量（通常为 10^{10} 至 10^{23} 量级）相同的量子系统。典型的系综平台包括核磁共振（nuclear magnetic resonance, NMR）^[99-100]、冷原子系综^[101-102]以及氮空位（nitrogen-vacancy, NV）色心系综^[103-104]等。在这类体系中，实验控制场（如射频脉冲、激光场等）同时作用于所有量子个体，而测量信号则来自大量量子拷贝的集体响应。例如，在 NMR 系统中，射频脉冲同时作用于溶液中的所有分子，而感应线圈接收到的信号是所有核自旋磁化强度的宏观平均^[105]；在冷原子系综中，探测光与原子云相互作用后的透射或荧光信号同样反映了大量原子的集体行为^[102]。这种测量方式的本质特征在于：测量结果并非单个量子比特的本征值，而是可观测量在整个系综上的期望值 $\langle \hat{O} \rangle$ 。由于信号来自大量量子拷贝的统计平均，系综体系能够实现高信噪比的期望值读出，从而在量子态结构表征、多时刻相关函数测量以及量子资源评估等任务中展现出独特优势。

两类体系在测量机制上的差异直接决定了其适用的物理任务类型。单体体系通过单次投影测量获得确定性结果，适合构造纠缠资源、执行量子算法以及实现量子纠错，是实现可扩展量子计算的主要技术路线。然而，对于需要精确测量量子态期望值或多时刻相关函数的任务，单体体系需要通过大量重复实验来统计估计期望值，这在实验资源消耗上可能面临挑战。相比之下，系综体系的测量信号来自 N 个量子拷贝的宏观响应，其结果直接对应可观测量在量子态 ρ 上的期望值：

$$\langle \hat{O} \rangle = \text{Tr}(\rho \hat{O}). \quad (1-17)$$

由于测量误差随系综规模 N 的增大而按 $1/\sqrt{N}$ 减小，而典型系综实验中 N 可达 10^{10} 至 10^{23} 量级，因此系综体系通过一次测量即可以极高的信噪比直接获得期望值。这使得系综体系在量子态层析（quantum state tomography）、量子过程层析（quantum process tomography）以及多时刻量子统计测量等方向具有不可替代的实

验优势。特别是在本论文所关注的时间量子关联与量子因果推断研究中，系综体系的这一特性尤为关键。

1.2.2 多时刻量子关联的实验可实现性

多时刻量子关联的实验测量是量子时序关联研究中的核心挑战之一。与空间量子关联不同，时间量子关联涉及对同一量子系统在不同时刻的测量统计，而量子测量的投影性质使得每次测量都会不可避免地改变系统的状态。这一特性在单体量子体系中尤为突出：一旦对单个量子比特进行投影测量，量子态即刻塌缩到某个本征态，系统的原始相干性被破坏，无法在同一个量子系统上继续进行后续时刻的测量。因此，在单体体系中，多时刻相关函数的测量通常需要通过“弱测量”（weak measurement）或“后选择”（post-selection）等特殊技术来实现，这些方案往往对实验条件要求较高，且在可扩展性与实验效率上存在一定局限。

系综量子体系为多时刻量子关联的实验测量提供了一种更为直接且高效的技术路径。其优势在于，虽然对单个量子系统的测量通常会引入回扰，但系综体系包含大量处于相同初态的量子拷贝，因而可以通过重复制备与统计平均来高信噪比地提取多时刻信息。对于目标多时刻相关函数 $C(t_1, t_2, \dots, t_n)$ ，实验上通常并非简单地对同一个拷贝依次实施强测量并直接平均，而是需要结合具体方案，将该多时刻关联映射为可观测量。常见方法包括非侵入式测量、弱测量、辅助比特散射线路以及在系综体系中利用脉冲序列对目标关联函数进行编码后统一读出。借助大量量子拷贝带来的统计平均优势，系综平台能够以较高信噪比实现多时刻量子关联的精确测量。

这种测量能力对本论文的研究内容具有直接而关键的意义。在第三章中，PDM 的实验重构需要测量多时刻联合测量的统计分布，而这些统计信息正是通过系综体系的重复制备与统计平均获得的。在第四章的量子因果推断研究中，不同因果结构对应的量子过程会产生不同的多时刻统计特征，同样需要通过系综体系的多时刻相关函数测量来识别与判别。因此，系综体系在多时刻量子关联测量方面的独特优势，为本论文的实验研究提供了关键的技术基础。

1.2.3 典型系综量子实验平台介绍

在系综量子体系的实验实现中，不同物理平台基于各自的物理机制与技术特点，在控制精度、可重复性、读出方式以及实验成熟度等方面呈现出不同的优势

与局限。以下简要介绍几类具有代表性的系综量子实验平台。

冷原子系综是基于超冷原子气体的系综量子平台^[101-102;106]。通过激光冷却与磁光阱等技术，原子气体被冷却至微开尔文甚至纳开尔文温度，形成高度相干的量子系综。量子信息可以编码在原子的内态（如超精细能级）或集体激发态（如 Rydberg 态、自旋波等）上。冷原子系综的主要优势在于其高度的可控性与灵活性：通过调节激光参数与磁场配置，可以实现对原子间相互作用的精密调控，从而构造丰富的量子多体态与量子模拟场景。此外，冷原子系综的相干时间较长，且可以通过光学读出实现高效的量子态探测。近年来，冷原子系综在量子存储、量子中继以及量子多体模拟等方向取得了重要进展。

NV 色心系综是基于金刚石中氮空位缺陷的系综量子平台^[103-104;107]。NV 色心是金刚石晶格中由一个氮原子与相邻的空位构成的点缺陷，其电子自旋态可以作为量子比特进行操控与读取。NV 色心系综的突出优势在于其室温操作能力与长相干时间：即使在室温条件下，NV 色心的电子自旋相干时间仍可达毫秒量级，远超过多数固态量子体系。此外，NV 色心可以通过光学手段实现初始化、操控与读出，实验装置相对简洁。目前，NV 色心系综已在量子传感、磁场成像以及固态量子信息处理等领域展现出广泛的应用前景。

NMR 系综量子平台是另一类具有代表性的系综量子实验体系^[99-100]。NMR 技术自 20 世纪 40 年代发展以来，已形成高度成熟的实验体系与理论框架。在 NMR 量子信息处理中，量子信息编码在溶液中分子的核自旋态上，通过射频脉冲实现量子门操作，并通过感应线圈读取核自旋的宏观磁化强度^[105;108]。NMR 的射频控制精度极高，可以实现保真度超过 99% 的单比特与双比特量子门，且实验装置稳定可靠，可重复性强。NMR 系综通过大量分子拷贝的信号平均，能够以极高的信噪比直接测量期望值与多时刻相关函数，在量子关联结构表征、量子算法验证以及量子信息基础研究等方向具有广泛应用。

上述三类系综量子平台各具特色，分别在量子模拟、量子传感与量子信息处理等不同方向发挥着重要作用。如图 1-2 所示，三种平台的实验装置与物理实现机制各有不同，但均通过对大量量子拷贝的统一操控与统计平均读出来获取量子信息。本论文的实验研究基于 NMR 系综量子平台开展，这主要是因为 NMR 平台在高精度量子控制、高信噪比期望值读出以及多时刻相关函数测量等方面的技术特点，与本论文所关注的时间量子关联表征和量子因果推断等研究内容高度契合。

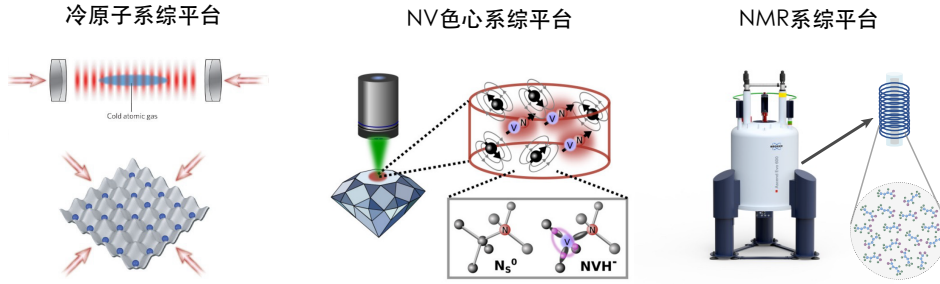


Figure 1-2 三类典型系统量子实验平台的装置示意图：冷原子系统、NV 色心系统与 NMR 系统。（引自文献 [107;109]）

1.2.4 核磁共振体系及其在本论文中的应用

NMR 量子信息处理基于原子核在外加磁场中的自旋动力学 [99-100]。在强静磁场 B_0 作用下，核自旋的能级发生塞曼分裂，不同自旋态之间的能量差正比于磁场强度与核的旋磁比。通过施加与能级差共振的射频脉冲，可以实现核自旋态之间的相干跃迁，从而完成量子门操作。在多核自旋体系中，不同核之间通过化学键产生的 J 耦合提供了核间相互作用，使得双比特量子门的实现成为可能。此外，不同核由于化学环境的差异而具有不同的化学位移，这一特性使得可以通过选择性射频脉冲对特定核自旋进行独立操控，从而实现多比特量子线路的精密控制。

NMR 量子信息处理的一个关键技术是赝纯态（pseudo-pure state, PPS）的制备 [105;108]。在室温条件下，溶液中的核自旋系统处于高度混合的热平衡态，其极化度极低，通常仅为 10^{-5} 量级。这意味着系统的密度矩阵几乎是完全混合态 $\mathbb{I}/2^n$ （其中 n 为量子比特数），无法直接用于量子计算。为克服这一困难，NMR 量子计算采用赝纯态技术：通过特定的脉冲序列，将系统的密度矩阵转化为形如 $\rho = (1 - \epsilon)\mathbb{I}/2^n + \epsilon|\psi\rangle\langle\psi|$ 的形式，其中 $\epsilon \ll 1$ 为有效极化度， $|\psi\rangle$ 为目标纯态。尽管赝纯态中纯态成分的比例极小，但由于 NMR 测量的是可观测量的期望值，而完全混合态对期望值的贡献为零，因此赝纯态的测量结果与真正纯态的测量结果在归一化后完全等价。这一技术使得 NMR 能够在室温条件下实现高保真的量子信息处理，尽管其可扩展性受到赝纯态制备效率的限制。

NMR 系统量子平台的核心优势在于其高精度射频控制能力与成熟的实验体系。经过数十年的发展，NMR 技术已形成完善的脉冲序列设计、误差补偿以及信号处理方法，使得量子门操作的保真度可达 99% 以上，且实验装置稳定可靠、可重复性强。更为重要的是，NMR 系统通过大量分子拷贝的信号平均，能够以极高的

信噪比直接测量可观测量的期望值，这一特性使其在量子态层析、量子过程层析以及多时刻相关函数测量等任务中具有不可替代的实验价值。需要指出的是，NMR 平台在量子信息研究中的定位并非追求可扩展量子计算——由于赝纯态的制备效率随量子比特数指数下降，其在可扩展性上面临根本性挑战——而是聚焦于量子资源刻画、量子算法验证以及量子信息基础研究。

具体而言，本论文的研究内容与 NMR 平台的技术特点高度契合。在第三章的 PDM 实验重构中，需要测量多时刻联合测量的统计分布，而 NMR 系统通过重复制备相同初态并施加不同时刻的测量序列，能够以极高的信噪比获得这些统计信息，从而实现 PDM 的精确重构与负性探测。在第四章的量子因果推断实验中，不同因果结构对应的量子过程需要通过多时刻相关函数来识别与判别，而 NMR 平台的多时刻统计测量能力为这一任务提供了可靠的实验基础。此外，在第五章的 DQC1 模型研究中，NMR 系统的赝纯态制备与高保真量子门操作使得 DQC1 线路的实现变得自然而高效，且 NMR 平台在量子失谐等非纠缠型量子关联的表征方面同样具有独特优势。

综上所述，NMR 系统量子平台在高精度量子控制、高信噪比期望值读出以及多时刻相关函数测量等方面的独特优势，与本论文所关注的时间量子关联、量子因果推断以及非纠缠型量子资源研究高度契合，因此本论文选择其作为主要实验基础。

1.3 论文研究内容和结构安排

从前述讨论可以看出，量子体系中存在多种区别于经典物理的非传统量子资源，它们不仅在基础物理层面具有重要意义，也能够具体的信息处理任务中带来优势。本论文围绕“系统量子信息处理器上的量子资源实验探测与表征”这一主题展开，重点聚焦于两类具有代表性的非经典关联：其一是时间维度上的量子时序关联，其二是非纠缠型的非经典关联（以量子失谐等为代表）在量子信息处理与量子机器学习任务中的作用。

本文的实验研究主要基于 NMR 系统量子处理器开展。作为典型的系统量子平台，NMR 体系具备高保真量子控制能力，并可通过大量分子拷贝的信号平均实现稳定读出，这一特性使其在复杂量子线路执行、信号读取与资源高效评估等方面具有独特优势。针对上述平台特点，本文围绕两类具有代表性的非经典量子资源

源展开研究：一类是时间维度上的量子关联及其结构表征与因果应用，另一类是非纠缠型非经典关联在量子信息处理任务中的功能化利用。围绕这两条研究主线，本文依次完成了以下工作，并据此组织全文结构。

(1) **实验探测与表征量子时序关联：基于 PDM 的测量与重构。**本文首先关注时间维度的量子关联资源。在理论层面，引入 PDM 作为表征多时刻测量统计与时间关联结构的统一工具；在实验层面，通过构造可控的量子演化过程，并采用适用于时序关联测量的实验方案，实现了对应 PDM 的测量与重构，从而直接读取其中蕴含的时序关联信息。相关内容在第三章给出。

(2) **优化时序关联的实验探测：无需完整层析的高效负性认证。**随着系统规模增长，基于完整层析的 PDM 构造在实验与经典后处理资源上均面临指数级开销。为克服这一瓶颈，本文进一步结合随机测量 (randomized measurements) 与准概率分解 (quasi-probability decomposition) 技术，提出一种无需完整系统表征即可高效探测时序关联的实验方案。该方案以可实验获取的矩信息为核心，通过常数测量基实现对 PDM 负性等关键资源量的认证，显著降低实验资源消耗并提升可扩展性。相关内容同样在第三章展开。

(3) **基于时序关联信息的量子因果推断：从 PDM 到因果结构判别。**在完成时序关联的实验表征与高效认证之后，本文进一步探索如何利用 PDM 所携带的时间统计结构开展量子因果推断。具体而言，实验上构造若干对应不同因果结构的量子过程场景，测量其对应的 PDM，并基于 PDM 的特征量实现对潜在因果结构的判别与验证。该部分工作在第四章呈现。

(4) **从时间关联到非纠缠型非经典资源：DQC1 框架下的 NQE-DQC1 及其跨平台应用。**除时间维度的量子关联外，本文还进一步将“非经典资源”的讨论拓展至 DQC1 模型中典型的非纠缠型关联资源（如量子失谐）及其任务化利用。本文提出基于 DQC1 的神经量子嵌入 (Neural Quantum Embedding via DQC1, NQE-DQC1) 框架用于优化经典数据的量子嵌入，并在 NMR 平台完成训练与分类验证；同时展示训练得到的嵌入可迁移至其他量子硬件平台执行后续量子机器学习任务（例如在超导量子处理器上进行分类），体现该方案在应用层面的可扩展性与跨平台兼容性。该部分内容在第五章给出。

基于上述研究主线，本文的章节安排如下：第二章介绍实验平台与基础实验方法；第三章围绕 PDM 的实验测量、构造与高效负性探测展开；第四章给出基于

PDM 的量子因果推断实验研究；第五章讨论 DQC1 框架下的非纠缠型非经典资源及 NQE-DQC1 方案，并展示其在量子机器学习任务与跨平台迁移中的应用；最后在第六章总结全文并讨论未来展望。

CHAPTER 2 核磁共振量子信息处理基础

在前一章中，我们从量子时序关联的理论背景出发，介绍了多种系综量子计算平台，并指出 NMR 体系凭借其高精度量子控制能力与系综测量特性，在本论文的实验研究中扮演着核心角色。本章将系统阐述 NMR 量子信息处理的物理基础与实验技术，为后续的实验工作提供必要的理论与技术铺垫。

NMR 量子计算的基本思想是利用分子中具有核自旋的原子核作为量子比特载体，通过精心设计的射频脉冲序列实现对量子态的操控，并借助系综平均测量获取实验结果^[99;108]。自 1996 年 Cory、Fahmy 和 Havel 等人提出 NMR 可用于量子计算以来^[105;110]，该平台已在量子算法演示、量子模拟、量子纠错等多个方向取得了丰富的实验成果^[100;111-117]。与其他量子计算平台相比，NMR 体系具有以下显著优势：(i) 相干时间长，通常可达秒量级，远超单次实验所需的操作时间；(ii) 量子控制精度高，借助成熟的脉冲优化技术可实现保真度超过 99% 的量子门操作；(iii) 实验技术成熟，仪器设备高度模块化，操作流程标准化程度高。图 2-1(a) 展示了典型 NMR 谱仪的内部结构，其核心组件包括提供强均匀静磁场的超导磁体、用于施加射频脉冲和接收信号的探头与射频线圈等。这些高度集成的硬件系统为 NMR 量子信息处理提供了稳定可靠的实验基础，使得 NMR 成为验证量子信息处理新方案的理想实验平台。

本章的组织结构如下：第 2.1 节介绍 NMR 量子处理器的物理基础，包括核自旋与外磁场的相互作用、化学位移、 J 耦合等核心概念；第 2.2 节讨论 NMR 中的量子态制备技术，重点阐述赝纯态与空间平均方法；第 2.3 节介绍量子门的实现方式，涵盖射频脉冲控制与 GRAPE 优化脉冲技术；第 2.4 节阐述 NMR 的系综测量与信号读取机制；第 2.5 节则从实验适配性的角度，分析 NMR 体系在实现散射线路与 DQC1 线路方面的独特优势。

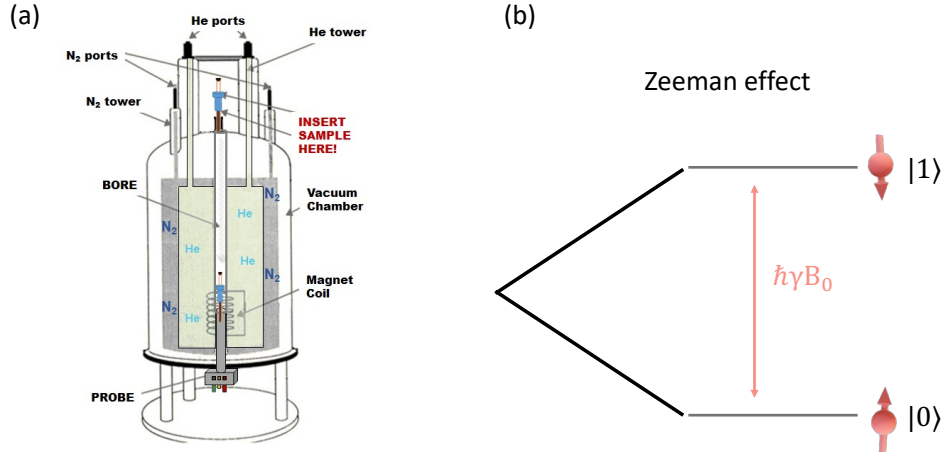


Figure 2-1 (a) NMR 谱仪的内部结构示意图，展示了超导磁体、探头及射频线圈等核心组件的空间布局。(b) 塞曼劈裂示意图：自旋 $1/2$ 原子核在外磁场 B_0 作用下，原本简并的能级分裂为两个本征态 $|0\rangle$ 与 $|1\rangle$ ，能级间距 $\Delta E = \gamma B_0$ 对应于拉莫尔进动频率。

2.1 NMR 量子处理器的物理基础

2.1.1 核自旋与塞曼效应

NMR 现象的物理根源在于原子核所固有的量子力学属性——核自旋^[118]。原子核由质子和中子组成，二者均为费米子，各自携带 $1/2$ 的自旋角动量。原子核的总自旋量子数 I 取决于其内部核子的排列方式。一般而言，当质子数与中子数均为偶数时，由于核子自旋的配对效应，原子核的总自旋为 $I = 0$ ，此类原子核不具有净磁矩，因此无法用于 NMR 实验；当质子数与中子数中恰有一个为奇数时，核自旋量子数 I 为半整数；而当二者均为奇数时， I 通常为正整数。在 NMR 量子计算实验中，通常选用自旋量子数 $I = 1/2$ 的原子核，例如 ^1H 、 ^{13}C 和 ^{19}F 等，因为这类原子核仅具有两个自旋能级，其二能级结构可以自然映射为量子比特的计算基态 $|0\rangle$ 与 $|1\rangle$ ^[48;99]。

具有非零自旋的原子核同时具有磁偶极矩 μ 。在量子力学描述下，核磁矩算符与核自旋角动量算符 \mathbf{I} 之间满足关系

$$\mu = \gamma \mathbf{I}, \quad (2-1)$$

其中 γ 为旋磁比，是描述特定核种磁学性质的重要物理常数，其大小取决于原子核的电荷分布与质量结构。不同种类的原子核具有不同的旋磁比，这一差异构成了 NMR 实验中区分不同核种的重要物理基础。

当具有自旋的原子核被置于沿 \hat{z} 方向的均匀静磁场 B_0 中时，核磁矩与外磁

场之间的相互作用会导致原本简并的自旋能级发生分裂，这一现象称为塞曼劈裂 (Zeeman splitting)^[119-120]，如图 2-1(b) 所示。该相互作用可以通过磁矩与外磁场的耦合哈密顿量来描述（取 $\hbar = 1$ ）：

$$H_0 = -\boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{B}. \quad (2-2)$$

在 NMR 实验中，静磁场通常沿 z 方向施加，即 $\mathbf{B} = B_0 \hat{z}$ ，因此哈密顿量可以写为

$$H_0 = -\gamma B_0 I_z. \quad (2-3)$$

对于自旋量子数 $I = 1/2$ 的原子核，自旋算符满足 $I_z = \sigma_z/2$ ，其中 σ_z 为泡利矩阵，因此哈密顿量可进一步写为

$$H_0 = -\frac{\gamma B_0}{2} \sigma_z. \quad (2-4)$$

该哈密顿量具有两个本征态 $|0\rangle$ 与 $|1\rangle$ ，对应的能量本征值分别为

$$E_{\pm} = \pm \frac{\gamma B_0}{2}, \quad (2-5)$$

从而产生能量间隔

$$\Delta E = \gamma B_0. \quad (2-6)$$

从经典图像来看，核磁矩在外磁场作用下的运动类似于一个陀螺在重力场中的进动，其磁矩矢量绕磁场方向进行圆锥形进动。这种进动运动的角频率称为拉莫尔进动频率，其表达式为

$$\omega_0 = |\gamma| B_0. \quad (2-7)$$

实验中也常使用以赫兹为单位的拉莫尔频率 ν ，其与角频率之间的关系为

$$\nu = \frac{\omega_0}{2\pi}. \quad (2-8)$$

拉莫尔频率是 NMR 实验中最基本且最重要的物理参数之一^[118]。在给定的外磁场强度下，不同种类的原子核由于旋磁比不同而具有不同的拉莫尔频率。例如，在 $B_0 \approx 9.4 \text{ T}$ 的磁场下， ^1H 的共振频率约为 400 MHz，而 ^{13}C 的共振频率约为 100 MHz。正是由于这种显著的频率差异，实验者可以通过调节射频脉冲的频率实现对特定核种的选择性操控，而不会显著影响其他核种的自旋动力学。

2.1.2 化学位移

在实际的分子体系中，原子核并非孤立地处于外磁场之中，而是被周围的电子云所包围。这些电子在外磁场的作用下会产生感应电流，进而生成一个与外磁场方向相反的局域磁场 B_{ind} ，对原子核产生屏蔽效应。因此，原子核实际感受到的有效磁场为

$$B_{\text{eff}} = B_0(1 - \sigma_{\text{cs}}), \quad (2-9)$$

其中 σ_{cs} 为化学屏蔽常数，其大小取决于原子核周围的化学环境。由此导致的拉莫尔频率偏移被称为化学位移（chemical shift）。

化学位移的存在使得即使是同一种原子核（例如同一分子中的不同 ^{13}C 核），由于各自所处的化学环境不同，其共振频率也会有所差异^[99;118]。这种频率差异通常在几十到几千赫兹的量级，远小于不同核种之间的频率差异，但足以在 NMR 谱图中被清晰分辨。正是化学位移的存在，使得一个含有 n 个可区分的自旋 $1/2$ 原子核的分子可以被用作一个 n 比特的量子处理器，其中每个原子核对应一个量子比特。

考虑化学位移后， n 个核自旋在静磁场中的塞曼哈密顿量可以写为

$$H_0 = \sum_{i=1}^n \frac{\omega_i}{2} \sigma_z^i, \quad (2-10)$$

其中 ω_i 为第 i 个核自旋考虑化学位移后的拉莫尔频率。在液态 NMR 实验中，由于分子在溶液中的快速翻滚运动，化学位移的各向异性部分被平均掉，仅保留各向同性的标量贡献。

2.1.3 自旋间耦合相互作用

在含有多个核自旋的分子中，不同原子核之间存在相互作用，这些相互作用是实现多比特量子门操作的物理基础^[118]。核自旋之间的相互作用主要分为两类：直接偶极-偶极（dipole-dipole）相互作用与间接标量（ J ）耦合相互作用。

直接偶极-偶极相互作用源于两个核磁矩之间的经典磁偶极相互作用，其强度与两核之间的距离 r 成 r^{-3} 关系，并且依赖于连接两核的矢量与外磁场方向之间的夹角。在液态 NMR 实验中，溶液中的分子进行快速且随机的布朗运动，使得偶极-偶极相互作用中与取向相关的因子 $(1 - 3 \cos^2 \theta)$ 在时间平均下趋于零。因此，在液态 NMR 中，直接偶极-偶极相互作用通常可以忽略不计。

间接标量耦合 (J 耦合) 则是通过两个原子核之间共享的化学键电子云所介导的相互作用^[118]。与直接偶极相互作用不同, J 耦合不依赖于分子的空间取向, 因此在液态样品中不会被分子运动平均掉。对于各向同性的液体分子, J 耦合哈密顿量的一般形式为

$$H_J = \sum_{i < j} \frac{\pi J_{ij}}{2} (\sigma_x^i \sigma_x^j + \sigma_y^i \sigma_y^j + \sigma_z^i \sigma_z^j), \quad (2-11)$$

其中 J_{ij} 为第 i 个与第 j 个核自旋之间的标量耦合常数, 单位为赫兹。

在大多数液态 NMR 实验中, 不同核自旋之间的化学位移差 $|\omega_i - \omega_j|$ 远大于耦合常数 $|J_{ij}|$, 此时满足所谓的弱耦合近似条件。在该近似下, J 耦合哈密顿量可以进一步简化为仅保留 $\sigma_z \sigma_z$ 项的形式:

$$H_J \approx \sum_{i < j} \frac{\pi J_{ij}}{2} \sigma_z^i \sigma_z^j. \quad (2-12)$$

对于异核样品 (如同时含有 ^1H 和 ^{13}C 的分子), 弱耦合条件几乎总是满足的, 因为不同核种之间的拉莫尔频率差异可达数百兆赫兹量级。对于同核样品 (如仅含 ^{13}C 的分子), 只要不同核的化学位移差远大于耦合常数, 弱耦合近似同样适用。在本论文所涉及的实验中, 所使用的 ^{13}C 标记巴豆酸样品均满足弱耦合条件。

J 耦合常数的大小通常在几赫兹到几百赫兹之间, 其符号可正可负。耦合常数的绝对值可以通过实验谱图中劈裂峰之间的间距直接测定。 J 耦合的存在使得一个核自旋除了感受到外磁场 B_0 的作用外, 还会感受到邻近自旋在 \hat{z} 方向产生的附加有效磁场, 从而导致其能级发生进一步的分裂。这种耦合效应正是 NMR 中实现双比特量子门操作的物理基础。

2.1.4 NMR 系统的总哈密顿量与旋转坐标系

综合上述讨论, 对于一个含有 n 个满足弱耦合条件的核自旋的液态 NMR 样品, 其在静磁场 B_0 下的内部哈密顿量可以统一写为

$$H_{\text{int}} = \sum_{i=1}^n \pi \nu_i \sigma_z^i + \sum_{i < j} \frac{\pi J_{ij}}{2} \sigma_z^i \sigma_z^j, \quad (2-13)$$

其中 ν_i 为第 i 个核自旋在旋转坐标系下的化学位移频率 (单位为赫兹), J_{ij} 为核自旋 i 与 j 之间的标量耦合常数。第一项描述了各核自旋在考虑化学位移后的塞曼分裂, 第二项描述了核自旋之间的 J 耦合相互作用。这一形式与本论文后续实验

工作中所使用的哈密顿量参数化方式一致^[99;121]。

仅依赖内部哈密顿量 H_{int} ，系统只能实现绕 \hat{z} 轴的单比特旋转以及由 J 耦合驱动的双比特受控相位门。为了实现普适的量子逻辑门集合，还需要引入外部控制手段。在 NMR 中，这通过在 x - y 平面施加射频（RF）磁场脉冲来实现。射频场由两个正交的发射线圈分别控制，可以在 x - y 平面上以任意相位 ϕ 、振幅 B_1 和频率 ω_{rf} 施加旋转磁场。对于 n 个核自旋的系统，控制哈密顿量的形式为

$$H_c(t) = - \sum_{i=1}^n \frac{\gamma_i B_1^i}{2} [\cos(\omega_{\text{rf}}^i t + \phi_i) \sigma_x^i + \sin(\omega_{\text{rf}}^i t + \phi_i) \sigma_y^i], \quad (2-14)$$

其中 B_1^i 、 ω_{rf}^i 和 ϕ_i 分别为作用在第 i 个核自旋上的射频场的振幅、频率和初始相位。

在实验室坐标系中，总哈密顿量 $H = H_{\text{int}} + H_c(t)$ 包含随时间快速振荡的项，分析起来较为繁琐。为简化处理，通常引入以各核自旋射频频率 ω_{rf}^i 为参考的旋转坐标系^[99;118]。通过么正变换

$$|\psi\rangle_{\text{rot}} = \exp\left(-i \sum_{i=1}^n \frac{\omega_{\text{rf}}^i t}{2} \sigma_z^i\right) |\psi\rangle, \quad (2-15)$$

可以将总哈密顿量变换为旋转坐标系下的等效哈密顿量：

$$H_{\text{rot}} = \sum_{i=1}^n \frac{\Omega_i}{2} \sigma_z^i + \sum_{i<j} \frac{\pi J_{ij}}{2} \sigma_z^i \sigma_z^j - \sum_{i=1}^n \frac{\omega_1^i}{2} [\cos(\phi_i) \sigma_x^i + \sin(\phi_i) \sigma_y^i], \quad (2-16)$$

其中 $\Omega_i = \omega_i - \omega_{\text{rf}}^i$ 为第 i 个核自旋的偏共振频率， $\omega_1^i = \gamma_i B_1^i$ 为射频场的 Rabi 频率。

在旋转坐标系中，当射频场的频率 ω_{rf}^i 恰好等于目标核自旋的拉莫尔频率 ω_i 时，偏共振项 $\Omega_i = 0$ ，核自旋将在 x - y 平面内绕由相位 ϕ_i 确定的轴进行旋转，旋转角度由 ω_1^i 与脉冲作用时间的乘积决定。当射频频率远离某个核自旋的共振频率时，该核自旋几乎不受射频场的影响。这种频率选择性是 NMR 中实现对单个量子比特进行寻址操控的关键机制。

2.2 NMR 中的量子态制备

在标准的量子计算模型中，计算过程通常从一个确定的纯态（如 $|0\rangle^{\otimes n}$ ）出发^[48]。然而，NMR 量子计算面临一个根本性的挑战：在常温常压条件下，NMR

样品中的核自旋系统处于热平衡态，其极化度极低，远非纯态。本节将讨论如何从热平衡态出发，通过 PPS 技术为 NMR 量子计算提供有效的初始态。

2.2.1 热平衡态与高温近似

NMR 实验中的样品通常包含约 10^{18} 量级的全同分子，这些分子中的核自旋构成一个宏观系统^[118]。在室温 ($T \approx 300$ K) 和强磁场 ($B_0 \sim 10$ T) 条件下，核自旋系统处于热力学平衡态，其密度矩阵由玻尔兹曼分布给出：

$$\rho_{\text{th}} = \frac{e^{-H_{\text{int}}/k_B T}}{\mathcal{Z}}, \quad \mathcal{Z} = \text{Tr}(e^{-H_{\text{int}}/k_B T}), \quad (2-17)$$

其中 k_B 为玻尔兹曼常数， T 为系统温度， \mathcal{Z} 为配分函数。

在典型的 NMR 实验条件下，核自旋的塞曼分裂能量远小于热能，即 $\hbar\omega_0 \ll k_B T$ 。以 ^1H 在 $B_0 = 11.7$ T 磁场下为例，其拉莫尔频率约为 500 MHz，对应的能量 $\hbar\omega_0 \approx 3.3 \times 10^{-25}$ J，而室温下的热能 $k_B T \approx 4.1 \times 10^{-21}$ J，二者相差约四个数量级。这意味着核自旋的上下能级布居数几乎相等，系统的极化度 $\epsilon = \hbar\omega_0/(2k_B T)$ 仅约为 10^{-5} 量级。

在此高温近似条件下， J 耦合相互作用的能量贡献相对于塞曼项更为微小，可以在热平衡态的表达式中忽略。因此，热平衡态可以近似展开为

$$\rho_{\text{th}} \approx \frac{1}{2^n} \left(\mathbb{I}^{\otimes n} + \sum_{i=1}^n \frac{\hbar\omega_i}{2k_B T} \sigma_z^i \right) = \frac{1}{2^n} \left(\mathbb{I}^{\otimes n} + \sum_{i=1}^n \epsilon_i \sigma_z^i \right), \quad (2-18)$$

其中 $\epsilon_i = \hbar\omega_i/(2k_B T)$ 为第 i 个核自旋的极化度。上式表明，热平衡态在高温极限下近似为最大混合态 $\mathbb{I}^{\otimes n}/2^n$ 加上一个极小的偏差项。这个偏差项虽然微小，却是 NMR 信号的唯一来源——单位矩阵部分在任何么正操作下保持不变，且对可观测量的期望值没有贡献。

2.2.2 赝纯态的概念与意义

由于热平衡态的极化度极低，直接将其用作量子计算的初始态是不可行的。一种直觉上的解决方案是通过极端冷却将系统制备到基态 $|0\rangle^{\otimes n}$ ，但这在实验上既不现实（需要接近绝对零度的温度），也会导致液态样品凝固而无法进行 NMR 实验。

为解决这一困难，Cory 等人于 1997 年提出了 PPS 的概念^[105;110]。赝纯态的核心思想是：虽然无法将整个系统制备为真正的纯态，但可以通过一系列操作将

热平衡态变换为如下形式：

$$\rho_{\text{PPS}} = \frac{1-\epsilon}{2^n} \mathbb{I}^{\otimes n} + \epsilon |\psi\rangle\langle\psi|, \quad (2-19)$$

其中 $|\psi\rangle\langle\psi|$ 是一个纯态（通常取为 $|0\rangle^{\otimes n}\langle 0|^{\otimes n}$ ）， ϵ 是一个与极化度相关的小参数。

赝纯态的关键性质在于：尽管 ρ_{PPS} 本身并非纯态，但其在后续么正演化过程中的行为与纯态 $|\psi\rangle$ 完全等价。这是因为单位矩阵部分 $\mathbb{I}^{\otimes n}/2^n$ 在任何么正变换下保持不变，且不贡献可观测的 NMR 信号。因此，所有实验可观测量的变化完全由 $\epsilon|\psi\rangle\langle\psi|$ 这一“有效纯态”部分决定。系数 ϵ 仅影响信号的整体强度，而不改变量子态的演化规律。正因如此，赝纯态也被称为有效纯态（effective pure state）。

2.2.3 梯度磁场脉冲

梯度磁场脉冲（pulsed field gradient）是 NMR 实验中一种重要的非么正操控手段，在赝纯态制备、混态构造以及相干选择等多种实验任务中均发挥着关键作用。本小节对其物理原理进行介绍。

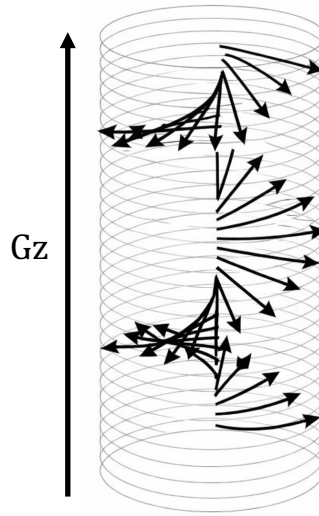


Figure 2-2 梯度磁场脉冲的工作原理示意图。梯度场沿 \hat{z} 方向施加空间线性变化的附加磁场 $G_z \cdot z$ ，使得样品管中不同位置的核自旋以不同频率进动，经过足够长的作用时间后，横向磁化矢量因相位随机化而被平均为零，仅保留纵向分量。

如图 2-2 所示，梯度场是沿 \hat{z} 方向施加的一个空间线性变化的附加磁场，使得样品管中位于不同空间位置 z 处的核自旋所感受到的总磁场为

$$B(z) = B_0 + G_z \cdot z, \quad (2-20)$$

其中 B_0 为主磁场强度, $G_z = \partial B_z / \partial z$ 为梯度场强度。相应地, 位于 z 处的核自旋的拉莫尔频率变为

$$\omega(z) = \gamma(B_0 + G_z \cdot z) = \omega_0 + \gamma G_z \cdot z, \quad (2-21)$$

其中 γ 为旋磁比, $\omega_0 = \gamma B_0$ 为无梯度场时的拉莫尔频率。在梯度场作用时间 τ 内, 位于 z 处的核自旋相对于旋转坐标系积累的额外相位为

$$\phi(z) = \gamma G_z \cdot z \cdot \tau. \quad (2-22)$$

由于液态样品中的分子沿 \hat{z} 方向近似均匀分布, 经过足够强的梯度场作用后, 不同位置的核自旋在 x - y 平面内的相位将完全随机化。对系综进行空间平均时, 横向磁化矢量的贡献为

$$\langle e^{i\phi(z)} \rangle_z = \frac{1}{L} \int_{-L/2}^{L/2} e^{i\gamma G_z z \tau} dz = \text{sinc}\left(\frac{\gamma G_z L \tau}{2}\right), \quad (2-23)$$

其中 L 为样品沿 z 方向的有效长度。当梯度场足够强 (即 $\gamma G_z L \tau \gg 2\pi$) 时, 上式趋近于零, 导致系综的横向磁化矢量被平均为零。换言之, 梯度场的作用等效于将密度矩阵中所有包含 σ_x 或 σ_y 分量的非对角元素消除, 仅保留 σ_z 方向的纵向分量:

$$\rho \xrightarrow{G_z} \sum_k \langle k | \rho | k \rangle |k\rangle \langle k| \quad (\text{在计算基下}), \quad (2-24)$$

其中求和遍历计算基 $\{|k\rangle\}$ 。更一般地, 对于多比特系统, 梯度场消除所有包含横向算符 (σ_x 、 σ_y) 的泡利直积项, 仅保留由 \mathbb{I} 和 σ_z 构成的对角项。

这一非幺正操作在 NMR 实验中具有广泛的用途。除了在赝纯态制备的空间平均法中用于消除不需要的横向相干项之外, 梯度场还常用于: (i) 从热平衡态出发制备特定的混合态, 例如在 DQC1 模型中通过梯度场将部分核自旋的极化消除, 从而直接获得最大混态寄存器 (详见第 2.5 节); (ii) 在量子过程实验中选择性地消除特定比特的相干性, 以构造所需的初始量子态。

2.2.4 空间平均法制备赝纯态

目前已有多种从热平衡态制备赝纯态的实验方法, 包括时间平均法^[10]、空间平均法^[110]、逻辑标记法^[108]等。在本论文的实验工作中, 主要采用空间平均法进行赝纯态制备, 因此这里对该方法进行详细介绍。

空间平均法的核心工具是上一小节介绍的梯度磁场脉冲。其基本策略是: 通

过若干次射频脉冲操作与梯度场的交替施加，将热平衡态中的偏差密度矩阵逐步变换为与基态 $|0\rangle^{\otimes n}\langle 0|^{\otimes n}$ 成比例的形式。以同核双比特系统为例，热平衡态的偏差部分（忽略单位矩阵）可以用直积算符表示为

$$\Delta\rho_{\text{th}} = \sigma_z \otimes \mathbb{I} + \mathbb{I} \otimes \sigma_z. \quad (2-25)$$

空间平均法的操作序列为

$$\Delta\rho_{\text{th}} \xrightarrow{R_x^2(\pi/3)} \xrightarrow{G_z} \xrightarrow{R_x^1(\pi/4)} \xrightarrow{U_J(1/2J)} \xrightarrow{R_y^1(\pi/4)} \xrightarrow{G_z} \frac{1}{2}(\sigma_z \otimes \mathbb{I} + \mathbb{I} \otimes \sigma_z + \sigma_z \otimes \sigma_z), \quad (2-26)$$

其中 $R_\alpha^i(\theta)$ 表示对第 i 个核自旋绕 α 轴旋转 θ 角度， G_z 表示梯度场操作（消除横向分量）， $U_J(1/2J)$ 表示两核自旋在 J 耦合作用下自由演化 $1/(2J)$ 的时间。最终得到的偏差密度矩阵 $\frac{1}{2}(\sigma_z \otimes \mathbb{I} + \mathbb{I} \otimes \sigma_z + \sigma_z \otimes \sigma_z)$ 加上单位矩阵后，恰好正比于 $|00\rangle\langle 00|$ ，即成功制备了双比特赝纯态。

对于更多比特的系统，空间平均法的操作序列更为复杂，但基本原理相同：通过脉冲操作在不同的直积算符分量之间进行转换，再利用梯度场选择性地消除不需要的横向分量，最终将偏差密度矩阵塑造为目标赝纯态的形式。

四比特巴豆酸样品的赝纯态制备

由于本论文第三、四、五章的实验均基于四比特 ^{13}C 标记巴豆酸样品，这里以该系统为例，详细说明空间平均法制备四比特赝纯态 $|0000\rangle$ 的具体过程^[82;110;122]。

四比特系统的热平衡态在高温近似下的偏差密度矩阵为

$$\Delta\rho_{\text{th}} = \sum_{i=1}^4 \epsilon_i \sigma_z^i, \quad (2-27)$$

其中 ϵ_i 为第 i 个 ^{13}C 核自旋的极化度。对于同核系统，各核自旋的极化度近似相等（ $\epsilon_i \approx \epsilon$ ），因此偏差密度矩阵可以简化为

$$\Delta\rho_{\text{th}} \approx \epsilon (\sigma_z \mathbb{I} \mathbb{I} \mathbb{I} + \mathbb{I} \sigma_z \mathbb{I} \mathbb{I} + \mathbb{I} \mathbb{I} \sigma_z \mathbb{I} + \mathbb{I} \mathbb{I} \mathbb{I} \sigma_z). \quad (2-28)$$

目标赝纯态 $|0000\rangle\langle 0000|$ 的偏差部分可以展开为所有包含 σ_z 和 \mathbb{I} 的直积算符之和：

$$\Delta\rho_{\text{PPS}} \propto \sum_{\{s_i\} \neq \{0,0,0,0\}} \bigotimes_{i=1}^4 \sigma_{s_i}, \quad s_i \in \{0, z\}, \quad (2-29)$$

即包含 $\sigma_z \text{III}$ 、 $\text{II}\sigma_z \text{II}$ 、 $\sigma_z \sigma_z \text{III}$ 、 $\sigma_z \sigma_z \sigma_z \text{II}$ 、 $\sigma_z \sigma_z \sigma_z \sigma_z$ 等共 $2^4 - 1 = 15$ 个非平凡的 Z 串算符项。而热平衡态的偏差部分仅包含 4 个单体 σ_z 项，因此空间平均法的任务是通过脉冲操作和梯度场，将缺失的 11 个多体 σ_z 关联项逐步生成。

四比特空间平均法的脉冲序列如图 2-3 所示。整个制备过程由三个梯度场脉冲 G_z 分隔为四个操作段，每个操作段包含单比特旋转门和由 J 耦合演化实现的双比特门。其核心思路如下：

(1) 对第 i 个核自旋施加绕 \hat{x} 轴的旋转 $R_x^i(\theta_i)$ ，其中旋转角度 $\theta_i = \arccos(1/2^{i-1})$ （即 $\theta_1 = \arccos(1/2)$ ， $\theta_2 = \arccos(1/4)$ ， $\theta_3 = \arccos(1/8)$ ）。这些特定角度的选取确保了在后续梯度场消除横向分量后，各核自旋的纵向极化按照目标赝纯态所需的比例重新分配。

(2) 在相邻核自旋之间利用 J 耦合演化实现受控操作，将单体 σ_z 项转化为多体 $\sigma_z \sigma_z$ 、 $\sigma_z \sigma_z \sigma_z$ 等关联项。

(3) 施加梯度场脉冲 G_z ，消除所有包含 σ_x 或 σ_y 分量的横向相干项，仅保留 σ_z 方向的纵向分量。

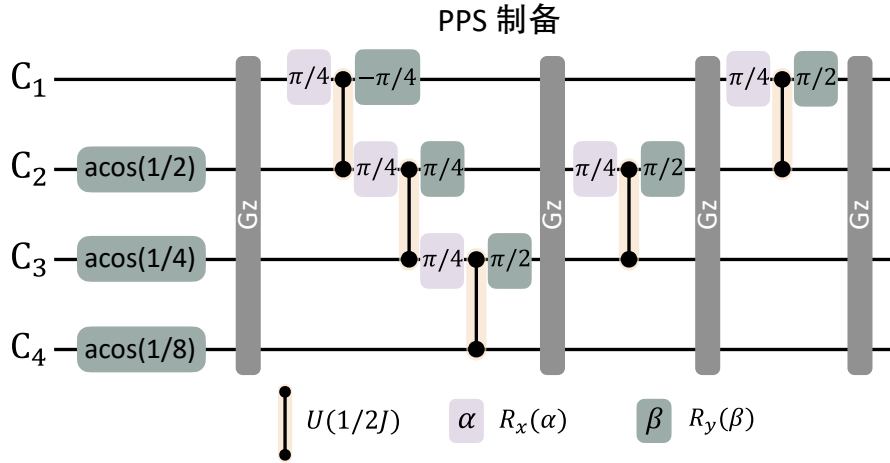


Figure 2-3 四比特赝纯态制备的 NMR 脉冲序列。蓝色和绿色矩形分别表示绕 \hat{x} 轴和 \hat{y} 轴的单比特旋转门，灰色矩形表示 \hat{z} 方向梯度场脉冲 G_z 。梯度场脉冲将脉冲序列分隔为四个操作段，每段中的单比特旋转和双比特耦合演化共同作用，将热平衡态的偏差密度矩阵逐步变换为目标赝纯态 $|0000\rangle\langle 0000|$ 的形式。

经过上述脉冲序列的作用，热平衡态被变换为四比特赝纯态：

$$\rho_{\text{PPS}} = \frac{1 - \epsilon'}{16} \mathbb{I}_{16} + \epsilon' |0000\rangle\langle 0000|, \quad (2-30)$$

其中 ϵ' 为赝纯态的有效极化度。单位矩阵 \mathbb{I}_{16} 在任何么正变换下保持不变，且

在 NMR 实验中不产生可观测信号，因此该量子系统可以被等效地视为处于纯态 $|0000\rangle\langle 0000|$ 。

在实际实验中，为了缩短制备时间并提高保真度，通常将图 2-3 中由梯度场分隔的每个操作段整合为一个么正操作，然后利用 GRAPE 最优控制算法（详见第 2.3.3 节）搜索对应的射频脉冲波形。在本论文的实验中，四个操作段对应的 GRAPE 优化脉冲时长分别约为 3 ms、20 ms、15 ms 和 15 ms，所有脉冲的模拟保真度均超过 99.5%^[122]。

值得指出的是，赝纯态制备过程中信号强度会有所损失。对于 n 比特系统，空间平均法制备赝纯态后的有效信号强度大致按 $1/2^n$ 的比例衰减^[99-100]。对于四比特系统，有效信号衰减为原始热平衡信号的约 $1/16$ 。这意味着随着量子比特数的增加，可用信号将指数级减小，这也是 NMR 量子计算在可扩展性方面面临的主要限制之一。

2.3 NMR 中的量子门实现

量子计算的核心在于通过一系列量子逻辑门操作对量子态进行精确操控^[48]。在 NMR 体系中，单比特门通过射频脉冲实现，多比特门则借助核自旋之间的 J 耦合相互作用来完成。本节将详细介绍这些量子门的实现原理，以及用于提升门操作保真度的 GRAPE 脉冲优化技术。

2.3.1 单比特量子门：射频脉冲操控

如第 2.1 节所述，在旋转坐标系中，当射频脉冲的频率与目标核自旋的拉莫尔频率共振时（ $\omega_{\text{rf}}^I = \omega_i$ ），该核自旋感受到的有效哈密顿量简化为^[99;118]

$$H_{\text{pulse}} = -\frac{\omega_1}{2} [\cos(\phi)\sigma_x + \sin(\phi)\sigma_y], \quad (2-31)$$

其中 $\omega_1 = \gamma B_1$ 为射频场的 Rabi 频率， ϕ 为射频场的相位。在脉冲持续时间 τ 内，若射频场振幅保持恒定，则该脉冲被称为硬脉冲（hard pulse）。其对应的时间演化算符为

$$U = \exp\left[i\frac{\omega_1\tau}{2} (\cos\phi\sigma_x + \sin\phi\sigma_y)\right], \quad (2-32)$$

其物理效果是使核自旋绕布洛赫球 x - y 平面内相位角为 ϕ 的轴旋转 $\theta = \omega_1\tau$ 角度。通过调节射频场的相位 ϕ 和脉冲持续时间 τ ，可以实现绕 \hat{x} 轴和 \hat{y} 轴的任意角度

旋转 $R_x(\theta)$ 和 $R_y(\theta)$ 。绕 \hat{z} 轴的旋转则可通过组合实现：

$$R_z(\theta) = R_x\left(\frac{\pi}{2}\right) R_y(\theta) R_x\left(-\frac{\pi}{2}\right). \quad (2-33)$$

由于 R_x 、 R_y 和 R_z 的任意角度旋转均可实现，射频脉冲能够构造 $SU(2)$ 群中的任意单比特量子门^[48]。

对于异核样品（如同时含有 ^1H 和 ^{13}C 的分子），不同核种的拉莫尔频率相差数百兆赫兹，因此将射频脉冲频率调至目标核种的共振频率即可实现高度选择性的激发，对非目标核种的影响可以忽略不计。

然而，对于同核样品（如仅含 ^{13}C 的分子），不同核自旋之间的拉莫尔频率差异仅来源于化学位移，通常只有几百到几千赫兹。此时，硬脉冲的带宽远大于这些频率差异，将同时激发所有同核核自旋，无法实现选择性操控。为解决这一问题，需要使用软脉冲（soft pulse）或形状脉冲（shaped pulse）^[99-100]。软脉冲的特点是持续时间较长、振幅较小，其频谱带宽足够窄，从而只激发特定化学位移处的目标核自旋。常用的软脉冲波形包括高斯型脉冲和 SINC 型脉冲等。对于更复杂的操作需求，则需要借助数值优化方法（如 GRAPE 算法）来设计高保真度的形状脉冲。

2.3.2 双比特量子门： J 耦合演化

在液态 NMR 中，双比特量子门的实现依赖于核自旋之间的 J 耦合相互作用^[99]。在弱耦合近似下，两个核自旋 i 和 j 之间的耦合演化算符为

$$U_J(t) = \exp\left(-i\frac{\pi J_{ij}}{2}\sigma_z^i\sigma_z^j t\right). \quad (2-34)$$

这一演化的物理图像是：当其中一个核自旋处于 $|0\rangle$ 态时，另一个核自旋绕 \hat{z} 轴沿一个方向进动；当前者处于 $|1\rangle$ 态时，后者则沿相反方向进动。经过 $t = 1/(2J_{ij})$ 的演化时间后，两种情况下的相位差积累为 $\pi/2$ 。

利用这种受控相位积累效应，结合适当的单比特旋转操作，可以构造 CNOT 门。其分解形式为^[99]

$$U_{\text{CNOT}} = \sqrt{i} R_z^1\left(\frac{\pi}{2}\right) R_z^2\left(-\frac{\pi}{2}\right) R_x^2\left(\frac{\pi}{2}\right) U_J\left(\frac{1}{2J}\right) R_y^2\left(\frac{\pi}{2}\right), \quad (2-35)$$

其中脉冲序列从右向左依次作用， $\sqrt{i} R_z^1(\pi/2) R_z^2(-\pi/2)$ 为相位校正项。由于单比特门和 CNOT 门共同构成普适量子逻辑门集合^[48]，NMR 体系原则上可以实现任意的量子计算操作。

在实际实验中，一个重要的技术细节是： J 耦合演化 $U_J(1/2J)$ 理想情况下应仅包含目标核自旋对之间的耦合作用。然而，在多比特系统中，目标核自旋还会与其他非目标核自旋发生耦合，这些非期望的耦合演化会引入误差。为消除这些不需要的耦合效应，需要使用回聚（refocusing）脉冲序列。其基本原理是：在自由演化的中间时刻，对非目标核自旋施加一个 π 脉冲（绕 \hat{x} 或 \hat{y} 轴旋转 π 角度），使得前半段和后半段的耦合演化效果相互抵消：

$$R_x^k(\pi) U_J(\tau/2) R_x^k(-\pi) U_J(\tau/2) = U_J(-\tau/2) U_J(\tau/2) = \mathbb{I}. \quad (2-36)$$

对于多比特系统，回聚脉冲序列的设计更为复杂，需要精心安排各个 π 脉冲的时序，以同时消除多对非目标耦合^[99]。

2.3.3 GRAPE 脉冲优化技术

在前两小节中，我们介绍了基于硬脉冲和自由演化的量子门实现方案。这种“分解-拼接”的方法虽然概念清晰，但在实际应用中存在若干局限：（i）对于同核样品，硬脉冲无法实现选择性激发；（ii）多步操作的累积误差会降低整体保真度；（iii）较长的操作序列会消耗宝贵的相干时间^[100]。为克服这些问题，Khaneja 等人于 2005 年提出了梯度上升脉冲工程（gradient ascent pulse engineering, GRAPE）算法^[123]，该方法通过数值优化直接搜索能够实现目标量子操作的最优射频脉冲波形。

GRAPE 算法的基本思想是将一段总时长为 T 的形状脉冲离散化为 N 个时间片段，每个片段的持续时间为 $\Delta t = T/N$ 。在第 m 个时间片段内，射频场的振幅和相位保持恒定，等效于一个短硬脉冲。因此，第 m 段的演化算符可以写为

$$U_m = \exp \left[-i\Delta t \left(H_{\text{int}} + \sum_k u_x^k[m] \sigma_x^k + \sum_k u_y^k[m] \sigma_y^k \right) \right], \quad (2-37)$$

其中 $u_x^k[m]$ 和 $u_y^k[m]$ 分别为第 m 个时间片段中作用在第 k 个核自旋上的射频场在 x 和 y 方向的控制振幅。整个脉冲序列的总演化算符为所有片段的有序乘积：

$$U_T = U_N U_{N-1} \cdots U_2 U_1. \quad (2-38)$$

GRAPE 算法的目标是通过优化控制参数 $\{u_x^k[m], u_y^k[m]\}$ ，使得总演化算符 U_T 尽可能接近目标操作 U_{tar} 。为此，需要定义一个衡量二者接近程度的目标函数（fit-

ness function)。对于么正操作的优化，常用的目标函数为门保真度：

$$F_U = \frac{|\text{Tr}(U_{\text{tar}}^\dagger U_T)|^2}{2^{2n}}. \quad (2-39)$$

对于量子态制备的优化，目标函数则取为态保真度：

$$F_\rho = \text{Tr}(\rho_{\text{tar}} \rho_T), \quad (2-40)$$

其中 ρ_T 为经过脉冲序列演化后的末态密度矩阵。

优化过程采用梯度上升策略。在一阶近似下，目标函数关于控制参数的梯度可以解析计算。以门保真度为例，其关于第 m 个时间片段中第 k 个核自旋 α 方向控制振幅的梯度为

$$\frac{\partial F_U}{\partial u_\alpha^k[m]} \approx -\frac{2}{2^n} \text{Re} \left[\text{Tr} \left(U_{\text{tar}}^\dagger U_N \cdots (-i\Delta t \sigma_\alpha^k) U_m \cdots U_1 \right) \right], \quad (2-41)$$

其中 $\alpha = x, y$ 。每次迭代中，控制参数沿梯度方向更新：

$$u_\alpha^k[m] \leftarrow u_\alpha^k[m] + \varepsilon \frac{\partial F_U}{\partial u_\alpha^k[m]}, \quad (2-42)$$

其中 ε 为步长参数。通过反复迭代，目标函数逐步提升，直至达到预设的保真度阈值。

GRAPE 算法在 NMR 量子计算中具有广泛的应用。它不仅可以用于设计高保真度的量子门操作，还可以直接优化从初态到目标末态的整个演化过程，包括赝纯态制备、特定量子态的生成等。在本论文后续章节的实验中，GRAPE 优化脉冲被大量用于实现各种量子操作，其典型保真度可达 99% 以上^[123]。GRAPE 脉冲的另一个重要优势在于，它在优化过程中自然地考虑了系统内部哈密顿量的影响（包括化学位移和 J 耦合），因此能够在较短的总脉冲时间内实现高保真度的操作，有效减少退相干效应带来的误差。

2.4 NMR 的测量与信号读取

NMR 量子计算中的测量机制与其他量子计算平台有着本质的区别^[99]。由于 NMR 实验操控的是由大量全同分子组成的宏观系综，其测量结果反映的是系综中所有分子的统计平均行为，而非对单个量子系统的投影测量。这种系综平均测量虽然在某些方面构成了限制，但也为特定类型的量子信息处理任务提供了独特的便利，尤其是在散射线路和 DQC1 模型的实现中（详见第 2.5 节）。

2.4.1 自由感应衰减信号与傅里叶变换

NMR 实验样品并非单个孤立的分子，而是由大量全同分子组成的系综体系。因此，NMR 系统所执行的量子态测量并非标准的投影测量，而是系综平均值测量^[99;118]。当量子计算线路中的所有操作执行完毕后，系统处于某个实验末态 ρ 。此时，末态核自旋的横向磁化分量会在外磁场 B_0 的作用下绕 \hat{z} 轴进动，同时由于退相干效应而逐渐衰减，最终恢复到热平衡态。进动的核自旋通过法拉第电磁感应定律在 x - y 平面内的接收线圈中感应出振荡电信号，该信号被称为自由感应衰减信号（free induction decay, FID）。FID 信号经过傅里叶变换等数据处理后，最终呈现为频域中的实验谱图。根据这些谱图，我们可以恢复出量子末态的密度矩阵元信息，从而实现量子态测量的目的。下面我们首先对一般 n 比特系统的 FID 信号进行定量推导，然后以四比特系统为例详细说明从实验谱线到泡利期望值的完整提取过程。

2.4.1.1 n 比特系统的一般理论

对于一个由 n 个核自旋组成的量子系统，其内部哈密顿量为 H_{int} （式 (2-13)），实验末态为 ρ ，第 m 个核自旋恢复到热平衡态的横向弛豫衰减因子为 $\lambda_m = 1/T_2^m$ 。观测第 m 个核自旋时，相应的 FID 信号可以写成^[99]

$$S_m(t) = C \text{Tr}(e^{-iH_{\text{int}}t} \rho e^{iH_{\text{int}}t} (\sigma_x^m - i\sigma_y^m)) e^{-\lambda_m t}, \quad (2-43)$$

其中 C 是与样品分子数、仪器增益等因素相关的比例系数（以下讨论中取 $C = 1$ ），算符 $\sigma_x^m - i\sigma_y^m$ 对应于第 m 个核自旋的降算符。利用迹的循环性质，上式可以改写为

$$S_m(t) = \text{Tr}(\rho e^{iH_{\text{int}}t} (\sigma_x^m - i\sigma_y^m) e^{-iH_{\text{int}}t}) e^{-\lambda_m t}. \quad (2-44)$$

为了将 FID 信号分解为独立的频率分量，我们首先对降算符进行计算基展开。注意到

$$\sigma_x^m - i\sigma_y^m = 2|1\rangle\langle 0|_m \otimes \sum_{k=0}^{2^{n-1}-1} |b(k, n-1)\rangle\langle b(k, n-1)|, \quad (2-45)$$

其中 $|b(k, n-1)\rangle$ 表示十进制数 k 的 $(n-1)$ 位二进制表示所对应的计算基态，求和遍历其余 $n-1$ 个核自旋的所有 2^{n-1} 个计算基态。将此展开代入式 (2-44)，FID

信号可以分解为 2^{n-1} 个独立的频率分量:

$$S_m(t) = \sum_{k=0}^{2^{n-1}-1} S_m^k(t). \quad (2-46)$$

以 $m = 1$ (即观测第一个核自旋) 为例, 每个分量对应于其余核自旋处于特定计算基态 $|i_2 i_3 \cdots i_n\rangle$ 的贡献:

$$S_1^k(t) = 2 \text{Tr}(\rho e^{iH_{\text{int}}t} |1, i_2, i_3, \dots, i_n\rangle \langle 0, i_2, i_3, \dots, i_n| e^{-iH_{\text{int}}t}) e^{-\lambda_1 t}. \quad (2-47)$$

下面推导每个分量的振荡频率。在弱耦合近似下, 内部哈密顿量 H_{int} (式 (2-13)) 的计算基态即为其本征态。对于态 $|1, i_2, i_3, \dots, i_n\rangle$, 有

$$e^{iH_{\text{int}}t} |1, i_2, \dots, i_n\rangle = \exp\left\{i\left[-\frac{\pi\nu_1}{2} + \sum_{l=2}^n \frac{(-1)^{i_l}\pi\nu_l}{2} - \sum_{l=2}^n \frac{(-1)^{i_l}\pi J_{1l}}{2} + \sum_{2 \leq j < l}^n \frac{(-1)^{i_j+i_l}\pi J_{jl}}{2}\right]t\right\} |1, i_2, \dots, i_n\rangle, \quad (2-48)$$

类似地,

$$\begin{aligned} \langle 0, i_2, \dots, i_n| e^{-iH_{\text{int}}t} = \langle 0, i_2, \dots, i_n| \exp\left\{-i\left[\frac{\pi\nu_1}{2} + \sum_{l=2}^n \frac{(-1)^{i_l}\pi\nu_l}{2} + \sum_{l=2}^n \frac{(-1)^{i_l}\pi J_{1l}}{2} + \sum_{2 \leq j < l}^n \frac{(-1)^{i_j+i_l}\pi J_{jl}}{2}\right]t\right\}. \end{aligned} \quad (2-49)$$

将式 (2-48) 和式 (2-49) 代入式 (2-47), 注意到两个指数因子中 ν_l ($l \geq 2$) 项和 J_{jl} ($2 \leq j < l$) 项相互抵消, 仅保留与第一个核自旋相关的化学位移项和耦合项, 最终得到

$$S_1^k(t) = 2 \text{Tr}(\rho |1, i_2, \dots, i_n\rangle \langle 0, i_2, \dots, i_n|) \cdot \exp\left[i\left(-\pi\nu_1 - \sum_{l=2}^n (-1)^{i_l}\pi J_{1l}\right)t\right] \cdot e^{-\lambda_1 t}. \quad (2-50)$$

因此, 每个频率分量 $S_1^k(t)$ 具有确定的振荡频率

$$2\pi\Omega_k = -\pi\nu_1 - \sum_{l=2}^n (-1)^{i_l}\pi J_{1l}, \quad (2-51)$$

以及确定的复振幅

$$A_k = 2 \langle 0, i_2, \dots, i_n | \rho | 1, i_2, \dots, i_n \rangle. \quad (2-52)$$

上述结果表明，第一个核自旋的 FID 信号被 J 耦合劈裂为 2^{n-1} 个子峰，每个子峰对应于其余 $n-1$ 个核自旋处于特定计算基态 $|i_2, \dots, i_n\rangle$ 的子空间。每个子峰的频率由化学位移 ν_1 和耦合常数 J_{1l} 共同决定，而其复振幅则直接正比于密度矩阵在相应子空间中的单量子相干元素。对于观测第 m 个核自旋的一般情况，只需将上述推导中的下标 1 替换为 m 即可。

2.4.1.2 傅里叶变换与谱峰结构

FID 信号是一个在时域中振荡衰减的复信号。对每个频率分量 $S_1^k(t)$ 进行傅里叶变换后，在频域中得到一个以吸收型和色散型洛伦兹曲线叠加的谱峰，其中心频率为 Ω_k ^[118]。吸收型（实部）和色散型（虚部）信号分别为

$$\begin{aligned} S_k^R(\Omega) &\propto \frac{\lambda}{\lambda^2 + (\Omega - \Omega_k)^2}, \\ S_k^I(\Omega) &\propto \frac{\Omega - \Omega_k}{\lambda^2 + (\Omega - \Omega_k)^2}. \end{aligned} \quad (2-53)$$

NMR 实验中观测到的谱图是上述两种信号以一定相位 ϕ 叠加的结果：

$$S_k(\Omega) \propto A \cos \phi S_k^R(\Omega) - A \sin \phi S_k^I(\Omega). \quad (2-54)$$

因此，每个谱峰 $S_k(\Omega)$ 给出以下期望值测量结果：

$$\begin{aligned} \langle M_x^k \rangle &= \text{Tr}(\rho \sigma_x^1 \otimes |i_2 \cdots i_n\rangle \langle i_2 \cdots i_n|) = A \cos \phi, \\ \langle M_y^k \rangle &= \text{Tr}(\rho \sigma_y^1 \otimes |i_2 \cdots i_n\rangle \langle i_2 \cdots i_n|) = A \sin \phi. \end{aligned} \quad (2-55)$$

其中 A 为谱峰的振幅， ϕ 为相位。这意味着，通过拟合每个谱峰的振幅和相位，可以直接提取出密度矩阵中对应的单量子相干信息。

2.4.1.3 从谱峰到泡利期望值

上述测量算符 M_x^k 和 M_y^k 可以与泡利算符的期望值建立直接联系。注意到投影算符 $|i_l\rangle \langle i_l|$ 可以用泡利算符表示为

$$|0\rangle \langle 0| = \frac{\mathbb{I} + \sigma_z}{2}, \quad |1\rangle \langle 1| = \frac{\mathbb{I} - \sigma_z}{2}, \quad (2-56)$$

即 $|i_l\rangle\langle i_l| = (\mathbb{I} + (-1)^{i_l}\sigma_z)/2$ 。将其代入式 (2-55)，通过对不同谱峰的振幅进行适当的线性组合（求和或求差），即可提取出所有形如 $\sigma_\alpha^1 \otimes P_2 \otimes P_3 \otimes \cdots \otimes P_n$ ($\alpha = x, y$, $P_l \in \{\mathbb{I}, \sigma_z\}$) 的泡利算符期望值。

2.4.1.4 四比特系统的详细示例

为了使上述一般理论更加具体和直观，下面以四比特系统为例，详细推导从实验谱线到泡利期望值的完整过程。这一示例与本论文后续章节中使用的四比特 ^{13}C 标记巴豆酸样品直接对应。

考虑一个四比特系统，标记四个核自旋为 1, 2, 3, 4。以观测第一个核自旋为例，降算符展开为

$$\sigma_x^1 - i\sigma_y^1 = 2|1\rangle\langle 0|_1 \otimes \sum_{i_2, i_3, i_4=0}^1 |i_2 i_3 i_4\rangle\langle i_2 i_3 i_4|. \quad (2-57)$$

根据式 (2-50)，第一个核自旋的 FID 信号被劈裂为 $2^3 = 8$ 个频率分量，每个分量对应于第 2, 3, 4 号核自旋处于特定计算基态 $|i_2 i_3 i_4\rangle$ 的子空间。第 k 个分量的中心频率为

$$2\pi\Omega_k = -\pi\nu_1 - (-1)^{i_2}\pi J_{12} - (-1)^{i_3}\pi J_{13} - (-1)^{i_4}\pi J_{14}, \quad (2-58)$$

其中 k 与 (i_2, i_3, i_4) 的对应关系由二进制编码确定。

这 8 个谱峰的频率位置完全由化学位移 ν_1 和三个耦合常数 J_{12} 、 J_{13} 、 J_{14} 决定。每个谱峰对应的测量算符为

$$M_\alpha^{i_2 i_3 i_4} = \sigma_\alpha^1 \otimes |i_2\rangle\langle i_2| \otimes |i_3\rangle\langle i_3| \otimes |i_4\rangle\langle i_4|, \quad \alpha = x, y. \quad (2-59)$$

将 8 个谱峰按照 (i_2, i_3, i_4) 的取值列出，并利用式 (2-56) 将投影算符展开为泡利算符，可以建立谱峰振幅与泡利期望值之间的完整对应关系。

具体而言, 8 个谱峰对应的测量算符 $M_x^{i_2 i_3 i_4}$ 为:

$$\begin{aligned}
 M_x^{000} &= \sigma_x \otimes |0\rangle\langle 0| \otimes |0\rangle\langle 0| \otimes |0\rangle\langle 0|, \\
 M_x^{001} &= \sigma_x \otimes |0\rangle\langle 0| \otimes |0\rangle\langle 0| \otimes |1\rangle\langle 1|, \\
 M_x^{010} &= \sigma_x \otimes |0\rangle\langle 0| \otimes |1\rangle\langle 1| \otimes |0\rangle\langle 0|, \\
 M_x^{011} &= \sigma_x \otimes |0\rangle\langle 0| \otimes |1\rangle\langle 1| \otimes |1\rangle\langle 1|, \\
 M_x^{100} &= \sigma_x \otimes |1\rangle\langle 1| \otimes |0\rangle\langle 0| \otimes |0\rangle\langle 0|, \\
 M_x^{101} &= \sigma_x \otimes |1\rangle\langle 1| \otimes |0\rangle\langle 0| \otimes |1\rangle\langle 1|, \\
 M_x^{110} &= \sigma_x \otimes |1\rangle\langle 1| \otimes |1\rangle\langle 1| \otimes |0\rangle\langle 0|, \\
 M_x^{111} &= \sigma_x \otimes |1\rangle\langle 1| \otimes |1\rangle\langle 1| \otimes |1\rangle\langle 1|.
 \end{aligned} \tag{2-60}$$

$M_y^{i_2 i_3 i_4}$ 的形式完全类似, 只需将 σ_x 替换为 σ_y 。

现在利用式 (2-56) 将每个投影算符展开为 $(\mathbb{I} \pm \sigma_z)/2$ 的形式。以 σ_x 方向为例, 通过对 8 个谱峰振幅进行线性组合, 可以提取出以下 8 个泡利算符的期望值:

$$\begin{aligned}
 \langle \sigma_x \mathbb{I} \mathbb{I} \mathbb{I} \rangle &= \sum_{i_2, i_3, i_4} \langle M_x^{i_2 i_3 i_4} \rangle, \\
 \langle \sigma_x \sigma_z \mathbb{I} \mathbb{I} \rangle &= \sum_{i_2, i_3, i_4} (-1)^{i_2} \langle M_x^{i_2 i_3 i_4} \rangle, \\
 \langle \sigma_x \mathbb{I} \sigma_z \mathbb{I} \rangle &= \sum_{i_2, i_3, i_4} (-1)^{i_3} \langle M_x^{i_2 i_3 i_4} \rangle, \\
 \langle \sigma_x \mathbb{I} \mathbb{I} \sigma_z \rangle &= \sum_{i_2, i_3, i_4} (-1)^{i_4} \langle M_x^{i_2 i_3 i_4} \rangle, \\
 \langle \sigma_x \sigma_z \sigma_z \mathbb{I} \rangle &= \sum_{i_2, i_3, i_4} (-1)^{i_2 + i_3} \langle M_x^{i_2 i_3 i_4} \rangle, \\
 \langle \sigma_x \sigma_z \mathbb{I} \sigma_z \rangle &= \sum_{i_2, i_3, i_4} (-1)^{i_2 + i_4} \langle M_x^{i_2 i_3 i_4} \rangle, \\
 \langle \sigma_x \mathbb{I} \sigma_z \sigma_z \rangle &= \sum_{i_2, i_3, i_4} (-1)^{i_3 + i_4} \langle M_x^{i_2 i_3 i_4} \rangle, \\
 \langle \sigma_x \sigma_z \sigma_z \sigma_z \rangle &= \sum_{i_2, i_3, i_4} (-1)^{i_2 + i_3 + i_4} \langle M_x^{i_2 i_3 i_4} \rangle.
 \end{aligned} \tag{2-61}$$

上述线性组合的系数规律可以简洁地表述为: 对于泡利算符 $\sigma_x^1 \otimes P_2 \otimes P_3 \otimes P_4$ (其中 $P_l \in \{\mathbb{I}, \sigma_z\}$), 第 (i_2, i_3, i_4) 个谱峰的系数为 $\prod_{l=2}^4 (-1)^{s_l i_l}$, 其中当 $P_l = \sigma_z$ 时 $s_l = 1$, 当 $P_l = \mathbb{I}$ 时 $s_l = 0$ 。这正是式 (2-56) 展开的直接结果。对 σ_y 方向完全类

似，可以得到另外 8 个泡利算符 $\langle \sigma_y P_2 P_3 P_4 \rangle$ 的期望值。

因此，仅通过观测第一个核自旋的 8 个劈裂谱峰，即可同时提取出 16 个泡利算符的期望值： $\langle \sigma_x^1 \otimes P_2 \otimes P_3 \otimes P_4 \rangle$ 和 $\langle \sigma_y^1 \otimes P_2 \otimes P_3 \otimes P_4 \rangle$ ，其中 $P_l \in \{\mathbb{I}, \sigma_z\}$ 。类似地，分别观测第 2, 3, 4 号核自旋的谱峰，可以提取出以 σ_x^m 或 σ_y^m 为目标核自旋分量、以 \mathbb{I} 或 σ_z 为其余核自旋分量的所有泡利算符期望值。

综上所述，NMR 谱图中每个核自旋对应一组由 J 耦合劈裂产生的谱峰簇，其中心频率由化学位移决定，劈裂模式反映了该核自旋与其他核自旋之间的耦合关系，而每个谱峰的复振幅则直接编码了密度矩阵中对应的单量子相干矩阵元。通过对谱峰振幅的线性组合，可以系统地提取出各泡利算符的期望值。这种信号结构使得 NMR 谱图成为提取量子态信息的天然工具。

2.4.2 从谱图中提取量子态信息

如上一小节所述，NMR 对第 m 个核自旋的直接测量所获取的是形如 $\sigma_\alpha^m \otimes P_{l_1} \otimes P_{l_2} \otimes \dots$ ($\alpha = x, y$, $P_l \in \{\mathbb{I}, \sigma_z\}$) 的泡利算符期望值。更一般地，每个谱峰的复振幅编码的可观测量可以统一写为^[99]

$$A_k = \left\langle (\sigma_x^m - i\sigma_y^m) \otimes_{l \neq m} \Pi_{l_l}^l \right\rangle, \quad (2-62)$$

其中 $\Pi_{l_l}^l = (\mathbb{I} + (-1)^{l_l} \sigma_z^l)/2$ 为第 l 个核自旋在计算基态 $|l_l\rangle$ 上的投影算符。因此，NMR 可以直接测量的可观测量集合为：目标核自旋取 σ_x 或 σ_y ，其余核自旋取 σ_z 或 \mathbb{I} 的所有单量子相干算符。

然而，NMR 无法直接测量纵向磁化分量 $\langle \sigma_z \rangle$ ，因为 σ_z 方向的磁化不会在接收线圈中感应出信号。为获取 $\langle \sigma_z \rangle$ 的信息，需要在信号采集之前施加一个额外的 $\pi/2$ 读出脉冲 (readout pulse)，将纵向磁化转换为横向磁化后再进行测量。例如，对第 m 个核自旋施加 $R_y^m(\pi/2)$ 脉冲，可将 σ_z^m 转换为 σ_x^m ，从而通过测量转换后的 $\langle \sigma_x^m \rangle$ 来间接获得原始的 $\langle \sigma_z^m \rangle$ 。更一般地，通过对不同核自旋施加不同的读出脉冲组合，可以将各种泡利算符分量转换为可直接观测的横向磁化。

单通过 NMR 可直接观测的算符还不能对一个未知的量子态进行完整的态重构，因为上述结论只能对未知量子态中的一阶相干项进行测量，无法对高阶相干项进行观测。例如，在四比特系统中，二阶相干项 $\sigma_x \sigma_x \mathbb{I} \mathbb{I}$ 不会产生实验信号。一个解决途径是通过观测脉冲将高阶相干项转换成一阶项再进行间接测量。例如，二阶相干项 $\sigma_x \sigma_x \mathbb{I} \mathbb{I}$ 在旋转操作 $R_y^2(-\pi/2)$ 的作用下会变成一阶项 $\sigma_x \sigma_z \mathbb{I} \mathbb{I}$ ，后者可以

直接从谱峰中读取。因此，通过一定的观测脉冲集合可以完全实现对未知量子态的量子态重构^[124]。

对于 n 比特系统，密度矩阵可以展开为 4^n 个泡利基算符的线性组合，完整的量子态层析需要测量所有这些泡利算符的期望值。在 NMR 中，这通常通过在信号采集前施加不同的读出脉冲序列来实现，每组读出脉冲将不同的泡利算符分量转换为可直接观测的横向磁化。值得注意的是，由于每次测量可以同时获取多个核自旋的谱峰信息，且每个核自旋的谱峰又包含 2^{n-1} 个劈裂峰，因此单次实验即可同时提取多个泡利算符的期望值，这使得 NMR 的量子态层析效率远高于逐一测量单个可观测量的方案。对于特定的量子系统，究竟需要多少观测脉冲才能实现未知量子态的量子态重构，是一个优化问题。2002 年 Lee 等人基于核磁共振测量原理给出了量子态重构的方法^[124]，2017 年 Li 等人给出了核磁共振系统做量子态重构所需要最少的观测脉冲个数^[124]。

2.4.3 密度矩阵对角元素的读取

在本论文后续章节的实验中，一个频繁出现的测量任务是提取密度矩阵的对角元素，即各计算基态的布居数。这些对角元素可以表示为一组特定泡利算符期望值的线性组合。

对于 n 比特系统，密度矩阵的第 k 个对角元素 $\rho_{kk} = \langle k | \rho | k \rangle$ （其中 $|k\rangle$ 为计算基态）可以写为

$$\rho_{kk} = \frac{1}{2^n} \sum_{\{s_i\}} \prod_{i=1}^n (-1)^{k_i \cdot s_i} \langle \otimes_{i=1}^n \sigma_{s_i}^i \rangle, \quad (2-63)$$

其中求和遍历所有 $s_i \in \{0, z\}$ 的组合（ $\sigma_0 = \mathbb{I}$ ， σ_z 为泡利 Z 矩阵）， k_i 为 $|k\rangle$ 的第 i 个比特值。这意味着，只需测量所有形如 $\sigma_z^{i_1} \sigma_z^{i_2} \dots$ 的泡利 Z 串算符的期望值，即可完整重构密度矩阵的对角部分。对于 n 比特系统，共有 2^n 个这样的 Z 串算符（包括单位算符 $\mathbb{I}^{\otimes n}$ ）。

在 NMR 实验中，这些 Z 串期望值可以通过分析不同核自旋谱峰的劈裂模式来提取。如第 2.4.2 小节所述，NMR 直接测量的可观测量为目标核自旋取 σ_x 或 σ_y 、其余核自旋取 σ_z 或 \mathbb{I} 的单量子相干算符。为了将 Z 串算符转换为可直接测量的形式，需要对目标核自旋施加 $\pi/2$ 读出脉冲。具体而言，对第 m 个核自旋施加 $R_y^m(\pi/2)$ 读出脉冲后，原本包含 σ_z^m 的 Z 串算符被转换为包含 σ_x^m 的单量子相干

算符，从而可以通过谱峰分析直接读取。

一个关键的实验优势在于：对第 m 个核自旋施加读出脉冲后的单次测量，不仅可以获得 $\langle \sigma_z^m \rangle$ ，还可以同时获得所有包含 σ_z^m 的 Z 串算符的期望值，如 $\langle \sigma_z^m \sigma_z^l \rangle$ 、 $\langle \sigma_z^m \sigma_z^l \sigma_z^p \rangle$ 等。这是因为这些信息分别编码在第 m 个核自旋的不同劈裂峰中。因此，对于 n 比特系统，仅需 n 次读出实验（每次对一个不同的核自旋施加读出脉冲），即可获取重构全部 2^n 个对角元素所需的所有 Z 串期望值^[99;124-125]。这种高效的对角元素读取方案在本论文第三章和第五章的实验中被广泛采用。

2.4.4 弛豫与退相干

在实际的 NMR 实验中，核自旋系统不可避免地与周围环境发生相互作用，导致量子态的信息随时间逐渐丧失。这一过程被称为弛豫（relaxation），是限制 NMR 量子计算操作时间和保真度的主要因素^[99;118]。弛豫过程可以分为两种基本类型：纵向弛豫（longitudinal relaxation）和横向弛豫（transverse relaxation）。

纵向弛豫描述的是核自旋系综的纵向磁化分量 $\langle \sigma_z \rangle$ 从非平衡值恢复到热平衡值的过程，其特征时间常数为 T_1 ，也称为自旋-晶格弛豫时间（spin-lattice relaxation time）。 T_1 弛豫的物理机制是核自旋与周围分子环境（“晶格”）之间的能量交换，主要由分子运动调制的偶极-偶极相互作用所驱动。在液态 NMR 中， T_1 通常在秒到数十秒的量级。

横向弛豫描述的是核自旋系综的横向磁化分量 $\langle \sigma_x \rangle$ 和 $\langle \sigma_y \rangle$ 衰减至零的过程，其特征时间常数为 T_2 ，也称为自旋-自旋弛豫时间（spin-spin relaxation time）。 T_2 弛豫的物理机制包括两个方面：一是与 T_1 弛豫相同的能量交换过程（因此 $T_2 \leq T_1$ ）；二是核自旋之间局域磁场的随机涨落导致的相位失散（dephasing），后者不涉及能量交换，但会破坏核自旋之间的相位相干性。在液态 NMR 中， T_2 通常在百毫秒到数秒的量级。

此外，在实际实验中还存在由外磁场 B_0 的空间不均匀性引起的非均匀展宽效应，其对应的有效横向弛豫时间记为 T_2^* ，满足 $T_2^* \leq T_2$ 。 T_2^* 决定了 FID 信号的实际衰减速率和谱线的观测线宽。通过自旋回波（spin echo）技术可以消除 B_0 不均匀性的影响，从而测量真实的 T_2 。

对于 NMR 量子计算而言， T_2 是最关键的弛豫参数，因为量子门操作和信号读取过程中的量子信息主要编码在横向磁化（即单量子相干元素）中。实验中所有量子操作的总时长必须远小于 T_2 ，否则退相干效应将严重降低操作保真度和信号质

量。在本论文使用的 ^{13}C 标记巴豆酸样品中， T_2 约为 1 秒量级，而典型的 GRAPE 优化脉冲时长仅为数十毫秒，因此退相干效应对实验结果的影响较为有限。

2.5 NMR 体系与散射线路及 DQC1 模型的适配性分析

在前几节中，我们系统介绍了 NMR 量子信息处理的物理基础与实验技术。本节将从实验适配性的角度出发，分析 NMR 体系在实现两类重要量子线路——散射线路与 DQC1 线路——方面所具有的独特优势。这两类线路是本论文后续实验工作的核心框架。

2.5.1 散射线路与 NMR 系综测量的天然契合

散射线路是一种利用辅助探测比特来提取目标量子系统信息的量子线路结构^[125-126]。其基本构型如图 2-4 所示：一个探测比特（probe qubit）被初始化为已知态，通过受控幺正操作（controlled- U ）与目标系统发生相互作用，随后对探测比特进行测量。通过改变受控操作中的幺正算符 U 以及探测比特的初态和测量基，可以提取目标系统的各种物理信息。

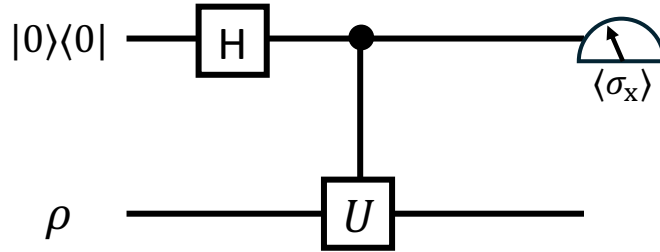


Figure 2-4 散射线路的基本结构。探测比特经 Hadamard 门后，通过受控- U 操作与目标系统耦合，最后对探测比特进行泡利测量以提取目标系统的信息。

散射线路的一个核心特征是：所有需要提取的信息最终都编码在探测比特的密度矩阵中，特别是其非对角元的相位和振幅上。对探测比特进行泡利 σ_x 和 σ_y 测量，即可获得目标幺正算符 U 的归一化迹的实部和虚部：

$$\langle \sigma_x \rangle = \text{Re} \left[\frac{\text{Tr}(\rho U)}{d} \right], \quad \langle \sigma_y \rangle = \text{Im} \left[\frac{\text{Tr}(\rho U)}{d} \right], \quad (2-64)$$

其中 ρ 为目标系统的初态， d 为目标系统的希尔伯特空间维数。

NMR 的系综测量机制与散射线路的测量需求之间存在天然的契合。如第 2.4 节所述，NMR 直接测量的是核自旋系综的横向磁化矢量，即泡利算符 σ_x 和 σ_y 的期望值。这恰好是散射线路中对探测比特所需执行的测量。因此，在 NMR 中实现

散射线路时，只需将探测比特编码为样品分子中的一个核自旋，执行完线路操作后直接采集该核自旋的 FID 信号，即可从谱图中读取所需的期望值，无需额外的测量基变换或后处理步骤。

此外，散射线路中对目标系统的测量要求是非侵扰性的——信息通过探测比特间接获取，而非直接对目标系统进行投影测量。这一特性与 NMR 系统测量的非破坏性本质高度一致：NMR 的信号采集过程不会导致量子态的坍缩（在系综意义下），因此可以在同一实验中对探测比特进行多次独立的测量，或者通过改变读出脉冲来测量不同的可观测量。

2.5.2 DQC1 模型与 NMR 混态初始化的自然匹配

DQC1 模型（详见第五章）是一种仅需极少量子资源的亚通用量子计算模型^[10;127]。其线路结构与图 2-4 所示的散射线路非常类似，主要区别在于将系统比特的初态 ρ 替换为最大混态 $\mathbb{I}_{2^n}/2^n$ ：整个系统的初态由一个具有非零纯度的探测比特和 n 个处于最大混态的寄存器比特组成：

$$\rho_{\text{in}} = \rho_c \otimes \frac{\mathbb{I}_{2^n}}{2^n}, \quad (2-65)$$

其中 $\rho_c = (1 + \alpha \sigma_z)/2$ 为探测比特的初态， α 为其极化度。

这一初态结构与 NMR 系统的热平衡态具有惊人的相似性。回顾式 (2-18)，NMR 的热平衡态在高温近似下可以写为

$$\rho_{\text{th}} \approx \frac{1}{2^n} \left(\mathbb{I}^{\otimes n} + \sum_i \epsilon_i \sigma_z^i \right). \quad (2-66)$$

如果我们选取其中一个核自旋作为探测比特，并通过梯度场脉冲将其余核自旋的极化完全消除（即将它们制备为最大混态），则系统的状态自然地变为

$$\rho = \frac{1}{2} (\mathbb{I} + \epsilon_c \sigma_z) \otimes \frac{\mathbb{I}_{2^{n-1}}}{2^{n-1}}, \quad (2-67)$$

这正是 DQC1 模型所要求的初态形式。换言之，NMR 系统无需进行复杂的赝纯态制备，仅通过简单的梯度场操作即可直接实现 DQC1 的初态——一个具有微小极化度的探测比特加上处于最大混态的寄存器。

这一特性使得 NMR 成为实现 DQC1 方案的理想平台^[100;126]。在其他量子计算平台中，制备大量处于最大混态的量子比特反而是一个非平凡的任务，而在 NMR

中这却是系统的自然状态。更进一步，DQC1 模型中对探测比特的测量同样只需要泡利 σ_x 和 σ_y 的期望值，这与 NMR 的直接测量能力完全吻合。

2.5.3 本论文实验中使用的 NMR 量子处理器

本论文第三、四、五章的实验工作均基于 ^{13}C 标记的巴豆酸 (crotonic acid, $\text{C}_4\text{H}_4\text{O}_2$) 分子作为量子处理器^[82;122]。该分子含有四个 ^{13}C 核自旋，在将 ^1H 去耦后，这四个 ^{13}C 核构成一个四比特量子处理器。巴豆酸样品溶解在氘代丙酮 (d_6 -acetone) 中，实验在 Bruker 核磁共振谱仪上进行。

在实验过程中，分子中的 ^1H 核自旋通过宽带去耦 (broadband decoupling) 技术在整个实验期间被持续去耦^[99]。去耦的物理原理是：在 ^1H 的共振频率处持续施加射频辐照，使 ^1H 核自旋在 $|0\rangle$ 和 $|1\rangle$ 态之间快速翻转，从而使 ^{13}C 与 ^1H 之间的异核 J 耦合在时间平均下趋于零。去耦后， ^{13}C 核自旋的谱线不再受 ^1H 耦合的劈裂影响，谱图得到显著简化，同时信噪比也因谱线合并而提高。此外，样品中的溶剂采用氘代丙酮 (d_6 -acetone)，其中氘核 (^2H) 的旋磁比远小于 ^1H ，不会对 ^{13}C 的谱线产生显著影响，同时氘核信号还可用作磁场锁定 (field lock) 的参考，以维持外磁场的长期稳定性。

四个 ^{13}C 核自旋的化学位移各不相同，在弱耦合近似下可以被清晰地分辨和独立操控^[99]。核自旋之间的 J 耦合常数已通过实验精确测定，这些参数是 GRAPE 脉冲优化和实验序列设计的基础^[123]。该样品的纵向弛豫时间 T_1 约为 10 秒量级，横向弛豫时间 T_2 约为 1 秒量级，为量子操作提供了充足的相干时间窗口。

在第三章和第四章的实验中，样品在 Bruker AVANCE III 600 MHz 谱仪上进行测量；在第五章的 DQC1 实验中，则使用 Bruker AVANCE III 300 MHz 谱仪。两台谱仪的主要区别在于外磁场强度不同（分别对应 $B_0 \approx 14.1 \text{ T}$ 和 $B_0 \approx 7.0 \text{ T}$ ），这导致 ^{13}C 核自旋的拉莫尔频率和化学位移值有所不同，但量子信息处理的基本原理和实验流程是一致的。

2.6 本章小结

本章系统介绍了核磁共振量子信息处理的物理基础与关键实验技术。我们从核自旋与外磁场的相互作用出发，阐述了塞曼效应、化学位移和 J 耦合等构成 NMR 量子处理器的核心物理机制；随后介绍了梯度磁场脉冲的物理原理及其在消除横

向相干、构造混合态等方面的广泛作用，并在此基础上讨论了空间平均法如何利用梯度场从热平衡态出发制备赝纯态；接着介绍了基于射频脉冲和 J 耦合演化的量子门实现方案，以及 GRAPE 脉冲优化算法在提升操作保真度方面的关键作用；进而详细阐述了 NMR 系综测量的物理机制，包括 FID 信号的数学结构与频率分量分解、傅里叶变换谱分析、单量子相干元素与谱峰复振幅之间的精确对应关系、读出脉冲技术以及密度矩阵对角元素的高效提取方案；此外还讨论了弛豫与退相干过程对 NMR 量子计算的影响。最后，我们从实验适配性的角度分析了 NMR 体系在实现散射线路和 DQC1 模型方面的独特优势：系综测量天然适配散射线路中对探测比特的泡利测量需求，而热平衡态的高温混态特性则与 DQC1 模型的初态要求自然吻合。

这些物理基础和实验技术构成了本论文后续实验工作的方法论基础。在接下来的章节中，我们将基于四比特 ^{13}C 标记巴豆酸 NMR 量子处理器，利用本章介绍的赝纯态制备、GRAPE 脉冲控制和系综测量等技术，开展量子时序关联的探测与表征（第三章）、量子因果推断的实验验证（第四章）以及基于 DQC1 的神经量子嵌入（第五章）等研究工作。

CHAPTER 3 基于赝密度矩阵的时序关联探测与表征

量子关联，无论是空间上的还是时间上的，都是量子力学区别于经典理论的显著特征之一。过去几十年来，对量子空间关联——尤其是量子纠缠——的利用极大地推动了量子信息科学的发展^[2]。然而，随着对量子系统动力学理解的加深，人们逐渐认识到：量子系统的非经典性不仅体现在空间维度，也可以体现在时间维度，这类在时间维度上关联被统称为量子时序关联。量子时序关联源于对量子系统进行的序贯测量（sequential measurements），不仅对于加深我们对量子物理基础问题的理解具有重要意义，同时也在一系列序贯信息处理任务中发挥着关键作用。

对量子时序关联的系统研究最早可追溯至 Leggett 和 Garg 提出的 Leggett–Garg 不等式（Leggett–Garg inequalities, LGIs）。LGI 建立在两个关键的经典假设之上：宏观现实主义，即系统在任意时刻都具有确定的物理属性；以及非侵扰测量，即对系统的测量不会对其后续演化产生影响。在这些假设下，可以推导出一系列关于不同时刻测量结果之间相关函数的约束关系。量子力学的预测表明，在适当的序贯测量方案下，量子系统能够违反 LGI，从而揭示出系统在不同时间片之间存在不可由经典随机过程或宏观现实主义解释的非经典关联^[65;128-129]。随着研究的深入，人们逐渐认识到量子时序关联并不仅具有基础物理层面的意义，还在多种量子信息任务中发挥着关键作用。已有工作表明，时间关联可被用于见证量子系统的有效维数，从而在不依赖空间纠缠的情况下刻画系统的量子复杂性^[68-70]。此外，在量子计量与时间保持任务中，量子时序关联被证明是决定量子时钟稳定性与精度的重要资源，其在自主量子时钟和高精度时间基准构建中具有核心地位^[71-73]。

在众多用于验证量子时序关联的方法中，PDM 框架因其丰富的物理内涵与简洁的数学形式而尤为突出^[83;88-90;94;121;130-132]。如图 3-1 所示，该框架尝试在统一的时空描述下刻画量子关联，将来自不同时间片的序贯测量结果组织成一种形式上类似于密度矩阵的对象，从而使得时间关联能够借鉴空间关联中的分析工具加以研究。一个尤为关键的特征在于，PDM 允许出现负本征值。由于由单一时间片构造的传统密度矩阵必然是半正定的，这种负性被视为量子时序关联存在的直接标志，反映了量子系统在不同时刻之间所保留的非经典结构。在这一背景下，一

个自然的问题随之产生：对于传统量子态的密度矩阵表征，已经发展出成熟而系统的实验手段，例如量子态层析^[133-134]。然而，对于这种由多个时间片测量结果共同构成的 PDM，应当如何在实验上实现其测量与构造？

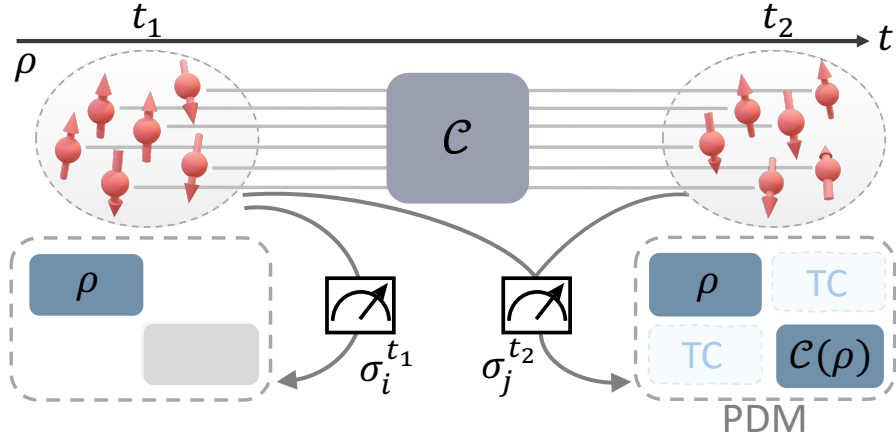


Figure 3-1 PDM 是通过在量子信道作用前后对量子系统实施序贯测量来构造的，从而刻画量子过程中的时间关联（temporal correlation, TC）。（引自文献^[135]）

本章将首先引入 PDM 理论框架及其基本性质，并阐明其在刻画量子时序关联中的核心作用。接着详细介绍我们对于 PDM 的测量表征方面的实验研究。我们在实验上引入辅助比特，通过与辅助探针量子比特的么正相互作用，并结合后续的精密切影测量，实现对多时间联合测量统计的有效获取。在实验上，这类测量可借助所谓的散射线路加以实现，从而在保持较低测量侵扰性的同时，获得足以重构相关 PDM 信息的实验数据。然而，尽管上述方法在概念与实验上为量子时序关联的表征提供了可行路径，完整的 PDM 层析在系统规模和考虑的时刻增加时仍然面临指数级的实验与计算资源消耗，从而限制了其在多比特、多时间片情形下的可扩展性。针对这一瓶颈，本章进一步介绍一种无需完整层析的量子时序关联探测方案。该方法结合了准概率分解与随机测量技术，通过在单一时间片中“虚拟构造”PDM，并直接估计其负性，从而实现对量子时序关联的高效验证。

3.1 赝密度矩阵框架

PDM 的提出旨在为处理空间和时间关联性提供一个统一的框架。与传统的密度矩阵相比，PDM 引入了时间维度，将其与空间维度视为同等重要。围绕 PDM 的研究已经取得了许多重要成果^[90;136-139]。例如利用量子因果关联为量子通信过程中的信息传输能力设定了基本限制^[139]，并揭示了量子动力学如何从时间量子纠

缠中自然涌现^[90]。

3.1.1 PDM 表达式

在介绍 PDM 之前，我们先简单回顾下量子力学中的传统的密度矩阵。

密度矩阵

密度矩阵的提出是为了用来描述混合态量子系统的物理性质。假设一个量子系统以概率 p_i 处于多个状态 $|\psi_i\rangle$ 之一，则系统的密度矩阵可以定义为

$$\rho = \sum_i p_i |\psi_i\rangle\langle\psi_i|, \quad (3-1)$$

密度矩阵有如下一些性质：

- 厄米性 (hermitian)：密度矩阵是一个自伴算符，即 $\rho = \rho^\dagger$
- 迹为 1： $\text{Tr}(\rho)=1$ ，表示系统总概率为 1。
- 半正定性 (positive semi-definite)：密度矩阵的所有本征值非负，即 $\lambda_i \geq 0$ ，

其中 λ_i 是密度矩阵的本征值。

在 Hilbert 空间中， n -qubits 的泡利算符集合

$$\sigma_i \in \{I, \sigma_x, \sigma_y, \sigma_z\}^{\otimes n}, \quad (3-2)$$

是一组完备基。因此对于 n -qubits 系统的密度矩阵来说，我们也可以同泡利算符的形式来展开

$$\rho = a_0 \sigma_0 + \sum_{i \neq 0} a_i \sigma_i, \quad (3-3)$$

其中系数 a_i 是实数。由迹为 1 的条件 $\text{Tr}(\rho) = 1$ 我们可以得到 $a_0 = \frac{1}{2^n}$ 。因为对于所有 $i \neq 0$ 的 Pauli 算子的迹都为 0，所以 σ_i 的期望值可以表示为

$$\langle \sigma_i \rangle = \text{Tr}(\sigma_i \rho) = 2^n a_i. \quad (3-4)$$

因此系数可以表示为 $a_i = \frac{1}{2^n} \langle \sigma_i \rangle$ 。将该公式代入式 (3-3) 中，密度矩阵可以进一步化简为

$$\rho = \frac{1}{2^n} \sum_i^{2^n-1} \langle \sigma_i \rangle \sigma_i. \quad (3-5)$$

PDM

我们接下来介绍 PDM^[83,89]。PDM 是传统密度矩阵在时间域上的扩展，它考虑了时间维度，描述了量子系统在空间和时间上的行为和关联。这里我们先考虑最简单的情况， n -qubits 量子系统在两个时刻下的表示形式，这里我们可以用传统密度矩阵类似的表示形式，用 Pauli 基来展开

$$R_{12} = \frac{1}{2^{2n}} \sum_{i_1, i_2=0}^{4^n-1} \langle \sigma_{i_1}, \sigma_{i_2} \rangle \sigma_{i_1} \otimes \sigma_{i_2}. \quad (3-6)$$

其中 $\sigma_{i_\alpha} \in \{I, \sigma_x, \sigma_y, \sigma_z\}^{\otimes n}$ 是在时刻 $t_\alpha, \alpha = 1, 2$ 的 n -qubit 泡利矩阵， $\langle \sigma_{i_1}, \sigma_{i_2} \rangle$ 表示的是 t_1 时刻下的观测量 σ_{i_1} 和 t_2 时刻下的观测量 σ_{i_2} 乘积的期望值。值得注意的是，当我们把某一时刻进行偏迹操作（partial trace），例如 $\rho_1 = \text{Tr}_2 R_{12}$ ，我们会得到 t_1 时刻下密度矩阵的信息。这说明 PDM 引入时空维度的情况下依然保留了每个时刻的空间域信息，这表明了 PDM 是一个更加强有力的工具。PDM 也遵循迹为 1 的性质，也就是 $\text{Tr}(R) = 1$ ，因为它被定义为泡利矩阵之和。这里也很容易看出，若把时刻从两时刻推广到多个时刻 m -time，则 PDM 可表示为：

$$R_{1\dots m} = \frac{1}{2^{mn}} \sum_{i_1=0}^{4^n-1} \dots \sum_{i_m=0}^{4^n-1} \langle \{\tilde{\sigma}_{i_\alpha}\}_{\alpha=1}^m \rangle \bigotimes_{\alpha=1}^m \tilde{\sigma}_{i_\alpha}. \quad (3-7)$$

其中 $\tilde{\sigma}_{i_\alpha}$ 是扩展到与 m 时刻关联的观测量。 $\bigotimes_{\alpha=1}^m \tilde{\sigma}_{i_\alpha}$ 表示的是期望值。

为了进一步说明如何通过 PDM 来检测系统的时序关联，我们举一个简单的例子。我们考虑一个处于状态 $|0\rangle\langle 0|$ 的单量子比特通过一个单位矩阵信道的过程，如图3-2所示。

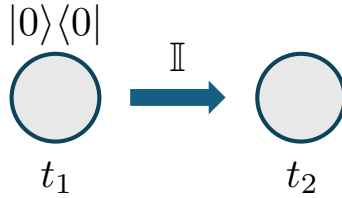


Figure 3-2 在 t_1 时刻下处于 0 态的量子比特，经过一个单位矩阵信道的演化。

保留的非零贡献来自对在信道之前和之后的泡利矩阵乘积的测量，其结果为：

$$\langle \mathbb{I}, \mathbb{I} \rangle = \langle \sigma_x, \sigma_x \rangle = \langle \sigma_y, \sigma_y \rangle = \langle \sigma_z, \sigma_z \rangle = \langle \mathbb{I}, \sigma_z \rangle = \langle \sigma_z, \mathbb{I} \rangle = 1. \quad (3-8)$$

因此, PDM 的表示形式为:

$$R = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \frac{1}{2} & 0 \\ 0 & \frac{1}{2} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}. \quad (3-9)$$

它的本征值集合为 $\{0, -\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, 1\}$ 。这表明 PDM 可能不是正半定的。此外, 当 R 出现负值时, 这暗示了时序关联的存在, 因为标准密度矩阵是半正定的, 不会出现负性。

类似于纠缠单调量 (entanglement monotones) 的情形^[140], 我们可以定义一种用于刻画时间量子关联的度量, 称为因果单调量 (causal monotone) $f(R)$ ^[83]。一般而言, 函数 $f(R)$ 需要满足以下几个条件:

$$\begin{aligned} \text{(I)} \quad & f(R) \geq 0, \\ \text{(II)} \quad & f(R) \text{ 在局域基变换下保持不变,} \\ \text{(III)} \quad & f(R) \text{ 在局域操作下不增,} \\ \text{(IV)} \quad & \sum_i p_i f(R_i) \geq f\left(\sum_i p_i R_i\right). \end{aligned} \quad (3-10)$$

这里我们可以进一步定义 $f(R)$ 作为量子时序关联的测度^[89]

$$f(R) := \|R\|_{tr} - 1 = \text{Tr}\sqrt{RR^\dagger} - 1. \quad (3-11)$$

若 R 具有负性, 则 $f(R) > 0$, 表明存在时间关联。负本征值表明该 PDM 与多个时间点的测量相关; 而在仅涉及单一时间片的情形中, 只会得到一个不含负性的标准密度矩阵。

3.1.2 PDM 封闭形式

在前文中, 我们已经通过多时间序贯测量的统计定义引入了 PDM, 并阐明了其作为量子时序关联刻画工具的物理意义。然而, 该定义本质上仍然是操作性 (operational) 的: PDM 的各个矩阵元需要通过对不同时间片观测算符期望值的测量逐一定义得到。为此, 有必要给出 PDM 的封闭形式表达。所谓封闭形式, 是指将 PDM 写成一个显式的算符表达式, 使其不再依赖于逐项的测量定义, 而可以被视为一个在扩展希尔伯特空间中自然作用的对象。更重要的是, PDM 的封闭形式为

我们后续的实验表征奠定了直接基础。在后续章节中，利用随机测量方法对 PDM 负性进行高效估计，将直接依赖于这一封闭形式所揭示的结构。

对于两个时刻 t_1, t_2 下， n -qubit 量子系统分别接受对一组 Pauli 算符的测量 $\langle \sigma_{i_1}, \sigma_{i_2} \rangle$ ，其 PDM 可以定义为

$$R_{12} = \frac{1}{2^{2n}} \sum_{i_1, i_2=0}^{4^n-1} \langle \sigma_{i_1}, \sigma_{i_2} \rangle \sigma_{i_1} \otimes \sigma_{i_2}. \quad (3-12)$$

不过为尽量降低测量对系统演化的扰动，这里我们可以引入粗粒化测量（Coarse-grained Measurements）^[89]，即在每个时间点引入投影算符

$$P_{\alpha}^{\pm} = \frac{\mathbb{I} \pm \sigma_{i_{\alpha}}}{2}, \quad \alpha = 1, 2, \quad (3-13)$$

其中 i_{α} 里的 α 表示的是测量的时刻。该测量方式在确定期望值的同时，对系统引入的反作用最小。为了将这一操作性定义转化为一个与动力学过程直接相关的算符表达式，我们引入 completely positive and trace preserving (CPTP) 信道 $\mathcal{M}_{2|1}$ 的 Choi–Jamiołkowski (CJ) 矩阵

$$M_{12} = \sum_{i,j} |i\rangle\langle j|^T \otimes \mathcal{M}_{2|1}(|i\rangle\langle j|), \quad (3-14)$$

其中上标 T 表示转置。接着将信道 $\mathcal{M}_{2|1}$ 作用到测量之间，PDM 中期望值直积形式可以被表示为

$$\langle \sigma_{i_1}, \sigma_{i_2} \rangle = \text{Tr}[M_{12}(P_+^1 \rho_1 P_+^1 \otimes \sigma_{i_2})] - \text{Tr}[M_{12}(P_-^1 \rho_1 P_-^1 \otimes \sigma_{i_2})]. \quad (3-15)$$

可以直接计算得到

$$\begin{aligned} P_+^1 \rho_1 P_+^1 - P_-^1 \rho_1 P_-^1 &= \frac{\mathbb{I} + \sigma_{i_1}}{2} \rho_1 \frac{\mathbb{I} + \sigma_{i_1}}{2} - \frac{\mathbb{I} - \sigma_{i_1}}{2} \rho_1 \frac{\mathbb{I} - \sigma_{i_1}}{2} \\ &= \frac{1}{2}(\rho_1 \sigma_{i_1} + \sigma_{i_1} \rho_1). \end{aligned} \quad (3-16)$$

将式子(3-16)带入到式子(3-15)，可得

$$\begin{aligned} \langle \sigma_{i_1}, \sigma_{i_2} \rangle &= \text{Tr} \left[\frac{1}{2} M_{12} (\rho_1 \sigma_{i_1} + \sigma_{i_1} \rho_1) \otimes \sigma_{i_2} \right] \\ &= \text{Tr} \left[\frac{1}{2} (M_{12} \rho_1 \otimes \mathbb{I}_2 + \rho_1 \otimes \mathbb{I}_2 M_{12}) \sigma_{i_1} \otimes \sigma_{i_2} \right] \\ &\equiv \text{Tr}[R_{12} \sigma_{i_1} \otimes \sigma_{i_2}]. \end{aligned} \quad (3-17)$$

其中在第二个等号处使用了迹运算得循环不变性。最终，利用 CJ 表示，可以将两时刻 PDM 写成一个极为紧凑的封闭形式。在上述粗粒化测量方案下，两时刻 \mathbf{n} 比特 PDM 可以表示为

$$R_{12} = \frac{1}{2}(M_{12}\rho + \rho M_{12}), \quad \rho := \rho_1 \otimes \mathbb{I}_2. \quad (3-18)$$

由于本文只涉及到两时刻的 PDM 封闭形式，因此对于多时刻的描述，本文将不多赘述。

3.2 散射线路测量 PDM

蕴含时间关联信息的 PDM 被定义出来后，接下来有个关键的问题是：我们怎么在实验上去探测构造这样的 PDM 呢？从 PDM 的定义可以看出，其构造的关键在于对不同时间片上观测算符的联合期望值 $\langle \sigma_{i_1}, \sigma_{i_2} \rangle$ 进行精确测量。然而，这一过程在实验实现上面临着一个根本性挑战：若采用传统的测量方案，依次对系统在第一个时刻和第二个时刻进行投影测量，则第一次测量所引入的量子态坍塌不可避免地会对系统的后续演化产生显著扰动，从而在一定程度上会破坏系统的完整性。此外，传统测量方法在实验层面同样面临较高的复杂度。

针对上述问题，本节将介绍一种基于散射线路的测量方案。我们通过散射线路，在实验上实现了 PDM 的构造与表征。该方法通过引入辅助探针量子比特，并利用系统—探针之间的幺正相互作用，将多时刻的测量信息间接映射至探针的测量结果之中，从而在尽量降低对系统扰动、同时显著简化实验操作的条件下，实现对涉及多个时间片的 PDM 的实验测量与重构。

3.2.1 散射线路

为了在实验上表征 PDM，需要获取同一量子系统在不同时间片上的联合测量统计。然而，直接对系统在不同时刻实施投影测量通常会引入不可避免的测量扰动，从而破坏系统的后续演化。为克服这一困难，一类基于辅助探针的粗粒化投影测量方案被提出，其中最具代表性的方法便是散射线路（scattering circuit）。散射线路最早由 Miquel 等人提出^[125]。其核心思想是引入一个辅助探针量子比特，通过对探针与系统施加受控操作（Controlled- U ），再对探针比特进行测量，从而间接获取系统演化过程中的信息。具体而言，通过测量探针比特的期望值，可以得到系统算符的期望值 $\text{Tr}(\rho U)$ 。近年来，散射线路已被广泛应用于多种量子信息处理

任务中，例如非时序关联函数（out-of-time-ordered correlator, OTOC）的测量、拓扑序与量子态探测等^[125;141-143]。在 NMR 等系统量子平台中，散射线路尤其具有天然优势：系统与探针之间的相互作用可以通过高保真射频脉冲精确实现，而对探针比特的测量则直接对应于系统平均意义下的可观测量期望值。

散射线路的基本结构如图 3-3 所示。线路中第一个量子比特为辅助比特，通常称为探针比特，其余部分构成待测系统，记为 ρ 。初始状态被制备为

$$|0\rangle\langle 0| \otimes \rho.$$

随后，对探针比特施加 Hadamard 门，并在探针与系统之间实施受控 U 操作。最终，通过测量探针比特的 $\langle \sigma_x \rangle$ ，即可获得系统算符的期望值，其结果等于 $\text{Re}[\text{Tr}(\rho U)]$ 。

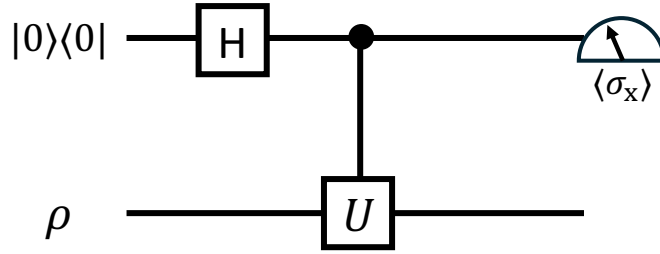


Figure 3-3 散射线路示意图。考虑一个辅助比特和系统比特，初始输入态设置为 $|0\rangle\langle 0| \otimes \rho$ ，经过 Hadamard 门和受控 U 操作后，测量辅助探针比特的 $\langle \sigma_x \rangle$ 可以得到 $\text{Re}[\text{Tr}(\rho U)]$ 。

上述结论可以通过密度矩阵形式直接证明。初态 $|0\rangle\langle 0| \otimes \rho$ 在演化过程中可表示为

$$\begin{pmatrix} \rho & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} \xrightarrow{H} \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \rho & \rho \\ \rho & \rho \end{pmatrix} \xrightarrow{c-U} \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \rho & U^\dagger \rho \\ \rho U & U \rho U^\dagger \end{pmatrix}. \quad (3-19)$$

对末态中除探针比特以外的系统自由度做偏迹，可得探针比特的约化态为

$$\frac{1}{2} \begin{pmatrix} \text{Tr}[\rho] & \text{Tr}[U^\dagger \rho] \\ \text{Tr}[\rho U] & \text{Tr}[U \rho U^\dagger] \end{pmatrix}, \quad (3-20)$$

因此，对探针比特测量 σ_x 的期望值即可得到

$$\langle \sigma_x \rangle = \text{Re}[\text{Tr}(\rho U)].$$

由此可以看出，散射线路的物理机制并不复杂：仅通过测量一个辅助比特，便可获取任意可实现算符 U 在系统态 ρ 下的期望值。进一步地，若将其中的 U 替换为任意观测算符 \mathcal{O} ，则可直接得到系统在该观测算符下的期望值 $\text{Tr}(\rho \mathcal{O})$ 。

在此基础上，对散射线路稍加改造，便可用于测量量子系统的时间关联函数^[126;141]。考虑如下形式的时间关联函数

$$\langle \mathcal{O}^{t_0} \mathcal{O}^{t_1} \rangle,$$

在海森堡表象下，该量可表示为

$$\langle U_{t_0}^\dagger \mathcal{O} U_{t_0} U_{t_1}^\dagger \mathcal{O} U_{t_1} \rangle.$$

该时间关联函数可以通过图 3-4 所示的散射线路测量得到。

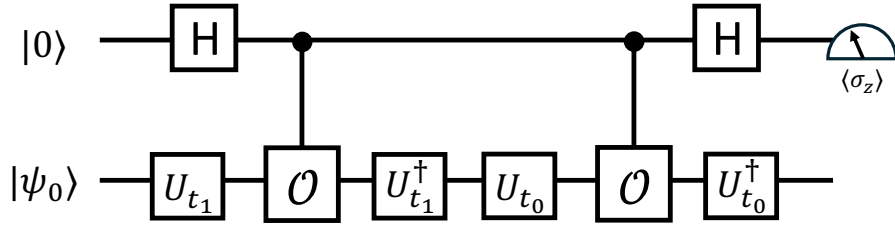


Figure 3-4 用于测量系统经过 U 操作下的时间关联函数 $\langle \mathcal{O}^{t_0} \mathcal{O}^{t_1} \rangle$ 的散射线路示意图。其中测量时刻为 t_0 和 t_1 。该时间关联函数可通过测量辅助量子比特的期望值 $\langle \sigma_z \rangle$ 得到。

其证明方式与基本散射线路的推导类似，这里不再赘述。

与直接对系统实施投影测量不同，散射线路实现的是对系统观测算符的间接测量，从而在保持系统演化连续性的同时，获取所需的关联信息。由于该方法仅依赖于对探针的测量，因此可以在较低侵扰性的条件下实现多时间联合测量。

3.2.2 实验设置及结果

我们实验上首先考虑通过散射线路测量并构造两时刻的 PDM。为了得到两时刻 PDM 的封闭表达形式，我们采用粗粒化测量来获取两时刻关联函数。我们先证明，图 3-5 所示的量子散射线路能够得到与粗粒化测量完全相同的两时刻关联函数结果。证明分为以下两个步骤。

首先，我们证明探针量子比特输出端的 σ_z 期望值 $\langle \sigma_z \rangle_{\text{probe}}$ 等于对应的两时刻关联函数。如图 3-5 所示，探针比特初始处于态 $|0\rangle$ ，其余三个量子比特处于态 $|\psi\rangle$ 。整体量子态经历如下演化过程：

$$\begin{aligned} |0\rangle |\psi\rangle &\rightarrow |+\rangle |\psi\rangle \rightarrow \frac{1}{\sqrt{2}}(|0\rangle |\psi\rangle + |1\rangle \mathcal{W} |\psi\rangle) \\ &\rightarrow \frac{1}{\sqrt{2}}(|0\rangle |\psi\rangle + |1\rangle \mathcal{V} \mathcal{W} |\psi\rangle) \\ &\rightarrow \frac{1}{2}(|0\rangle (\mathbb{I} + \mathcal{V} \mathcal{W}) |\psi\rangle + |1\rangle (\mathbb{I} - \mathcal{V} \mathcal{W}) |\psi\rangle), \end{aligned} \quad (3-21)$$

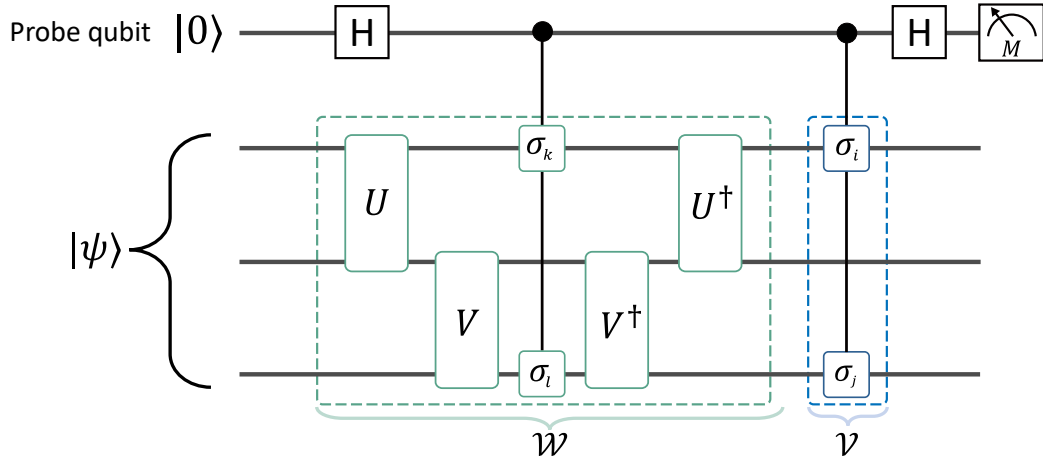


Figure 3-5 实验中使用的散射量子线路。该线路在么正演化下测量期望值 $\langle \sigma_i \otimes \sigma_j, \sigma_k \otimes \sigma_l \rangle$ 。在该示例中，么正演化选取为部分交换操作 $e^{-iS\theta}$ ，其中 S 表示 SWAP 算符， $\theta \in [0, 2\pi]$ 。位于 \mathcal{W} 内部和构成 \mathcal{V} 的两个受控 Pauli 测量共同决定了测量基的选择。

其中 $\mathcal{W} = U^\dagger V^\dagger (\sigma_k \otimes \sigma_l) V U$ ， $\mathcal{V} = \sigma_i \otimes \sigma_j$ 。因此，最终探针比特的 σ_z 期望值为

$$\begin{aligned}
 \langle \sigma_z \rangle_{\text{probe}} &= \frac{1}{4} \langle \psi | (2\mathbb{I} + \mathcal{V}\mathcal{W} + \mathcal{W}^\dagger \mathcal{V}^\dagger) | \psi \rangle \\
 &\quad - \frac{1}{4} \langle \psi | (2\mathbb{I} - \mathcal{V}\mathcal{W} - \mathcal{W}^\dagger \mathcal{V}^\dagger) | \psi \rangle \\
 &= \frac{1}{2} \langle \psi | (\mathcal{V}\mathcal{W} + \mathcal{W}^\dagger \mathcal{V}^\dagger) | \psi \rangle \\
 &= \text{Tr} [(\sigma_i \otimes \sigma_j) V U \rho (\sigma_k \otimes \sigma_l) V^\dagger U^\dagger] \\
 &= \langle \sigma_i \otimes \sigma_j, \sigma_k \otimes \sigma_l \rangle,
 \end{aligned} \tag{3-22}$$

其中 $\rho = |\psi\rangle\langle\psi|$ 。（在不引起混淆的情况下，我们有时省略张量积符号。）上述推导可以直接推广至混态情形。

其次，我们证明式 (3-22) 中的 $\langle \sigma_z \rangle_{\text{probe}}$ 等于通过式 (3-13) 所定义的粗粒化测量得到的两时刻关联函数。具体而言，

$$\begin{aligned}
 &\langle \sigma_i \otimes \sigma_j, \sigma_k \otimes \sigma_l \rangle \\
 &= \langle P_+^{(i,j)} - P_-^{(i,j)}, P_+^{(k,l)} - P_-^{(k,l)} \rangle \\
 &= \langle P_+^{(i,j)}, P_+^{(k,l)} \rangle + \langle P_-^{(i,j)}, P_-^{(k,l)} \rangle \\
 &\quad - (\langle P_-^{(i,j)}, P_+^{(k,l)} \rangle + \langle P_+^{(i,j)}, P_-^{(k,l)} \rangle).
 \end{aligned} \tag{3-23}$$

其中， $P_+^{(i,j)} = P_+^i \otimes P_+^j + P_-^i \otimes P_-^j$ 表示投影到 $\sigma_i \otimes \sigma_j$ 的 +1 本征子空间的粗粒化投影算符， $P_-^{(i,j)} = P_-^i \otimes P_+^j + P_+^i \otimes P_-^j$ 表示投影到 -1 本征子空间的粗粒化投影算

符, $P_{\pm}^{(k,l)}$ 的定义与之类似。

实验系统表征

我们的实验在 Bruker 600 MHz 核磁共振谱仪上完成^[99-100;123;144], 采用溶解在氘代丙酮 (d_6 -acetone) 中的 ^{13}C 标记巴豆酸分子作为量子模拟器^[122;145-147]。四个相互耦合的 ^{13}C 自旋对应于量子模拟器中的四个量子比特。系统的内部动力学由如下内部哈密顿量描述:

$$\mathcal{H}_{\text{int}} = \pi \sum_{i=1}^4 \nu_i \sigma_z^i + \pi \sum_{i<j,=1}^4 \frac{J_{ij}}{2} \sigma_z^i \sigma_z^j, \quad (3-24)$$

其中 σ_z^i 表示第 i 个自旋的 Pauli-Z 矩阵, ν_i 为化学位移, J_{ij} 为自旋 i 与 j 之间的标量耦合强度。四个自旋的具体结构及其参数如图 3-6 所示。在该实验中, $^{13}\text{C}_1$ 作为探针比特, $^{13}\text{C}_{2,4}$ 构成系统比特 (A 与 C), $^{13}\text{C}_3$ 作为辅助比特, 用于模拟信道 \mathcal{N} 和 \mathcal{M} 的作用。

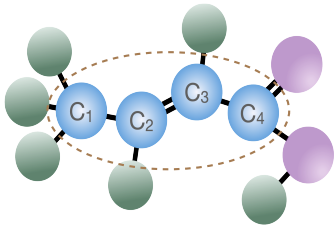
	C_1	C_2	C_3	C_4	
C_1	2572.4				
C_2	41.6	21925.0			
C_3	1.5	69.6	18478.2		
C_4	7.1	1.2	72.3	25279.0	
T_1	7.5 s	7.9 s	8.7 s	19.1 s	
T_2	1.6 s	1.5 s	1.6 s	1.2 s	

Figure 3-6 样品的分子结构及其 NMR 参数。伴随表格的对角元素与非对角元素分别给出了化学位移 ν_i 和标量耦合强度 J_{ij} 。底部列出了纵向与横向弛豫时间 $T_{1,2}$ (单位: 秒)。

初始化

实验上, 我们先将系统初始化为 $\rho_0 = |+\rangle\langle+| \otimes \rho_A \otimes |00\rangle\langle 00|$, 其中 $\rho_A = (1 - \lambda)\mathbb{I}/2 + \lambda|+\rangle\langle+|$, 混态 ρ_A 可通过两个单比特门与一个梯度场脉冲来制备, 对应线路如图 3-7 中橙色框所示。第一个单比特旋转记作 $R_y(\alpha)$, 它将量子比特旋转到态 $\sqrt{(1 + \lambda)/2}|0\rangle + \sqrt{(1 - \lambda)/2}|1\rangle$, 其中 $\alpha = \arccos \sqrt{\langle \sigma_x \rangle^2 + \langle \sigma_y \rangle^2 + \langle \sigma_z \rangle^2}$ 并且 $\langle \sigma_i \rangle = \text{Tr}(\rho_A \sigma_i)$ 。随后施加梯度场脉冲 G_z , 使态发生退相干、去除相干项, 并将其转化为混态 $(1 - \lambda)\mathbb{I}/2 + \lambda|0\rangle\langle 0|$, 从而获得与目标态 ρ_A 相同的纯度。接着施加第二个单比特旋转 $R_y(\pi/2)$, 将该态演化为 ρ_A 。与此同时, 对探针比特施加 Hadamard

门以制备 $|+\rangle\langle+|$ [122]。

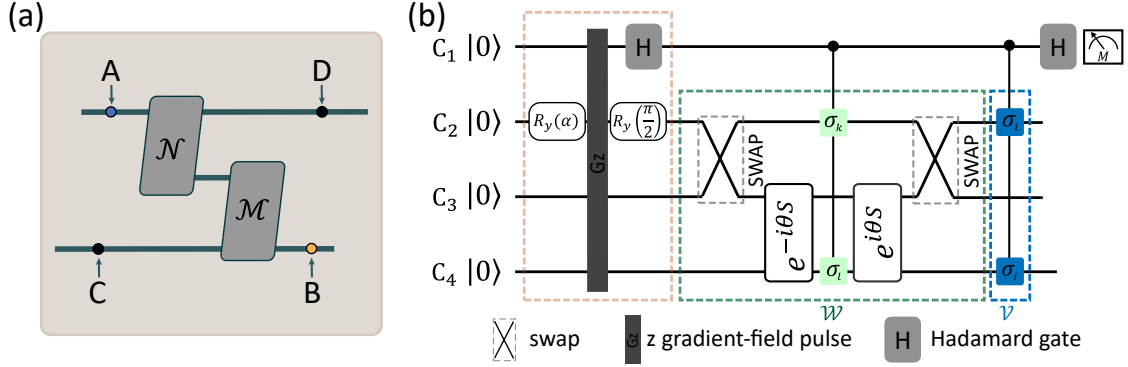


Figure 3-7 (a) 线路模型示意图，其中 A 表示在上方系统于时刻 1 进行的测量，而 B 表示在下方系统于时刻 2 进行的测量。(b) 在四个自旋上的实验量子线路。线路中的量子门通过单自旋射频 (RF) 脉冲与体系内部自旋—自旋耦合的组合来实现。该线路的目标是测量期望值 $\langle \sigma_i^A \sigma_j^C, \sigma_k^D \sigma_l^B \rangle$ ，其中记号 $\langle E, F \rangle$ 表示在时刻 1 对算符 E 的测量结果与在时刻 2 对算符 F 的测量结果之乘积的期望值。图 (a) 中的信道 \mathcal{N} 选取为交换幺正算符 S ，而 \mathcal{M} 选取为部分交换操作 $e^{-i\theta S}$ ，其中参数 θ 决定交换相互作用的强度。可以从数学上证明，该线路能够给出正确的期望值，其中 C_2 对应于图 (a) 中的上方系统，而 C_4 对应于下方系统。

我们在 NMR 平台上通过所提出的轻扰动 (light-touch) 来进行 PDM 的探测和构造。该 PDM 涉及的时间演化结构可由图 3-7 (a) 所示线路模型描述。一个量子系统首先通过信道 \mathcal{N} 与辅助系统相互作用，随后该辅助系统再通过信道 \mathcal{M} 与另一个量子系统相互作用。两个信道均为非平凡信道。此外，我们将不同时刻的量子系统标记为 A, B, C, D ，且 A 与 C 之间不存在相关。为便于实验，我们将这些量子系统视为量子比特，并将信道设定为

$$\mathcal{N}(\cdot) = S(\cdot)S^\dagger \text{ and } \mathcal{M}(\cdot) = e^{-i\theta S}(\cdot)e^{i\theta S}, \quad (3-25)$$

其中 S 为 SWAP 算符 $S = |00\rangle\langle 00| + |10\rangle\langle 01| + |01\rangle\langle 10| + |11\rangle\langle 11|$ ， θ 为可调参数，当 $\theta = 0, \pi$ 时，信道 \mathcal{M} 为单位矩阵 \mathbb{I} ，当 $\theta = \pi/2$ ，信道 \mathcal{M} 为 SWAP 门。初始态取为

$$\rho_{AC} = [\lambda |+\rangle\langle+| + (1-\lambda)\mathbb{I}/2] \otimes |0\rangle\langle 0|. \quad (3-26)$$

这里 λ 表示 A 的极化度。

我们实验构造 PDM R_{AB} 依赖于对期望值 $\langle \sigma_i^A, \sigma_j^B \rangle$ 的粗粒化测量。为尽可能减小测量过程对系统造成的扰动，我们引入量子散射线路 [125;142] (如图 3-5 所示) 来获得期望值 $\langle \sigma_i^A, \sigma_j^B \rangle$ 。该线路包含一个与量子系统相互作用的探针比特。通过对 C

与 D 不施加操作并测量探针比特，可得到

$$\langle \sigma_z \rangle_{\text{probe}} = \langle \sigma_i^A, \sigma_j^B \rangle := \langle \sigma_i^A \mathbb{I}^C, \mathbb{I}^D \sigma_j^B \rangle. \quad (3-27)$$

因此，可通过测量探针比特获得 $\langle \sigma_i^A, \sigma_j^B \rangle$ ，从而避免对目标量子系统进行重复的直接测量。

么正演化

实验线路被设计用于在四比特系统上实现么正算符 $\mathcal{U}_c = |0\rangle\langle 0| \otimes \mathbb{I} + |1\rangle\langle 1| \otimes \mathcal{V}\mathcal{W}$ 。么正算符 \mathcal{V} 与 \mathcal{W} 的具体形式由量子信道 \mathcal{N} 与 \mathcal{M} ，以及我们希望测量的时间关联函数 $\langle \sigma_i^A, \sigma_l^B \rangle$ 共同决定。令 $U_{\mathcal{N}}$ 与 $U_{\mathcal{M}}$ 分别为当 \mathcal{N} 与 \mathcal{M} 为么正信道时对应的么正实现。在图 3-7 中，实验线路被具体设计为获取 $\langle \sigma_i^A \sigma_j^C, \sigma_k^D \sigma_l^B \rangle$ 。对于该组 Pauli 算符的选择，有

$$\mathcal{W} = (U_{\mathcal{M}} U_{\mathcal{N}})^\dagger \sigma_k \sigma_l (U_{\mathcal{M}} U_{\mathcal{N}}), \quad \mathcal{V} = \sigma_i \sigma_j.$$

为了获得 $\langle \sigma_i^A, \sigma_l^B \rangle$ ，只需令 $\sigma^C = \sigma^D = \mathbb{I}$ 。所有单比特旋转与双比特门均为基础量子操作，原则上可在大多数物理体系中实现。对 NMR 实验而言，我们进一步通过基于梯度的优化方法设计整形脉冲以提升控制精度^[123]。

实验结果读出

上述演化结束后，期望值 $\langle \sigma_i^A \sigma_j^C, \sigma_k^D \sigma_l^B \rangle$ 被编码在探针比特的相干项中。随后施加一个 Hadamard 门，即可通过测量探针比特的 $\langle \sigma_z \rangle$ 直接提取对应的 PDM 元素。由此我们能够构造 PDM R_{ACDB} ；当选择期望值 $\langle \sigma_i^A, \sigma_l^B \rangle$ 时，还可得到约化的 PDM R_{AB} 。为了构造 R_{AB} 与 R_{ACDB} ，实验分别重复 16 次与 256 次；每次实验都需更新一次与特定矩阵元素相对应的 \mathcal{U}_c 。

为了实验验证我们 PDM 测量的正确性，我们通过散射线路采集了足够的实验数据以重构完整的 PDM R_{ACDB} 。我们对 A, B, C, D 上所有 Pauli 算符的完整集合测量了探针比特的 σ_z 期望值 $\langle \sigma_z \rangle_{\text{probe}}$ 。作为自由参数的非极端代表性取值，我们任意选择了 $\lambda = 0.9$ 与 $\theta = 3\pi/8$ 。这些数据使我们能够构造实验得到的 PDM R_{ACDB} ，如图 3-8 所示。实验结果与理论预测之间表现出高度一致性。

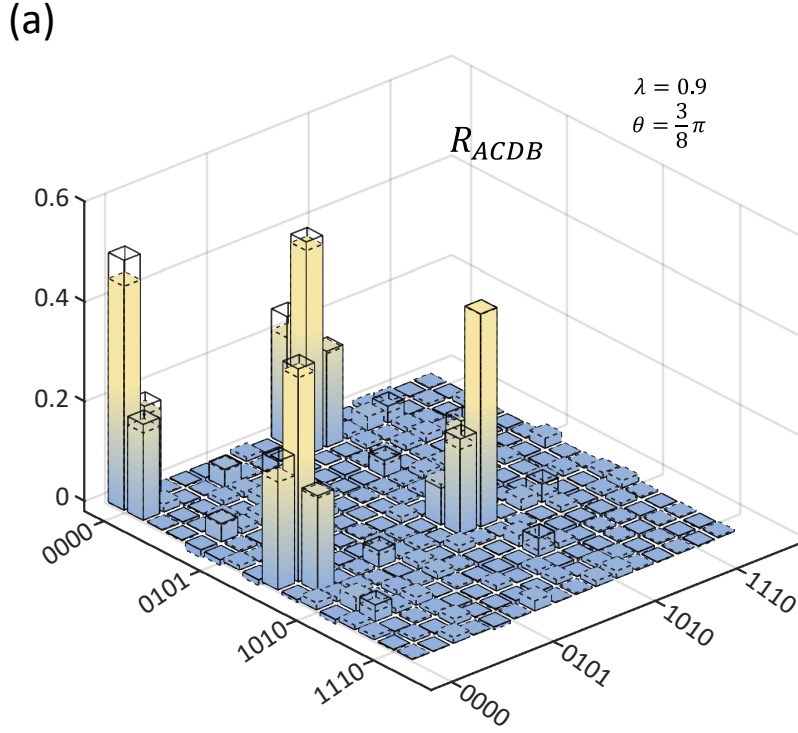


Figure 3-8 在 $\lambda = 0.9$ 且 $\theta = 3\pi/8$ 条件下得到的完整 PDM R_{ACDB} 。实心柱表示理论预测结果，而带虚线轮廓的彩色柱表示实验测得的数值。

3.3 随机测量高效探测 PDM 负性

前文已介绍了利用散射线路实现对 PDM 的测量与构造。该方法在一定程度上可视为一种 PDM 的传统测量方案：其基本思想与量子态层析类似，即通过测量一组 Pauli 算符组合的期望值，并将测量结果进行重构，从而获得完整的算符表示。不同之处在于，PDM 所涉及的是跨越多个时间片的关联期望值，而非单一时间片上的量子态^[83;89;136]。然而，随着系统比特数的增加，此类基于完整重构的方法在量子与经典资源消耗上均呈指数级增长，使其在多比特情形下难以扩展。与此同时，当研究目标仅限于某些特定的全局性质（例如 PDM 的负性）时，完整层析往往会引入大量与目标无关的冗余信息，从而导致测量与后处理效率的显著下降^[148-149]。

针对上述问题，我们结合准概率分解^[150-151]与随机测量技术^[152-154]，提出了一种无需完整系统表征即可探测量子时序关联的高效探测实验方案。该方案通过设计特定的量子线路，在单一时间片内对 PDM 进行“虚拟制备”，并借助随机测量对其负性进行直接推断，如图 3-9(b) 所示。值得强调的是，该方案仅需常数数量的测量基，这使其在依赖系统平均测量的量子平台中尤为适用，如图 3-9(c) 所示。在此类平台中，固定测量基下的观测可在热力学意义下的大量系统拷贝上同时完成，

从而在单次实验运行中直接获得算符的期望值。这一特性使得本方案的运行复杂度相较于基于投影测量的方案得到指数级降低。鉴于核自旋体系所固有的系统特性，以及在常温条件下可实现的高保真量子控制，NMR 平台成为验证该方案的理想候选。基于此，我们进一步在 NMR 系统中开展了原理性实验，实验结果表明，通过对系统量子系统实施随机测量，可以高效地探测量子时序关联。下文将围绕该方案，依次介绍所采用的判据、量子线路设计以及相应估计器的具体构造。

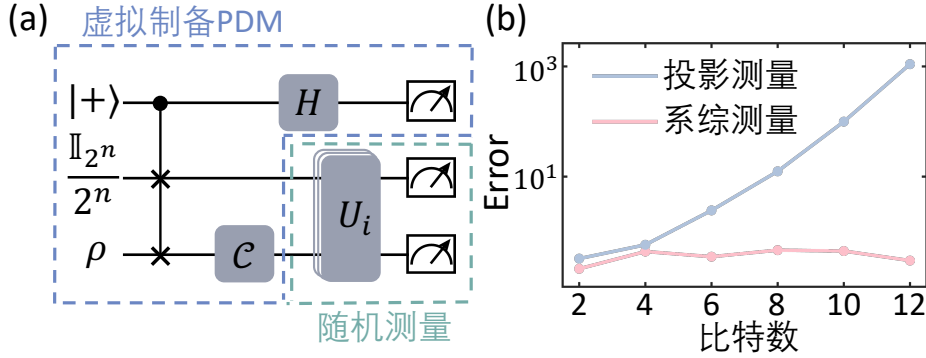


Figure 3-9 (a) 我们提出的方案主要由两个部分组成。首先，利用最大混合态作为输入态 ρ ，并结合受控 SWAP 门以及 Pauli-X 基测量，蓝色框所示的量子线路在虚拟意义上制备了 PDM。随后，如绿色框所示，通过多次相互独立的随机幺正演化以及计算基测量，对 PDM 的二阶矩 (second moment) 进行估计，从而推断其负性。(c) 该方案特别适用于依赖系综平均测量的量子平台。如图所示，在固定的实验运行时间下，系综平均测量体系中的统计误差不会随系统规模的增加而增长；相比之下，在采用投影测量的体系中，误差将随 PDM 所涉及的量子比特数呈指数级增长。(引自文献^[135])

3.3.1 PDM 负性判据与二阶矩

PDM 将密度矩阵的概念推广至涉及多个时间片的情形^[83;89]。我们在前面章节中已经介绍过 PDM 了，这里我们再简单介绍下。在本节，我们将关注两时刻 (2-time) PDM 的情形。在不失一般性的前提下，考虑量子过程的输入态与输出态均为 n 比特量子态。设一个 n 比特量子系统首先在时刻 t_1 接受一个 Pauli 可观测量 $\sigma_i \in \{\mathbb{I}, \sigma_x, \sigma_y, \sigma_z\}^{\otimes n}$ 的测量，随后通过一个量子信道，并在时刻 t_2 接受第二次 Pauli 测量 σ_j 。记 $\langle \sigma_i^{t_1} \sigma_j^{t_2} \rangle$ 为在两个时刻 t_1 与 t_2 分别测量 Pauli 可观测量 σ_i 与 σ_j 所得到的期望值乘积。给定所有联合期望值 $\langle \sigma_i^{t_1} \sigma_j^{t_2} \rangle$ ，两时刻 PDM 可以定义为式子(3-6)所示

$$R = \frac{1}{4^n} \sum_{i,j=0}^{4^n-1} \langle \sigma_i^{t_1} \sigma_j^{t_2} \rangle, \sigma_i \otimes \sigma_j.$$

在采用粗粒化 Pauli 测量的情形下^[89], PDM 的封闭形式表达与文献^[155-157]中讨论的所谓规范化时间量子态 (canonical quantum state over time) 是一致的。PDM 是一个厄米算符且具有单位迹, 但其本征值可以为负。PDM 的负性可作为量子时序关联存在的一个充分但非必要条件^[83]。

从直观上看, 可以通过对 PDM 进行层析重构并检查其是否存在负本征值来判定量子时序关联。然而, 为此获取完整层析信息不仅在信息上是冗余的, 而且需要消耗不切实际的量子与经典资源。定量而言, 若输入态与输出态均包含 n 个量子比特, 基于 Pauli 测量的层析方法需要总计 3^{2n} 种不同的测量基。进一步地, 由于构造 PDM 所需的测量比普通密度矩阵层析更为受限, 普通量子态层析的复杂度下界同样适用于 PDM 层析。因此, 即便允许对系统的多份拷贝实施高度联合的相干操作, PDM 层析仍需 $\Omega(2^{4n})$ 次实验运行^[158-159]; 若仅允许非相干测量, 其样本复杂度将进一步上升至 $\Omega(2^{6n})$ ^[159]。

为避免对 PDM 进行完整层析测量, 本节的核心思想是通过实验上可直接获取的物理量来判定量子时序关联的存在。受纠缠探测领域相关方法的启发^[160-167], 可以注意到算符 R 的若干矩 (moments), 尤其是其二阶矩 (纯度) $\text{Tr}(R^2)$, 与 R 的负性之间存在紧密联系。基于这一观察, 我们可以通过估计 $\text{Tr}(R^2)$ 来推断 PDM 是否为正半定算符, 从而避免完整 PDM 层析所带来的指数级资源消耗。

判据 3.1 (PDM 负性的充分条件): 给定一个 PDM R , 若其满足

$$\text{Tr}(R^2) > 1,$$

则 R 不是正半定的, 即必然存在至少一个负本征值。

Proof: 设 $\{\lambda_i\}$ 为 R 的本征值。由于 $\text{Tr}(R) = 1$, 有

$$\sum_i \lambda_i = 1,$$

且

$$\text{Tr}(R^2) = \sum_i \lambda_i^2.$$

当 R 为正半定算符时, 对所有 i 均有 $\lambda_i \geq 0$, 此时 $\text{Tr}(R^2)$ 的最大值在 R 为纯态时取得, 并满足 $\text{Tr}(R^2) = 1$ 。因此, 若 $\text{Tr}(R^2) > 1$, 则 R 至少包含一个负本征值, 从而 R 不是正半定算符。 ■

类似地, 还可以证明 $\sqrt{\text{Tr}(R^2)}$ 为 $\text{Tr}(|R|) = \sum_i |\lambda_i|$ 的一个下界, 而 $\text{Tr}(|R|)$ 常

被用作量子因果关联的单调量^[83]。这一事实进一步表明，通过估计 PDM 的低阶矩即可获得关于其非经典时序关联的重要信息。

为了后续样本复杂度分析的需要，下面证明一个关于 $\text{Tr}(R^2)$ 上界的引理。

Lemma 3.1: 对于任意量子信道 $\mathcal{C} : \mathcal{H}_d \rightarrow \mathcal{H}_d$ 以及任意输入态 $\rho \in D(\mathcal{H}_d)$ ，对应的两时刻 PDM 满足 $\text{Tr}(R^2) \leq \mathcal{O}(d)$ ，其中等号在 \mathcal{C} 为么正信道且 ρ 为纯态时取得。

Proof: 首先可以证明 $\text{Tr}(R^2) = \text{Tr}[(R^{T_1})^2]$ ，其中

$$R^{T_1} = \frac{1}{2} \left(\Lambda_{\mathcal{C}}^{T_1} (\rho \otimes \mathbb{I}) + (\rho \otimes \mathbb{I}) \Lambda_{\mathcal{C}}^{T_1} \right),$$

T_1 表示对与 ρ 相关的指标进行部分转置。根据 Choi–Jamiołkowski 同构， $\Lambda_{\mathcal{C}}^{T_1}$ 为半正定矩阵。

对 $\Lambda_{\mathcal{C}}^{T_1}$ 与 $\rho \otimes \mathbb{I}$ 分别作谱分解： $\Lambda_{\mathcal{C}}^{T_1} = U_1 \Sigma_1 U_1^\dagger$ ， $\rho \otimes \mathbb{I} = U_2 \Sigma_2 U_2^\dagger$ ，其中 Σ_1, Σ_2 为正半定对角矩阵。由此可得

$$\text{Tr}(R^2) = \frac{1}{2} \left[\text{Tr}(U_1 \Sigma_1 U_1^\dagger U_2 \Sigma_2 U_2^\dagger U_1 \Sigma_1 U_1^\dagger U_2 \Sigma_2 U_2^\dagger) + \text{Tr}(U_1 \Sigma_1^2 U_1^\dagger U_2 \Sigma_2^2 U_2^\dagger) \right].$$

定义 $V = U_1^\dagger U_2$ ，则有

$$\text{Tr}(R^2) = \frac{1}{2} \left[\text{Tr}(\Sigma_1 V \Sigma_2 V^\dagger \Sigma_1 V \Sigma_2 V^\dagger) + \text{Tr}(\Sigma_1^2 V \Sigma_2^2 V^\dagger) \right].$$

进一步定义 $B = V \Sigma_2 V^\dagger$ ，上述表达式可化简为

$$\text{Tr}(R^2) = \frac{1}{2} \left[\text{Tr}(\Sigma_1 B \Sigma_1 B) + \text{Tr}(\Sigma_1^2 B^2) \right].$$

接下来证明 $\text{Tr}(R^2)$ 关于 Σ_1 为凸函数。我们先展开矩阵

$$\Sigma_1 = \sum_i \lambda_i |i\rangle\langle i|, \quad B = \sum_{i,j} b_{i,j} |i\rangle\langle j|.$$

然后

$$f(\Sigma_1) = \text{Tr}(R^2) = \frac{1}{2} \left(\sum_{i,j} \lambda_i b_{i,j} \lambda_j b_{j,i} + \sum_{i,j} \lambda_i^2 b_{i,j} b_{j,i} \right) = \frac{1}{2} \sum_{i,j} b_{i,j} b_{j,i} (\lambda_i^2 + \lambda_i \lambda_j). \quad (3-28)$$

定义 $X = \sum_i x_i |i\rangle\langle i|$ ， $Y = \sum_j y_j |j\rangle\langle j|$ 其中 $x_i, y_j \geq 0$ 。则有

$$f(\theta X + (1-\theta)Y) = \frac{1}{2} \sum_{i,j} b_{i,j} b_{j,i} [(\theta x_i + (1-\theta)y_i)^2 + (\theta x_i + (1-\theta)y_i)(\theta x_j + (1-\theta)y_j)] \quad (3-29)$$

以及

$$\theta f(X) + (1 - \theta)f(Y) = \frac{1}{2} \sum_{i,j} b_{i,j} b_{j,i} (\theta x_i^2 + \theta x_i x_j + (1 - \theta) y_i^2 + (1 - \theta) y_i y_j). \quad (3-30)$$

二者之差为

$$\begin{aligned} & \frac{1}{2} \theta (1 - \theta) \sum_{i,j} b_{i,j} b_{j,i} [(x_i^2 + x_i x_j + y_i^2 + y_i y_j) - (2x_i y_i + x_i y_j + x_j y_i)] \\ &= \frac{1}{2} \theta (1 - \theta) \sum_{i,j} b_{i,j} b_{j,i} [(x_i - y_i)^2 + (x_i - y_i)(x_j - y_j)] \\ &= \frac{1}{4} \theta (1 - \theta) \sum_{i,j} b_{i,j} b_{j,i} [(x_i - y_i)^2 + 2(x_i - y_i)(x_j - y_j) + (x_j - y_j)^2] \\ &= \frac{1}{4} \theta (1 - \theta) \sum_{i,j} b_{i,j} b_{j,i} [(x_i - y_i) + (x_j - y_j)]^2 \geq 0. \end{aligned} \quad (3-31)$$

这表明 $\text{Tr}(R^2)$ 关于 Σ_1 为凸函数。采用同样的思路，可以类似地证明 $\text{Tr}(R^2)$ 关于 Σ_2 亦为凸函数。由于 Σ_1 与 Σ_2 分别对应于 $\Lambda_c^{T_1}$ 与 $\rho \otimes \mathbb{I}$ 的本征值集合，它们分别至少包含一个与 d 个正的非零本征值。因此，凸性意味着 $\text{Tr}(R^2)$ 的最大值在 \mathcal{C} 为么正信道且 ρ 为纯态时取得。

当 $\mathcal{C} = \mathcal{U}$ 为么正信道且 ρ 为纯态时， R^{T_1} 可表示为

$$R^{T_1} = \frac{1}{2} (|\Psi_u\rangle\langle\Psi_u| (\psi \otimes \mathbb{I}) + (\psi \otimes \mathbb{I}) |\Psi_u\rangle\langle\Psi_u|), \quad (3-32)$$

其中 $|\Psi_u\rangle$ 是一个 d^2 维的未归一化纯态，并满足 $\langle\Psi_u|\Psi_u\rangle = d$ 。因此有

$$\begin{aligned} \text{Tr}(R^2) &= \frac{1}{2} [d \langle\Psi_u| (\psi \otimes \mathbb{I}) |\Psi_u\rangle + \langle\Psi_u| (\psi \otimes \mathbb{I}) |\Psi_u\rangle^2] \\ &= \frac{1}{2} [d \text{Tr}(U^\dagger \psi U) + \text{Tr}(U^\dagger \psi U)^2] \\ &= \frac{1}{2} (d + 1) = \mathcal{O}(d). \end{aligned} \quad (3-33)$$

■

需要指出的是，上述证明无法直接推广至高阶矩 $\text{Tr}(R^{2k})$ ，因为 $\text{Tr}[(R^{T_1})^{2k}] = \text{Tr}(R^{2k})$ 仅在 $k=1$ 的情形下成立。

3.3.2 单一时刻下虚拟制备 PDM 线路

不同于对 PDM 进行层析重构的方法，我们打算采用随机测量（randomized measurement）方法来估计其二阶矩 $\text{Tr}(R^2)$ 。已有研究表明，量子态的纯度 $\text{Tr}(\rho^2)$

可以通过对量子态 ρ 施加随机么正演化并进行计算基测量而被高效估计^[152;154]。然而，相比于传统量子态 ρ ，PDM 涉及多个时间片，直接将随机测量技术用于其矩的估计并非显而易见。

为克服这一困难，我们设计了一种量子线路，在单一时间片内对 PDM 进行“虚拟制备”，如图 3-9(a) 所示。在蓝色框所示的量子线路中，记控制量子比特的测量结果为 0 和 1，其对应的测量概率分别为 p_0 和 p_1 ，而其余两个寄存器在测量后的塌缩态分别记为 ρ_0 和 ρ_1 。我们证明了如下关系式：

$$2^n(p_0\rho_0 - p_1\rho_1) = R, \quad (3-34)$$

其中 R 为由输入态 ρ 与量子信道 \mathcal{C} 所定义的 PDM。接下来我们证明下这个式子如何成立的。

我们在 3.1 节中给出了 PDM 的封闭形式

$$R = \frac{1}{2}[\Lambda_{\mathcal{C}}(\rho \otimes \mathbb{I}) + (\rho \otimes \mathbb{I})\Lambda_{\mathcal{C}}], \quad (3-35)$$

其中， $\Lambda_{\mathcal{C}}$ 表示信道 \mathcal{C} 的 Choi–Jamiołkowski (CJ) 同构，定义为：

$$\Lambda_{\mathcal{C}} = \sum_{i,j} |i\rangle\langle j| \otimes \mathcal{C}(|j\rangle\langle i|). \quad (3-36)$$

我们称 $\Lambda_{\mathcal{C}}$ 为信道 \mathcal{C} 的 CJ 矩阵。信道 \mathcal{C} 对量子态 ρ 的作用等价于：

$$\mathcal{C}(\rho) = \text{Tr}_1[\Lambda_{\mathcal{C}}(\rho \otimes \mathbb{I})]. \quad (3-37)$$

为便于统一我们的分析，我们按照图 3-10 所示的张量网络表示方式，对 PDM 和 $\Lambda_{\mathcal{C}}$ 进行重新表述。PDM 的负性是刻画量子时序关联的关键指标。基于前述判据

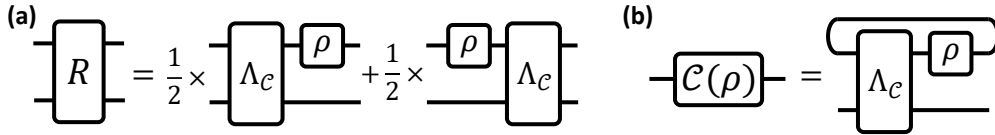


Figure 3-10 (a) 利用密度矩阵 ρ 与 Choi–Jamiołkowski 矩阵 $\Lambda_{\mathcal{C}}$ 表示的 PDM 的张量网络表示。(b) 信道的作用通过 Choi–Jamiołkowski 矩阵来表示。

3.1，可以通过 $\text{Tr}(R^2)$ 来验证 PDM 是否具有负性。在此基础上，我们将随机测量技术与图 3-11 所示的量子线路相结合，用于测量算符 R 的各阶矩，例如 $\text{Tr}(R^2)$ 。除构成 PDM 的量子信道 \mathcal{C} 与输入态 ρ 之外，该量子线路还引入了一个辅助量子比特、一个最大混合态、受控 SWAP 操作、随机么正演化，以及末端的计算基测量。

为了说明该线路能够用于测量 R 的矩，首先需要分析量子态在整个线路作用下的演化过程。

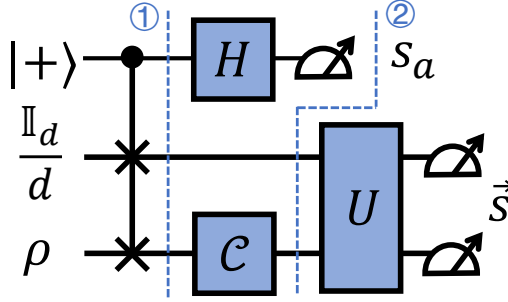


Figure 3-11 用于测量 PDM 矩的线路。

在第一条虚线处，整个状态演化过程为

$$\begin{aligned}
 & \frac{1}{2d} [|0\rangle\langle 0| \otimes (\mathbb{I} \otimes \rho) + |0\rangle\langle 1| \otimes (\mathbb{I} \otimes \rho)S + |1\rangle\langle 0| \otimes S(\mathbb{I} \otimes \rho) + |1\rangle\langle 1| \otimes S(\mathbb{I} \otimes \rho)S] \\
 &= \frac{1}{2d} \left(|0\rangle\langle 0| \otimes \overline{\boxed{\rho}} + |0\rangle\langle 1| \otimes \overline{\boxed{\rho}} \times + |1\rangle\langle 0| \otimes \times \overline{\boxed{\rho}} \right. \\
 & \quad \left. + |1\rangle\langle 1| \otimes \times \overline{\boxed{\rho}} \times \right)
 \end{aligned} \tag{3-38}$$

通道 c 作用后，整个状态演化为

$$\begin{aligned}
 & \frac{1}{2d} \left(|0\rangle\langle 0| \otimes \overline{\Lambda_c \boxed{\rho}} + |0\rangle\langle 1| \otimes \overline{\Lambda_c \boxed{\rho}} \times + |1\rangle\langle 0| \otimes \overline{\Lambda_c \boxed{\rho}} \times \right. \\
 & \quad \left. + |1\rangle\langle 1| \otimes \overline{\Lambda_c \boxed{\rho}} \times \right) \\
 &= \frac{1}{2d} \left(|0\rangle\langle 0| \otimes \overline{\boxed{c(\rho)}} + |0\rangle\langle 1| \otimes \overline{\Lambda_c \boxed{\rho}} + |1\rangle\langle 0| \otimes \overline{\boxed{\rho} \Lambda_c} \right. \\
 & \quad \left. + |1\rangle\langle 1| \otimes \overline{\boxed{\rho} \Lambda_c} \right),
 \end{aligned} \tag{3-39}$$

其中灰色虚线代表迹函数。

在线路图第二条虚线处，对控制量子比特在 Pauli- X 基下进行测量。定义矩阵

$$Q = \frac{1}{2} [\mathbb{I}_d \otimes c(\rho) + \rho \otimes c(\mathbb{I}_d)].$$

之后把寄存器在 0 态和 1 态子空间下的塌缩态 ρ_0, ρ_1 按式子(3-34)相减，其结果正好等于 PDM R 。

3.3.3 随机测量估计二阶矩

完成单一时刻下对 R 的“虚拟”制备后，我们可以应用随机测量来估计其二阶矩。如图 3-9(a) 中绿色框所示，首先从幺正集合 \mathcal{E}_U 中独立抽取 N_U 个随机幺正算符，并对每一个幺正算符在 N_M 次相互独立的实验中重复施加。对于每一个幺正算符 U ，实验可获得测量数据 $\{s_a^i, \bar{s}^i\}_{i=1}^{N_M}$ ，其中 s_a 与 \bar{s} 分别表示控制量子比特以及其余两个寄存器的测量结果。随后，利用这些实验数据，根据式 (3-47) 构造估计器 \hat{M}_2^U 。最终的估计器 \hat{M}_2 由对 N_U 个相互独立构造的 \hat{M}_2^U 取平均得到。

我们的算法过程总结如下：

Algorithm 3-1 $\text{Tr}(R^2)$ 的估计

Input: 输入态 ρ ，量子信道 \mathcal{C} ，以及一个至少构成幺正二阶设计 (unitary 2-design) 的幺正集合 \mathcal{E}_U 。

Output: $\text{Tr}(R^2)$ 的一个无偏估计 \hat{M}_2 。

- 1 **for** $i = 1$ **to** N_U **do**
 - 2 从幺正集合 \mathcal{E}_U 中随机选取一个幺正演化 U ;
 - 3 **for** $j = 1$ **to** N_M **do**
 - 4 运行图 3-9(a) 所示量子线路，记录测量结果 s_a^j 和 \bar{s}^j ;
 - 5 利用数据 $\{s_a^j, \bar{s}^j\}_{j=1}^{N_M}$ 及式 (3-47) 计算估计器 \hat{M}_2^U ;
 - 6 对所有 \hat{M}_2^U 取平均得到最终估计值 \hat{M}_2 ;
-

接下来先简要回顾随机幺正算符的一些预备知识。直观而言，Haar 测度是定义在幺正群上的一种“均匀分布”，其满足如下不变性性质：

$$\int_{\text{Haar}} f(U) dU = \int_{\text{Haar}} f(UV) dU = \int_{\text{Haar}} f(VU) dU, \quad (3-40)$$

其中 V 为任意幺正算符， $f(\cdot)$ 为任意函数。

根据 Schur–Weyl 对偶性，有

$$\Phi_t(X) = \int_{\text{Haar}} U^{\otimes t} X U^{\dagger \otimes t} dU = \sum_{\pi, \tau \in \mathcal{S}_t} C_{\pi, \tau} \text{Tr}(\hat{W}_\pi X) \hat{W}_\tau, \quad (3-41)$$

其中 π 和 τ 为 t 阶置换群 \mathcal{S}_t 中的元素， \hat{W}_π 表示与置换 π 对应的置换算符， $C_{\pi, \tau}$ 为 Weingarten 矩阵的元素。

除了 Haar 测度分布之外，对某些特定的幺正集合取平均也可以得到与 Haar 平均相同的结果。具体而言，若一个幺正集合 \mathcal{E}_t 构成一个幺正 t -design，则对于任

意 $t' \leq t$ 以及任意算符 X , 都有

$$\int_{\text{Haar}} U^{\otimes t'} X U^{\dagger \otimes t'} dU = \frac{1}{|\mathcal{E}_t|} \sum_{U \in \mathcal{E}_t} U^{\otimes t'} X U^{\dagger \otimes t'}. \quad (3-42)$$

当 $t = 2$ (亦即与本研究提出方案相关的情形) 时, 有

$$\Phi_2(X) = \frac{1}{d^2 - 1} \left[\text{Tr}(X) \mathbb{I} - \frac{1}{d} \text{Tr}(X) S - \frac{1}{d} \text{Tr}(SX) \mathbb{I} + \text{Tr}(SX) S \right], \quad (3-43)$$

其中 X 为一个 $d^2 \times d^2$ 矩阵, S 与 \mathbb{I} 分别表示 SWAP 算符与恒等算符, 它们对应于置换群 \mathcal{S}_2 中的两个元素。当取

$$X = \sum_{s, s'} X(s, s') |s, s'\rangle \langle s, s'|, \quad X(s, s') = -(-d)^{\delta_{s, s'}},$$

可得 $\Phi_2(X) = S$ 。

在上一节我们证明了图 3-11 所示的线路可以单时刻下虚拟制备 PDM。进一步的, 当我们在第二个虚线后施加随机操作 U , 考虑线路末端的联合测量概率分布为

$$\begin{aligned} \Pr(s_a = 0, \vec{s} | U) &= \frac{1}{2d} \langle \vec{s} | U(Q + R)U^\dagger | \vec{s} \rangle, \\ \Pr(s_a = 1, \vec{s} | U) &= \frac{1}{2d} \langle \vec{s} | U(Q - R)U^\dagger | \vec{s} \rangle, \end{aligned} \quad (3-44)$$

其中, U 表示作用在两个系统上的全局随机幺正算符, s_a 与 \vec{s} 分别表示控制量子比特以及其余两个系统的测量结果。这里, $s_a = 0$ 对应于控制量子比特塌缩至态 $|+\rangle$, 而 $s_a = 1$ 则对应于塌缩至态 $|-\rangle$ 。

由此可以看出, 测量结果的概率分布中已经包含了关于 PDM R 的信息。通过对上述两种概率取差, 可以等效地在 PDM R 上实施随机测量, 从而获得 $\langle \vec{s} | URU^\dagger | \vec{s} \rangle$ 。

结合式 (3-43) 与式 (3-44), 可以构造对 $\text{Tr}(R^2)$ 的估计器。其基本思想如下: 在图 3-11 所示的量子线路中, 施加 N_U 个彼此独立的随机幺正算符; 对于每一个固定的随机幺正算符, 重复进行 N_M 次测量。在收集完所有实验数据后, 不同随机幺正算符下获得的测量结果将被彼此独立地进行处理。

假设数据 $\{(s_a^i, \vec{s}^i)\}_{i=1}^{N_M}$ 是在同一个随机幺正算符作用下获得的, 则对应的估计器可定义为

$$\hat{M}_2^U = \frac{d^2}{N_M(N_M - 1)} \sum_{i \neq j} (-1)^{s_a^i + s_a^j} X(\vec{s}^i, \vec{s}^j), \quad (3-45)$$

其中 $X(\vec{s}, \vec{s}') = -(-d^2)^{\delta_{\vec{s}, \vec{s}'}}$ 。这里选取 d^2 而非 d ，是因为 PDM 以及被测系统均定义在维数为 d^2 的希尔伯特空间中。最终的估计器通过对不同随机幺正算符下构造得到的所有估计器取平均而获得。

该估计器的无偏性可以借助随机幺正理论加以验证。考虑到式 (3-45) 中各求和项的独立性，有

$$\begin{aligned}
 \mathbb{E}[\hat{M}_2^U] &= d^2 \mathbb{E}_{U, s_a, s'_a, \vec{s}, \vec{s}'} [(-1)^{s_a + s'_a} X(\vec{s}, \vec{s}')] \\
 &= d^2 \mathbb{E}_U \sum_{s_a, s'_a, \vec{s}, \vec{s}'} (-1)^{s_a + s'_a} X(\vec{s}, \vec{s}') \Pr(s_a, \vec{s} | U) \Pr(s'_a, \vec{s}' | U) \\
 &= d^2 \mathbb{E}_U \sum_{\vec{s}, \vec{s}'} X(\vec{s}, \vec{s}') [\Pr(s_a = 0, \vec{s} | U) - \Pr(s_a = 1, \vec{s} | U)] \\
 &\quad \times [\Pr(s'_a = 0, \vec{s}' | U) - \Pr(s'_a = 1, \vec{s}' | U)] \quad (3-46) \\
 &= \mathbb{E}_U \sum_{\vec{s}, \vec{s}'} X(\vec{s}, \vec{s}') \langle \vec{s} | URU^\dagger | \vec{s} \rangle \langle \vec{s}' | URU^\dagger | \vec{s}' \rangle \\
 &= \mathbb{E}_U \text{Tr}[R^{\otimes 2} U^{\dagger \otimes 2} X U^{\otimes 2}] \\
 &= \text{Tr}(R^2),
 \end{aligned}$$

其中

$$X = \sum_{\vec{s}, \vec{s}'} -(-d^2)^{\delta_{\vec{s}, \vec{s}'}} |\vec{s}, \vec{s}'\rangle \langle \vec{s}, \vec{s}'|.$$

最后一个等号成立的原因在于 $\mathbb{E}_U(U^{\otimes 2} X U^{\dagger \otimes 2}) = S$ ，以及 $\text{Tr}(S \sigma^{\otimes 2}) = \text{Tr}(\sigma^2)$ 。

有了上述详细分析，我们证明了如下定理：

Theorem 3.1: 当幺正集合 \mathcal{E}_U 至少构成一个幺正 2-design，且使用同一个从 \mathcal{E}_U 中采样得到的随机幺正算符 U ，通过图 3-9(a) 所示线路获得测量结果 $\{s_a^i, \vec{s}^i\}_{i=1}^{N_M}$ 时，表达式

$$\hat{M}_2^U = \frac{2^{2n}}{N_M(N_M - 1)} \sum_{i \neq j} (-1)^{s_a^i + s_a^j} X(\vec{s}^i, \vec{s}^j) \quad (3-47)$$

是 $\text{Tr}(R^2)$ 的一个无偏估计器，其中 $X(\vec{s}^i, \vec{s}^j) = -(-2^{2n})^{\delta_{\vec{s}^i, \vec{s}^j}}$ 。

进一步地，设 \hat{M}_2 由 N_U 个相互独立的估计器 \hat{M}_2^U 取平均构成。当幺正集合 \mathcal{E}_U 至少构成一个幺正 4-design 时，为保证 $|\hat{M}_2 - \text{Tr}(R^2)| \leq \epsilon$ 以不小于 $1 - \delta$ 的概率成立，需要满足 $N_U = \mathcal{O}\left(\frac{1}{\epsilon^2 \delta}\right)$, $N_M = \mathcal{O}(2^{3n})$ 。因此，总体样本复杂度为 $N_U \times N_M = \mathcal{O}\left(\frac{2^{3n}}{\epsilon^2 \delta}\right)$ 。

尽管对 $\text{Tr}(R^2)$ 的测量在样本复杂度上仍然随系统规模呈指数增长，即 $\mathcal{O}(2^{3n})$ ，

但这一复杂度相比于基于联合操作的 PDM 层析测量所需的样本复杂度已经显著降低。需要指出的是，用于探测量子时序关联的指数级样本复杂度在原则上是不可避免的：已有研究表明，某些信道区分任务的样本复杂度下界本身即为指数级，而这些任务恰恰可以通过测量 $\text{Tr}(R^2)$ 来实现^[168-169]。本方案的一个尤为重要的优势在于，所需不同随机么正算符（即测量基）的数量为常数，且与系统规模无关，由 $N_U = \mathcal{O}\left(\frac{1}{\epsilon^2 \delta}\right)$ 给出。这一特性使得该方案特别适用于依赖系统平均测量的量子平台，例如 NMR、冷原子系统以及金刚石中的 NV 中心等。在这些平台中，在单一测量基下对指数数量的投影测量可以被高效地同时完成，从而显著提升整体实验效率。

此外，我们还通过数值模拟表明，即便所采用的么正集合并非么正四阶设计（unitary 4-design），上述优势仍然得以保持。如图 3-9(b) 所示，我们取量子信道为完全退极化信道，输入态为 $\rho = |0\rangle\langle 0|$ ，并选用 Clifford 群作为么正集合，该集合仅构成么正三阶设计^[170]。对于标注为“系统测量”的曲线，我们取 $N_U = 10$ 且 $N_M = \infty$ ，可以观察到统计误差并不随量子比特数的增加而增长。相反，对于标注为“投影测量”的曲线，我们取 $N_M = 100$ ，可以清楚地看到测量误差随量子比特数呈指数增长。

3.3.4 实验实现与验证

我们在 NMR 平台上对所提出的量子时序关联探测方案进行了实验验证。实验在室温条件下使用 Bruker 300 MHz 核磁共振谱仪完成，所采用的量子处理器为一个四比特核自旋体系，由溶解在 d_6 -丙酮中的 ^{13}C 标记反式巴豆酸（trans-crotonic acid）分子构成，其分子结构如图 3-12(a) 所示。四个碳核自旋分别标记为 C_{1-4} ，共同构成一个四比特量子处理器^[145-147]，其内部哈密顿量可写为

$$\mathcal{H}_{\text{NMR}} = \sum_{i=1}^4 \pi \nu_i \sigma_z^i + \sum_{i<j}^4 \frac{\pi}{2} J_{ij} \sigma_z^i \sigma_z^j,$$

其中 ν_i 表示第 i 个核自旋的化学位移， J_{ij} 表示第 i 与第 j 个核自旋之间的标量耦合常数。 ν_i 与 J_{ij} 的具体数值如图 3-13 所示。在 NMR 体系中，单比特旋转通过横向射频脉冲实现，而双比特相互作用则通过系统的自由演化来完成。此外，还可以借助梯度上升脉冲优化算法（GRAPE）进一步提升实验控制精度^[123]。

实验中使用的量子线路如图 3-12(b) 所示。前三个自旋 $C_{1,2,3}$ 分别对应控制比

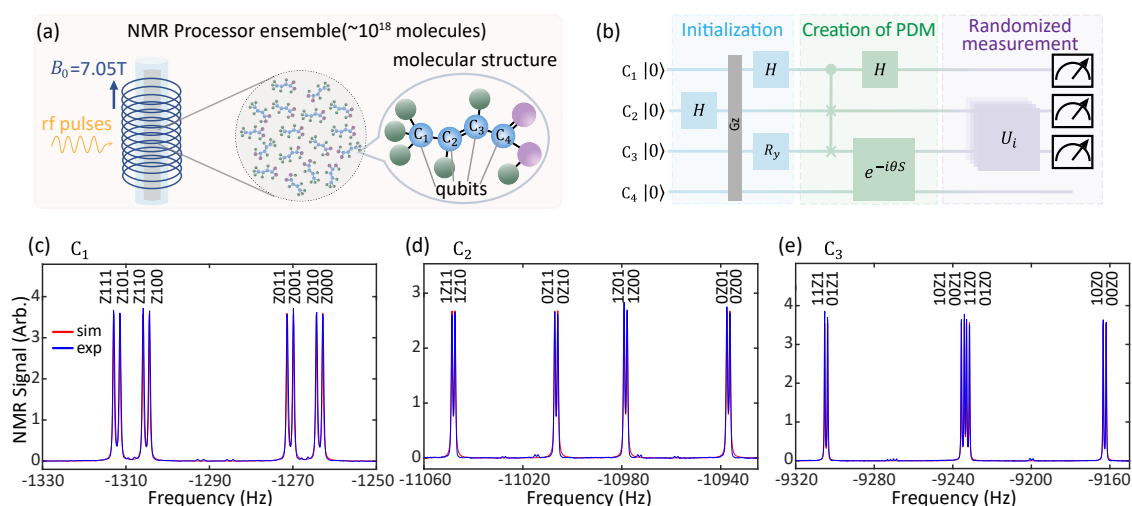


Figure 3-12 (a) 系综 NMR 系统。样品中包含大量 ($\sim 10^{18}$) 完全相同的分子，所有分子均参与实验过程。(b) 用于实现该方案的量子线路。该线路由三个部分组成：初始化、PDM 的虚拟生成以及随机化测量。(c–e) 分别为 C_1 、 C_2 和 C_3 的实验谱图。 y 轴为任意单位，谱图中信号强度的绝对值并无实际意义。在特定频率处的每一个共振峰积分对应某一特定可观测量的期望值。例如，记号 $Z111$ 表示 $\sigma_z \otimes |111\rangle\langle 111|$ 。红色曲线表示模拟结果，蓝色曲线表示实验结果。(引自文献 [135])

特、辅助比特以及系统比特，第四个自旋 C_4 作为环境比特，其与 C_3 相互作用以实现量子信道 \mathcal{C} ，并且在实验末端不进行测量。整个量子线路可分为三个阶段：态初始化、PDM 的虚拟制备以及随机测量，如图 3-12(b) 所示。

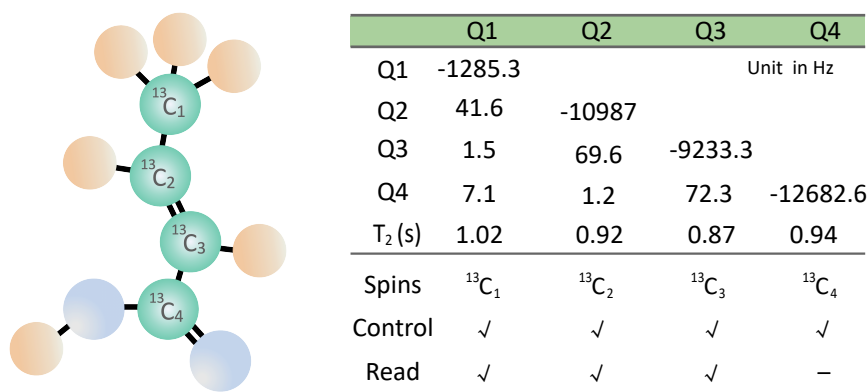


Figure 3-13 巴豆酸的分子结构及其在 300MHz NMR 下的分子参数。在表格中，对角线上的数值表示化学位移，非对角线上的数值表示标量耦合常数（单位：Hz）。弛豫时间 T_2 （单位：秒）列示于表中。

态初始化

从初态 $|0000\rangle$ 出发, 首先对 C_2 施加 Hadamard 门, 随后在所有自旋上施加沿 z 方向的梯度场脉冲。该操作使 C_2 被制备为最大混态 $\mathbb{I}_2/2$, 而其余三个量子比特保持不变。接着, 对 C_1 施加 Hadamard 门, 将其制备为 $|+\rangle$ 态, 并对 C_3 施加 R_y 旋转, 将系统比特初始化为参数化纯态 $|\psi(p)\rangle = \sqrt{p}|0\rangle + \sqrt{1-p}|1\rangle$ 。

PDM 的虚拟制备

首先, 在前三个量子比特 $C_{1,2,3}$ 上施加受控 SWAP 门, 如图 3-12(b) 所示。随后, 让系统自旋 C_3 与环境自旋 C_4 在参数化时间 θ 下进行部分 SWAP 演化, 该么正演化相当于在 C_3 上作用了一个部分替换 (partial SWAP) 信道 \mathcal{C} 。需要指出的是, 当 $\theta = \frac{\pi}{2}$ 时, \mathcal{C} 变为 full SWAP 信道, 即将任意输入态替换为 $|0\rangle\langle 0|$, 从而完全消除因果影响。最后, 对控制比特施加 Hadamard 门并在计算基 $\{|0\rangle, |1\rangle\}$ 下进行测量, 其余系统分别以概率 p_0 与 p_1 塌缩至态 ρ_0 与 ρ_1 。在此阶段, PDM 已按照式 (3-34) 被虚拟制备完成。

随机测量

随机测量通过施加 $N_U = 200$ 个从 Clifford 群中独立采样的随机么正算符来实现, 随后进行计算基测量。如定理 3.1 所示, 在基于投影测量的体系中, 每个么正算符需要 $N_M = \mathcal{O}(2^{3n})$ 次测量才能精确估计 $\text{Tr}(R^2)$ 。相比之下, NMR 平台可以仅通过 n 次测量提取一个 n 比特密度矩阵的全部对角元, 具体讨论及分析将在下面展开。在本实验中, 随机么正演化之后, 仅需三次测量即可提取 C_1 、 C_2 与 C_3 构成的三比特密度矩阵的八个对角元。如图 3-12(c)–(e) 所示, 在特定频率处的共振峰积分值对应于一个在计算基下对角的可观测量的期望值。NMR 信号与谱线的实验探测细节见第二章内容。随后, 通过对这些期望值进行线性组合, 即可得到全部八个对角元。

将这些对角元记为 $\text{Pr}(s_a, \vec{s})$, 则式 (3-47) 中的估计器可化简为

$$\hat{M}_2^U = 2^{2n} \sum_{s_a, s'_a, \vec{s}, \vec{s}'} (-1)^{s_a + s'_a} X(\vec{s}, \vec{s}') \text{Pr}(s_a, \vec{s}) \text{Pr}(s'_a, \vec{s}'),$$

这对应于投影测量情形下 $N_M = \infty$ 的极限。因此, 本实验的总体运行时间仅随量

子比特数 n 呈多项式规模增长。

这种高效读出能力源于 NMR 系综体系的测量特性。在 NMR 量子处理器中，实验样品并非由单个分子构成，而是包含大量彼此独立且完全相同的分子体系。因此，NMR 实验中所获得的测量结果本质上是对系综的平均。

在操作完成后，核自旋将在外加静磁场 B_0 方向附近发生进动，并逐渐弛豫回热平衡态。该进动过程会在 x - y 平面内感生电信号，因此，NMR 系统能够直接探测的物理量仅限于横向磁化矢量，即泡利算符 σ_x 与 σ_y 的期望值。在四比特 NMR 量子处理器中，由于不同核自旋之间存在标量耦合，每个自旋对应的共振信号通常会分裂为 8 条谱峰。根据 NMR 自旋动力学理论，每一条谱峰的信号均包含实部和虚部，它们分别编码了对应可观测量 σ_x 与 σ_y 的期望值信息。由此可见，NMR 平台能够测量的可观测量主要对应于单量子相干算符，其形式为：目标量子比特上作用 σ_x 或 σ_y ，而其余量子比特上作用 σ_z 或恒等算符 I 。在本文所提出的实验方案中，我们关注的是纵向磁化算符（例如 $\sigma_z III$ ）的测量。为此，在读出阶段通过施加合适的读出脉冲，将纵向磁化分量映射为可直接探测的横向磁化分量。具体而言，通过施加读出脉冲 $R_y^1(\pi/2)$ ，可以将 $\sigma_z III$ 转换为 $\sigma_x III$ ，从而实现对其期望值的测量。进一步地，对于实验中所需的末态对角元信息，以三比特系统为例，仅需测量 7 个相互独立的 Pauli 算符组合 $\sigma_{0,z} \otimes \sigma_{0,z} \otimes \sigma_{0,z} \otimes I$ 的期望值即可完成约化对角密度矩阵的重构，其中 $\sigma_0 = I$ ，如图 3-14 所示。值得注意的是，这 7 个

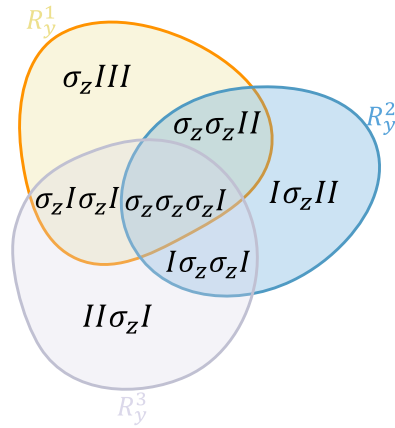


Figure 3-14 用于随机测量任务的目标可观测量集合的维恩图示意图。图中展示了为实现三比特约化对角密度矩阵层析而采用的读出脉冲方案。每一个圆圈对应一种特定颜色的读出脉冲，表示在施加该读出脉冲后所能够测量的一组可观测量。不同圆圈之间的重叠区域表示可通过多种读出脉冲共同获取的可观测量。

Pauli 期望值仅需通过 3 个不同的读出脉冲即可全部获得。

需要指出的是,即便在采用系统平均测量的情况下,在 NMR 系统中实现 PDM 的完整层析仍然十分困难,因为其仍然需要指数数量的测量基^[124]。

3.3.5 实验结果

我们首先验证了线路虚拟制备 PDM 的有效性。在实施随机测量之前,我们对量子比特 $C_{1,2,3}$ 进行了量子态层析实验,并依据公式 Eq. (3-34) 对实验数据进行处理,从而构造出 R 。具体的数据处理流程及结果如图 3-15(a) 所示,其中以 $\theta = \pi/6$ 、 $p = 0.6$ 的情形作为示例。图中并列给出了 $\rho_{0,1}$ 以及 PDM R 的实验结果与理论预测结果,以便进行对比。实验结果与理论预测之间的高度一致性清楚地表明了虚拟构造方法的有效性。

此外,我们还给出了 PDM 的本征值谱结果,包含以下两组实验:(i) 固定 $p = 1$,并将信道参数 θ 从 0 变化至 $\pi/2$,实验上构造相应的 PDM,并计算 R 的本征值 E_i ,结果如图 3-15(b) 所示;(ii) 固定 $\theta = \pi/6$,并将参数 p 从 0 连续变化至 1,其对应结果如图 3-15(c) 所示。实验结果与理论预测符合良好,其中出现的负本征值清晰地体现了量子系统中存在的时间量子关联。

随后,我们进一步采用随机测量方案来估计 $\text{Tr}(R^2)$,并以此作为量子时间关联的判据。首先,将态参数固定为 $p = 1$,并将信道参数 θ 从 0 连续变化至 $\pi/2$ 。实验结果如图 3-15(d) 所示,除 $\theta = \pi/2$ 外,其余参数区域内估计得到的 $\text{Tr}(R^2)$ 均大于 1,表明系统中存在时间量子关联。

当 $\theta = 0$ 时,部分交换信道 $e^{-i\theta S}$ 退化为恒等操作 I ,此时 $\text{Tr}(R^2)$ 取得其最大值 1.5,说明系统的最终状态完全由初态所决定。随着 θ 的增大, $e^{-i\theta S}$ 操作中 SWAP 分量逐渐增强,输入态与输出态之间的相关性随之减弱。当 $\theta = \pi/2$ 时,该信道等效为完全替换信道,输入态与输出态之间的因果联系被完全抹除,此时 $\text{Tr}(R^2)$ 降至约 1。

此外,我们将 θ 固定为 $\pi/6$,并将参数 p 从 0 连续变化至 1,以定量刻画因果强度对初态的依赖关系,其对应的实验结果如图 3-15(e) 所示。随着概率幅度 p 的增大,测得的 $\text{Tr}(R^2)$ 也随之增大。上述实验结果均与理论预期高度一致,进一步验证了所提出方案的有效性。

通过对比图 3-15(c) 与图 3-15(e) 可以发现,在 $p = 0$ 的情况下,矩阵 R 具有负本征值,而 $\text{Tr}(R^2)$ 却未能探测到这一非经典特征。这一现象表明,仅依赖二阶

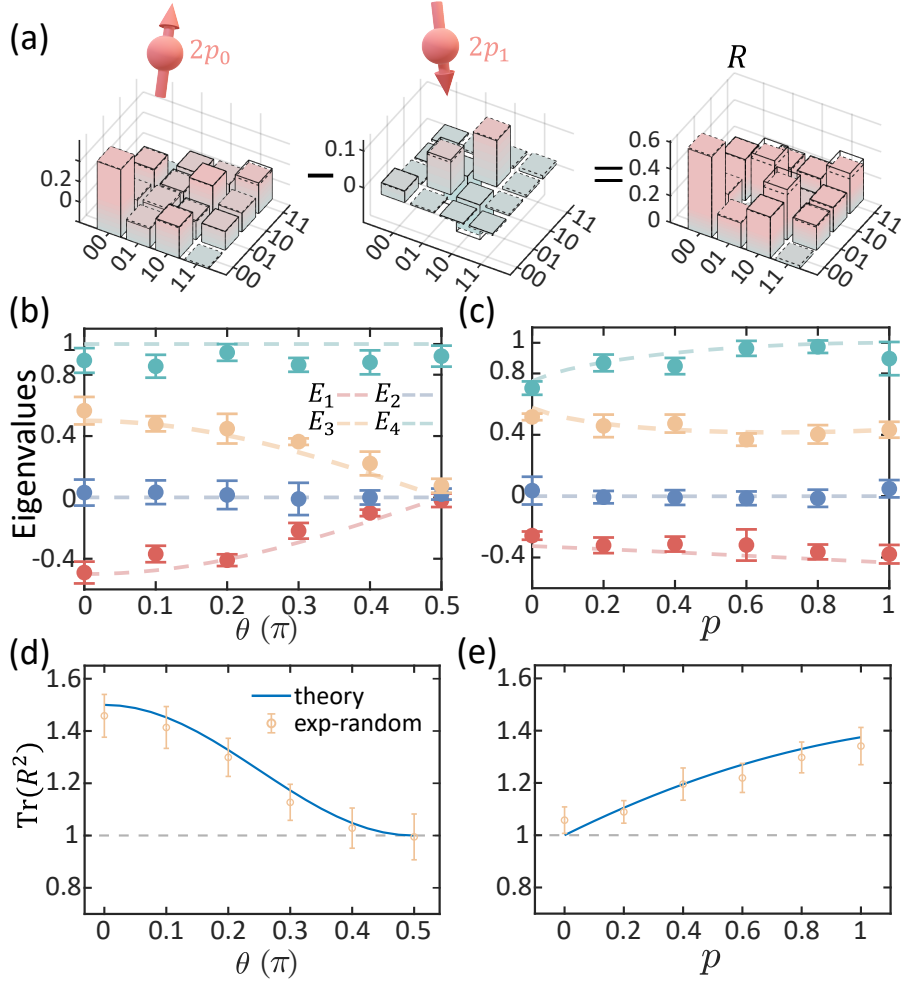


Figure 3-15 实验结果。(a) PDM 的虚拟构造计算流程及其结果。通过从 $s_a = 0$ 的子空间中减去 $s_a = 1$ 的子空间，构造得到在 $\theta = \pi/6$ 、 $p = 0.6$ 条件下的 PDM R 。实心柱表示理论预测结果，带虚线的彩色柱表示实验结果。(b) 在固定态参数 $p = 1$ 的情况下，不同信道参数 θ 对应的 PDM R 的本征值分布。其中虚线表示理论预测结果，彩色标记表示实验结果。(c) 在固定信道参数 $\theta = \pi/6$ 时，不同态参数 p 下的本征值结果。(d-e) 随机测量得到的 $\text{Tr}(R^2)$ 的实验结果。在 (d) 中，系统态 ρ 的概率幅度 p 固定为 1；在 (e) 中，信道参数 θ 固定为 $\pi/6$ 。蓝色实线表示理论结果，黄色圆点表示实验结果。(引自文献^[135])

矩作为判据在刻画量子时间关联方面存在一定局限性。因此，进一步探索引入高阶矩以增强该方案对量子时间关联的探测能力具有重要意义^[166]。

3.4 总结

本章围绕 PDM 框架下的量子时间关联展开系统研究，构建了一条从理论刻画、实验表征到高效探测的完整研究路径。PDM 作为一种将时间维度与空间维度统一纳入量子态描述的形式工具，使得对同一量子系统在不同时刻的联合统计可以被视为“时空态”，其可能出现的负本征值则成为区分经典时间相关与量子时间

关联的重要非经典标志。

本章首先介绍了 PDM 的定义。并通过引入粗粒化测量与 Choi–Jamiołkowski 同构，本章给出了两时刻 PDM 的封闭形式表达，从而将 PDM 与初态以及中间量子信道直接关联起来。在实验表征层面，为克服直接序贯投影测量所带来的强测量侵扰问题，本章提出并采用了基于散射线路的粗粒化测量方案。该方案通过引入辅助探针量子比特，将跨时间片的联合测量统计间接映射为探针比特的可测期望值，从而在保持系统演化连续性的前提下实现对 PDM 的构造与测量。基于该方法，本章在 NMR 系综量子平台上完成了 PDM 的实验重构，并验证了实验结果与理论预测之间的高度一致性，展示了散射线路在多时间量子关联研究中的实验可行性与稳定性。

尽管散射线路为 PDM 的实验测量提供了直接途径，但随着系统规模与所考虑时刻的增加，完整 PDM 层析在实验资源上的开销将迅速增长。针对这一问题，本章进一步引入了结合准概率分解与随机测量的高效探测方案。该方法无需完整重构 PDM，而是通过估计其二阶矩 $\text{Tr}(R^2)$ 来间接评估 PDM 的负性，从而实现对量子时间关联的高效验证。实验结果表明，该随机测量方案在不同信道参数与态参数下均能可靠地区分经典与量子时间关联，显著降低了实验复杂度。

上述结果不仅在方法层面为量子时间关联的实验探测提供了新的工具，也在应用层面展现出广泛的潜在影响。例如，PDM 负性的高效探测为时间关联的实验检验提供了新的判据，有望推动对 Leggett–Garg 不等式及其推广形式的研究；同时，该框架也可自然推广至量子信道容量评估与量子因果结构推断等问题，为相关方向发展更具可扩展性的实验方案提供启示。

此外，本章的研究还凸显了 NMR 体系在量子信息实验中的独特优势。NMR 系统在测量密度矩阵对角元及相关统计量方面具有高精度与高稳定性的特点，使其成为实现准概率分解与随机测量方案的理想平台。围绕这一特性，进一步探索能够充分发挥 NMR 系统优势的量子信息处理与量子关联研究任务，将有助于拓展系综量子平台在量子基础与量子技术中的应用边界。

CHAPTER 4 基于时间关联的量子因果推断

近年来，量子力学中的时序关联（temporal correlations）逐渐吸引了学术界的广泛关注。与空间域关联主要刻画空间上不同子系统之间的统计相关性不同，量子时序关联关注的是同一量子系统在不同时间点上实施测量或操作时，测量结果之间所呈现出的非平凡关联结构。由于量子测量的反作用以及可观测量的非对易性，这类关联往往展现出与经典随机过程显著不同的特征。因此，量子时序关联不仅在深化量子物理基础问题——例如宏观现实主义与非侵入性测量假设的适用性——方面具有关键意义，也为一类连续（sequential）信息处理任务提供了新的量子资源与操作视角。

近年来，围绕量子时序关联在应用层面的研究不断拓展。例如，时序关联可用于见证系统的有效量子维度，从而在不依赖空间纠缠的情况下刻画量子系统的复杂性与信息承载能力^[68-70]；又如，在量子计时与量子时钟等任务中，研究表明时序关联与计时装置的稳定性及精度密切相关，使其在自主量子时钟与高精度时间基准构建中扮演着重要角色^[71-73]。这些研究进展共同表明，量子时序关联不仅是“时间维度上的非经典性”表征，更可能作为一种核心资源支撑多种连续量子信息处理任务。

在本章中，我们进一步关注量子时序关联在建立量子因果结构方面所展现出的独特潜力。确定一组变量之间的因果结构，即哪些变量会对其他变量产生影响，被称为因果推断（causal inference）^[171-172]。因果推断是科学研究中的一项基础性任务，并在诸多实际场景中具有重要意义，例如医学临床试验^[173-174]，以及构建能够在训练数据之外良好泛化的数据模型^[175-176]。Reichenbach 提出的共同原因原理（Common Cause Principle）为理解概率相关性背后的因果结构提供了经典框架。该原理指出，当两个事件 A 与 B 之间存在统计相关性时，至少存在以下三种情形之一：(i) A 是 B 的原因；(ii) B 是 A 的原因；或 (iii) 存在同时影响 A 与 B 的共同原因 C ^[171]。上述基本情形还可以相互混合，从而得到五种可能的因果结构，如图 4-1 所示。在这一语境下，因果推断的核心目标即是判定哪一种因果结构与实验观测数据相一致。原则上，因果推断可以通过对系统实施干预（intervention）来完成，即主动改变系统状态并考察概率分布的变化^[172-173]；在部分情况下，仅依赖

观测数据亦可实现有限的因果推断^[172;174;177]。

近年来，因果结构推断在更为基础的量子层面同样受到了广泛关注^[65;83;86;89;91;132;178-185]。Reichenbach 原理中所涉及的因果结构已被系统地映射到量子线路中进行研究^[181]。以往的量子因果推断方案多依赖于干预手段，尤其是通过重置量子系统状态来区分不同因果机制^[84-85;87;186-191]。然而，已有研究表明，在某些量子情形下，确定因果结构并不需要显式的状态重置，仅通过投影测量形式的观测数据即可完成^[83;85;89]。特别地，从投影测量数据中提取的量子时序关联特征可以排除“共同原因”这一因果机制^[83]。进一步的理论与实验工作表明，某些特定因果结构（对应图 4-1 中结构 1 与 3 的特殊情形）能够仅依赖投影测量加以区分，并已在光学平台上得到验证^[85]。此外，还有研究发展了系统性的方法，用以判定给定量子因果模型是否与观测到的相关性相容^[185;192]。因此，与经典情形中通常需要状态重置型干预不同，在量子体系中，已存在多种情形表明仅凭测量即可实现因果推断。

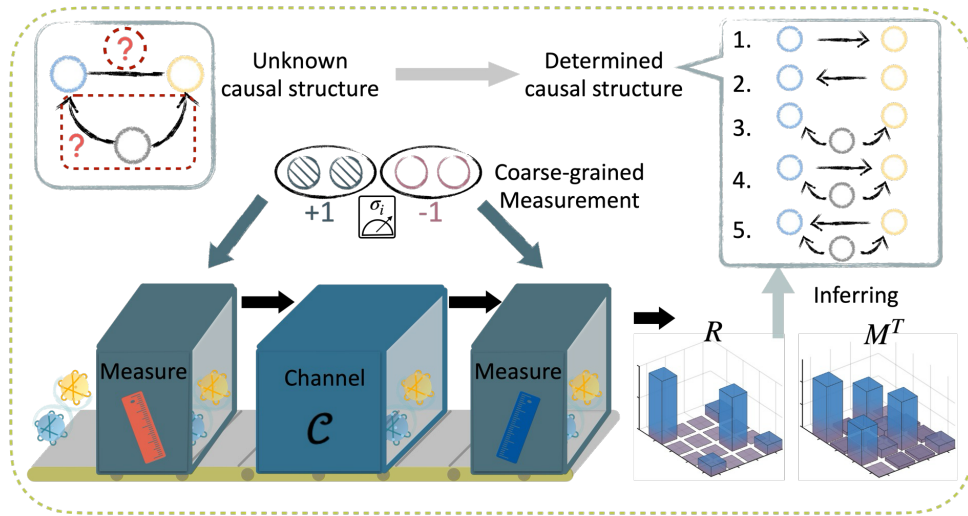


Figure 4-1 实验与理论分析概述。在所考虑的情形中，实验者事先并未知晓哪一个量子系统对另一个量子系统施加因果影响，亦不清楚初始量子态中是否存在相关性，即所谓的共同原因。例如，因果结构 4 对应于这样一种情形：两个量子系统在初始态中存在相关性，随后经历一段量子信道演化，在该演化过程中蓝色系统对黄色系统产生因果影响。实验数据来源于对初始态以及信道作用之后状态所实施的二值粗粒化测量。所得测量数据被映射为一密度矩阵 R 及其对应的 Choi 矩阵 M^T_B ，并据此推断所对应的因果结构。

基于上述背景，本章的目标是在这一方向上进一步推进研究：将“仅依赖投影测量的量子因果推断”推广至两个量子比特在两个时刻、并允许一般量子信道的情形，同时将测量方式从细粒度投影测量进一步推广至侵扰性更低的粗粒化投影测量。我们在实验上演示了一种高度非侵扰的量子因果推断方案，该方案仅依赖于

粗粒化投影测量。如图 4-1 所示，观测者通过在两个时刻对两个量子系统（量子比特）实施联合测量来获取实验数据。这里的联合测量为粗粒化投影测量，其在实验上通过系统与探针量子比特之间的幺正相互作用实现，随后对探针比特进行细粒度投影测量。该类粗粒化测量可通过散射线路^[125;141-142]来实现，并在 NMR 平台上加以实验验证^[143;193]。

该方案使观测者能够利用所获得的数据来推断生成这些数据的量子过程所对应的因果结构，或更准确地说，判断实验数据是否与某一给定因果结构（或多个因果结构）相容。为便于分析，我们将测量数据映射为一种 PDM，即一种将通常用于描述多体系统的密度矩阵自然推广至包含多个时间点的“时空量子态”^[83;89]。我们表明，仅凭 PDM 的约化态所呈现出的两类特征即可判定其与图 4-1 所示因果结构的相容性：(i) 负性（negativity）以及 (ii) 时间不对称性（time-asymmetry）。通过结合上述实验与理论工具，我们成功实现了对图 4-1 中五种因果结构相容性的判定，唯一的例外在于无法区分结构 4 与结构 5。该结果显著拓展了量子情形下“仅依赖投影测量，甚至是粗粒化投影测量即可完成因果推断”的适用范围。

4.1 基于量子时序关联的因果推断框架

4.1.1 五种可能因果结构下的量子因果推断任务

在量子因果推断问题中，观测者仅能获得对量子系统的测量数据，而事先并未知晓系统之间真实的因果结构。具体而言，考虑两个量子系统 A 与 B ，观测者希望根据实验数据判断：是否存在因果影响、因果影响的方向如何，以及初始量子态中是否存在相关性，即所谓的共同原因。

遵循 Reichenbach 提出的共同原因原理，我们在本章中考虑五种可能的因果结构（如图 4-1 所示）。这些因果结构由以下两个方面共同决定：(i) A （蓝色圆圈）与 B （黄色圆圈）之间是否存在因果影响及其方向；(ii) 初始量子态中是否包含相关性。需要指出的是，本章不考虑存在双向因果影响（即因果回路）的情形，例如作用于 A 与 B 的整体幺正演化，从而始终保证因果方向是清晰的^[171-172]。在上述假设下，量子因果推断的核心任务即是：判定实验数据与这五种因果结构中的哪一种（或哪些）相容。

4.1.2 利用时空态与时间不对称性进行因果推断

本章所采用的量子因果推断方法建立在 PDM 框架上。正如第三章中已系统介绍的那样，PDM 通过为不同时间点分别引入希尔伯特空间，将传统密度矩阵从“同一时刻的多体态”自然推广为能够描述跨时间测量统计的“时空量子态”^[83;89]。在此不再重复其完整构造过程，而仅回顾与因果推断直接相关的关键性质。

回顾标准情形， n 个量子比特在同一时刻的密度矩阵可写为 n 比特 Pauli 基算符 $\sigma_i \in \{\mathbb{I}, \sigma_x, \sigma_y, \sigma_z\}^{\otimes n}$ 的线性组合，其展开系数（相差一个归一化因子）对应于相应算符的期望值。PDM 采用完全类似的 Pauli 展开形式，但将这些期望值推广为跨不同时间点的时序关联。例如，对于单个量子比特在两个时刻 t_1 与 t_2 的测量， $\langle \sigma_{x_1}, \sigma_{z_2} \rangle$ 描述了对应测量结果之间的时间关联，其中符号“,”用以强调这些观测并非发生在同一时刻。

更一般地， n 个量子比特在两个时刻的 PDM 形式与 $2n$ 个量子比特在单一时刻的密度矩阵形式完全一致，可统一写为

$$R = \frac{1}{2^{2n}} \sum_{i_1, i_2=0}^{4^n-1} \langle \sigma_{i_1}, \sigma_{i_2} \rangle \sigma_{i_1} \otimes \sigma_{i_2}. \quad (4-1)$$

在本章中，我们主要关注 $n = 2$ 的情形，并考虑单时刻或双时刻实验过程。相应地，引入四个二维希尔伯特空间 A, B, C, D （见图 4-2），并定义作用在总维度为 2^4 的希尔伯特空间上的 PDM R_{ABCD} 。

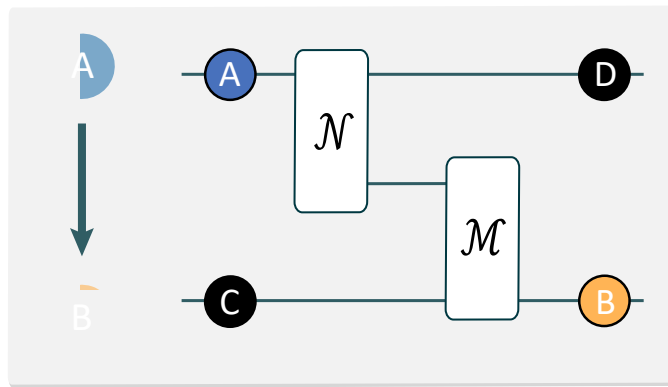


Figure 4-2 因果结构（左）及其对应的线路模型（右）。图中 $A \rightarrow B$ 的有向图表示相应的因果结构。该因果结构可通过两个连续作用的量子信道 \mathcal{N} 与 \mathcal{M} 来实现，其中事件 A 表示在时刻 1 对上量子系统实施的测量，而事件 B 表示在时刻 2 对下方量子系统实施的测量。

值得强调的是，式 (4-1) 中所需的期望值可通过粗粒化投影测量获得。粗粒化

测量指测量算符由若干正交的细粒度投影算符之和构成，与细粒度投影测量相比，其对系统的扰动更小，因为测量后仍保留非平凡的不变子空间。这类测量可通过引入一个探针量子比特，并使其与目标系统发生么正相互作用后再对探针实施标准投影测量来实现，具体实现方案我们已在第三章进行了详细的讨论及介绍。

在结合粗粒化测量与标准 Lüders 投影更新规则 $\rho \rightarrow \Pi\rho\Pi/\text{Tr}(\rho\Pi)$ ，并假设在两个时间点之间系统经历量子信道 \mathcal{N} 的情况下，PDM 可写为如下闭合形式^[89]：

$$R_{12} = \frac{1}{2}\{\rho_1 \otimes \mathbb{I}_2, M\}, \quad (4-2)$$

其中 $M = \sum_{i,j} |i\rangle\langle j| \otimes \mathcal{N}(|j\rangle\langle i|)$ 为与信道 \mathcal{N} 相关联的 Jamiołkowski 矩阵， $\{\cdot, \cdot\}$ 表示反对易子。对应的 Choi 矩阵为 M^{T_B} ，其中 T_B 表示对系统 B 进行转置操作。当明确涉及两个不同时间点时，我们采用数字下标来标记相应的希尔伯特空间，如式 (4-2) 所示；在更一般的情形下，则使用字母下标来表示不同的量子系统或子空间，例如 R_{AB} 。

在存在多个子系统或时间点时，我们通过对相应希尔伯特空间取偏迹来定义约化态，例如 $R_{AB} = \text{Tr}_{CD} R_{ABCD}$ 。与通常密度矩阵类似，实验上确定 R_{AB} 仅需对系统 A 与 B 的测量数据。

PDM 的一个关键特征是其可能具有负本征值。若 R_{AB} 存在负本征值，则必然涉及多个时间点，因为单一时刻的标准密度矩阵必为正半定（在实验统计充分、排除统计误差的前提下）^[83]。因此，我们首先通过评估 R_{AB} 的负性来判断数据是否涉及多个时刻。负性可定义为^[83]

$$f(R) := \text{Tr}\sqrt{RR^\dagger} - \text{Tr}R. \quad (4-3)$$

当 R 具有负的本征值时， $f(R) > 0$ ；当 R 为半正定矩阵时， $f(R) = 0$ ^[83]。因此，第一步即检验是否满足 $f(R_{AB}) > 0$ 。若 $f(R_{AB}) = 0$ ，则实验数据与“在单一时刻对两个量子系统实施测量”的解释相容，对应于图 4-1 中的情形 3，即共同原因（common cause）结构。若 $f(R_{AB}) > 0$ ，则说明涉及多个时间点，如情形 1 和 2，所考虑的情形中为两个时刻 t_1 与 t_2 ，此时需要进一步判定由实验数据得到的 R_{AB} 是对应于 R_{12} 还是其时间反演形式^[89;132;184]

$$R_{21} := SR_{12}S^\dagger, \quad (4-4)$$

其中 $S = \sum_{i,j} |j, i\rangle\langle i, j|$ 为交换两个希尔伯特空间的算符。

为确定时间先后顺序，我们关注：由该 PDM 所隐含的动力学，以及/或由时间反演后的 PDM 所隐含的动力学，是否属于允许的量子动力学。给定 PDM 所对应的动力学可用量子信道的 Choi 矩阵表象来表示，即 M^{TB} （其中 M 的定义见式 (4-2) 附近)^[89;121]。例如，在初态 $\rho_A = \text{Tr}_B R_{AB}$ 为满秩（full rank）的特殊情形下，有

$$M_{AB} = 2 \int_0^\infty e^{-t\rho_A \otimes \mathbb{I}_B} R_{AB} e^{-t\rho_A \otimes \mathbb{I}_B} dt$$

^[89;121]。（对于非满秩的情形，见附录中给出的代码。）已知当且仅当该信道是允许的（即完全正，completely positive）时， M^{TB} 为正（ $f(M^{TB}) = 0$ ）。因此，若 $f(M_{AB}^{TB}) > 0$ 但 $f(M_{BA}^{TB}) = 0$ ，则说明数据与 R_{AB} 为 R_{21} （即结构 $B \rightarrow A$ ）相容，而与 R_{AB} 为 R_{12} （ $A \rightarrow B$ ）不相容；反之亦然。

下表总结了根据实验获得的 R_{AB} 及其对应 Choi 矩阵 M_{AB}^{TB} 的负性 $f(\cdot)$ 来判定因果结构相容性的规则^[89]：

$f(R_{AB})$	$f(M_{AB}^{TB})$	$f(M_{BA}^{TB})$	因果结构相容性
0	任意	任意	共同原因
> 0	0	> 0	$A \rightarrow B$
> 0	> 0	0	$B \rightarrow A$
> 0	0	0	$A \rightarrow B$ 或 $B \rightarrow A$
> 0	> 0	> 0	混合结构

因此，我们量子因果推断方案的流程为：通过测量数据构建 R_{AB} ，进一步提取对应的动力学 M_{AB}^{TB} 及其时间反演形式 M_{BA}^{TB} ，计算相应负性函数 $f(\cdot)$ ，并依据上述判据表确定实验数据与哪一种（或哪些）因果结构相容。

4.2 不同因果结构的实验实现与结果

我们共在四组实验中验证了该方案。其中前两组实验分别实现了两种定性不同的 $A \rightarrow B$ 因果结构，对应于么正信道与完全退相干信道；第三组实验对应共同原因结构；第四组实验对应共同原因与因果影响的混合结构。所有实验均在一个四比特核磁共振量子处理器上完成^[122;145-147]。在该处理器中，量子动力学通过单自旋射频脉冲与自旋—自旋耦合的联合控制来实现，并借助梯度上升脉冲优化算法（GRAPE）进一步提升实验控制精度^[123]。

4.2.1 么正信道下 $A \rightarrow B$ 的因果结构

首先，第一组实验针对因果结构 $A \rightarrow B$ 展开，用以检验实验数据是否与该事先未知的因果机制相一致。在该结构中，系统 A 的制备会影响系统 B 在后续时刻的测量统计，而不存在由 B 反向影响 A 的因果作用（见图 4-2）。关于这部分的实验线路实现细节：散射线路与粗粒化联合测量的具体实现、线路设计与读出流程已在第三章中给出。基于第三章所获得的测量数据，本节将进一步按照上一节提出的判据流程，对该过程对应的 PDM 及其诱导动力学进行重构与分析，从而给出与因果结构 $A \rightarrow B$ 的相容性判断。

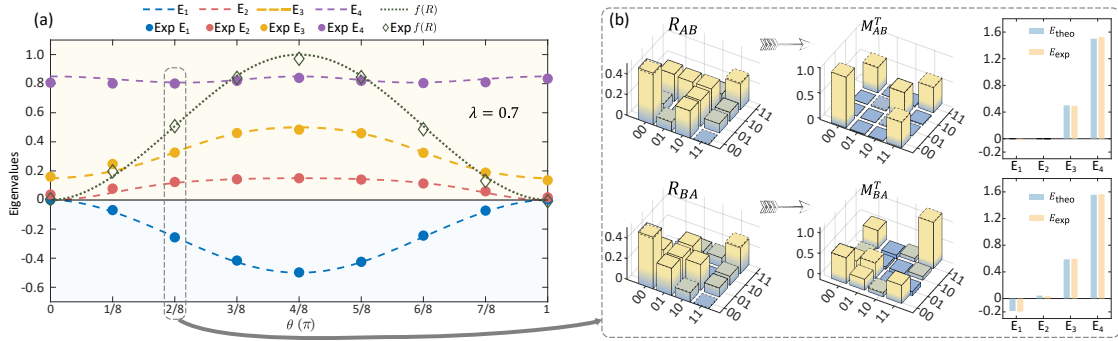


Figure 4-3 (a) 约化密度矩阵 R_{AB} 在不同信道参数 θ 取值下的本征谱与负性分析。图中给出了 R_{AB} 的四个本征值 E_1-E_4 ，其中实线表示理论预测结果，符号表示由实验数据反演得到的结果。同时展示了对应的 PDM 负性 $f(R_{AB})$ 。实验中取初态参数 $\lambda = 0.7$ 。(b) 实验测得的约化 PDM R_{AB} 及其时间反演形式 R_{BA} ，以及由其反演得到的对应 Choi 矩阵 M^{T_B} （为作图简便记为 M^T ）。同时给出了在 $\lambda = 0.7$ 且 $\theta = 2\pi/8$ 条件下，Choi 矩阵的本征值及其对应的实验预测结果。Choi 矩阵中是否出现负本征值构成判定实验数据与给定因果结构相容性的关键判据。

在该实验中，因果结构 $A \rightarrow B$ 可由两个连续量子信道 \mathcal{N} 与 \mathcal{M} 的作用实现，其形式选取为

$$\mathcal{N}(\cdot) = S(\cdot)S^\dagger \text{ and } \mathcal{M}(\cdot) = e^{-i\theta S}(\cdot)e^{i\theta S}, \quad (4-5)$$

其中 S 为 SWAP 算符， $S = |00\rangle\langle 00| + |10\rangle\langle 01| + |01\rangle\langle 10| + |11\rangle\langle 11|$ ， θ 为可调演化参数。实验中，我们首先对 A, B, C, D 上 Pauli 算符的完整集合测量探针比特的 $\langle \sigma_z \rangle_{\text{probe}}$ ，从而重构得到该过程的完整 PDM R_{ACDB} ，实验结果如图 3-8 所示；该步骤亦用于检验粗粒化测量实现的正确性。

接下来，为执行上一节判据表所需的第一步，我们进一步获取实验数据以计算 $f(R_{AB})$ 。具体而言，我们仅重构因果推断方案所需的约化 PDM R_{AB} 。由于 R_{AB} 已足以用于本章的量子因果推断流程，在该步骤中取 $\sigma^C = \sigma^D = \mathbb{I}$ ，即将 C, D 两

个希尔伯特空间上的算符固定为恒等算符。实验上，通过测量探针比特的期望值 $\langle \sigma_z \rangle_{\text{probe}}$ 获取构造 R_{AB} 所需的数据，并在一系列参数取值下重复该过程以考察结果的稳健性。

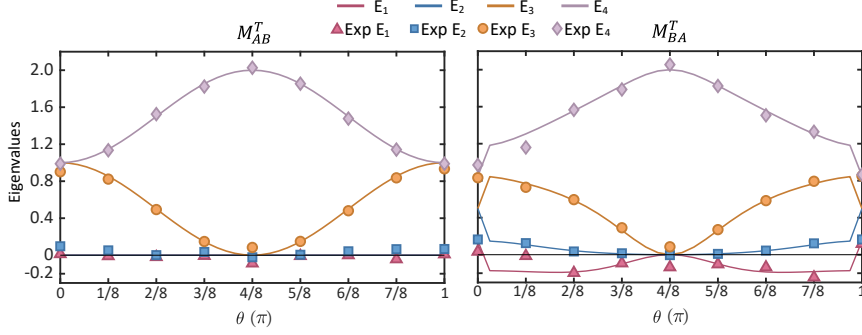


Figure 4-4 在固定极化参数 $\lambda = 0.7$ 的条件下，随信道强度参数 θ 从 0 变化至 π ， M_{AB}^T 与 M_{BA}^T 的本征值变化情况。实线表示理论预测结果，符号表示实验测量结果。

首先，将极化参数固定为 $\lambda = 0.7$ ，并将信道参数 θ 从 0 连续改变至 π 。基于所采集的数据重构得到 R_{AB} ，并计算其本征值 E_i 及负性 $f(R_{AB})$ ，结果如图 4-3(a) 所示。可以看到，除 $\theta = 0$ 与 $\theta = \pi$ 两个极端取值外，均满足 $f(R_{AB}) > 0$ 。在这两个取值处，信道 \mathcal{M} 退化为平凡演化，即 $e^{-i\theta S} = \pm \mathbb{I}$ 。因此，由该步骤可判定实验数据确实涉及两个不同时间点的时序过程，不过我们需要进一步确定这两个时间点的先后顺序。

在完成 R_{AB} 的负性检验后，下一步是确定 Choi 矩阵的负性 $f(M^{TB})$ 。我们先给一个简单的例子。基于 $\lambda = 0.7$ 且 $\theta = \pi/4$ 条件下实验重构得到的 R_{AB} ，我们首先构造其时间反演对应的

$$R_{BA} = SR_{AB}S^\dagger, \quad (4-6)$$

并分别由 R_{AB} 与 R_{BA} 提取对应的 Choi 矩阵 M_{AB}^{TB} 与 M_{BA}^{TB} 。对上述 Choi 矩阵的正半定性进行检验后得到： $f(M_{AB}^{TB}) = 0$ ，而 $f(M_{BA}^{TB}) > 0$ 。这表明仅有与 $A \rightarrow B$ 相对应的动力学满足完全正性要求，从而可将时间顺序判定为与因果方向 $A \rightarrow B$ 相一致，并完成了因果结构判定。相关的实验重构结果与分析结论汇总于图 4-3(b)，其中理论预测与实验结果符合良好。

我们进一步给出完整的 Choi 矩阵 M_{AB}^T 和 M_{BA}^T 的本征值结果，其结果如图 4-4 所示。对于 M_{AB}^T ，随着信道强度 θ 变化，其本征值始终保持为正；而对于 M_{BA}^T ，则出现了负本征值。结果表明，系统 A 作为原因而系统 B 作为结果（如表 4.1.2 所示），这与我们所设定的因果模型预期相符。

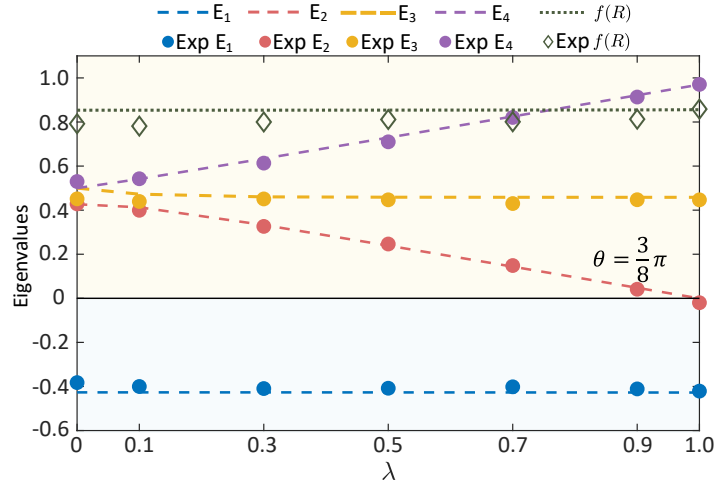


Figure 4-5 约化质密度矩阵 R_{AB} 随初态参数 λ 变化的本征谱与负性分析。在固定信道参数 $\theta = 3\pi/8$ 的条件下，给出了实验重构得到的 R_{AB} 的四个本征值 E_1-E_4 及其对应的负性 $f(R_{AB})$ 随 λ 变化的结果。可以看到，在所考虑的参数范围内均满足 $f(R_{AB}) > 0$ ，表明实验数据稳定地对应于两个不同时刻的时序过程。图中误差棒的大小小于符号尺寸，故未在视觉上显著区分。

其次，我们实验考虑将 θ 固定为 $\theta = 3\pi/8$ ，并改变极化参数 λ 。由实验数据重构得到的 R_{AB} 的本征值 E_i 及其负性 $f(R_{AB})$ 如图 4-5 所示，同样观察到 $f(R_{AB}) > 0$ 。

我们也进一步给出了这个条件下完整的 Choi 矩阵 M_{AB}^T 和 M_{BA}^T 的本征值结果，其结果如图 4-6 所示。当初态发生变化时，不同的初始态经过的是同一量子信道，因此由 R_{AB} 所反演得到的 M_{AB}^T 保持不变，其本征值也相应地保持为常数且始终为正。相比之下，其时间反演对应的 M_{BA}^T 则随初态的变化而改变，并且其负本征值的幅度随着极化参数 λ 的增大而单调增加。

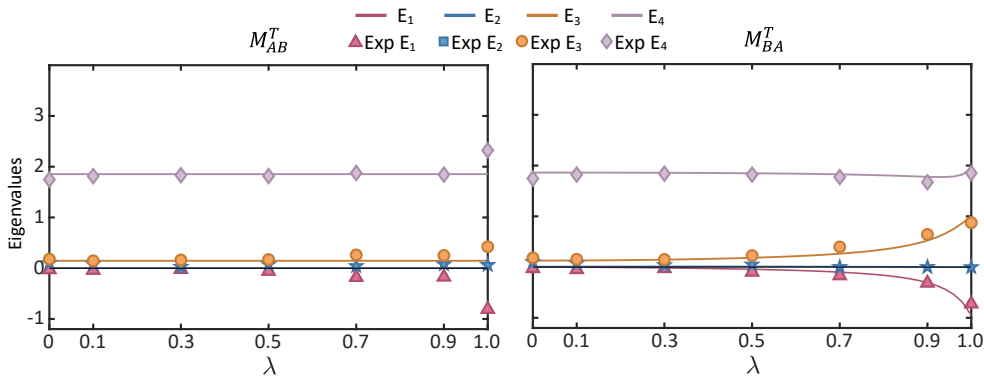


Figure 4-6 在固定信道强度为 $\theta = 3\pi/8$ 的条件下，随初态极化参数 λ 从 0 变化至 1， M_{AB}^T 与 M_{BA}^T 的本征值变化情况。实线表示理论预测结果，符号表示实验测量结果。

4.2.2 完全退相干信道下 $A \rightarrow B$ 的因果结构

我们进一步将我们的因果推断方法应用于包含全退相干信道 $\mathcal{L}(\cdot)$ 的因果—结果机制，从而检验在量子演化在某种意义上趋于“经典化”的情形下，仅依赖粗粒化投影测量是否仍可实现因果结构判定。具体而言，在图 4-2 所示模型中，将信道 \mathcal{N} 取为全退相干的“测量—制备”（measure-and-prepare）信道，即对 C_1 进行测量并将结果制备到 C_4 上：

$$\mathcal{L}(\rho_{C_1 C_4}) = \langle 0 | \rho_{C_1} | 0 \rangle | 00 \rangle_{C_1 C_4} \langle 00 | + \langle 1 | \rho_{C_1} | 1 \rangle | 11 \rangle_{C_1 C_4} \langle 11 |. \quad (4-7)$$

同时，图 4-2 中的信道 \mathcal{M} 取为交换 C_2 与 C_4 的 SWAP 操作 S 。具体实验上实施的用于构造 PDM R_{AB} 的量子线路如图 4-7 所示。

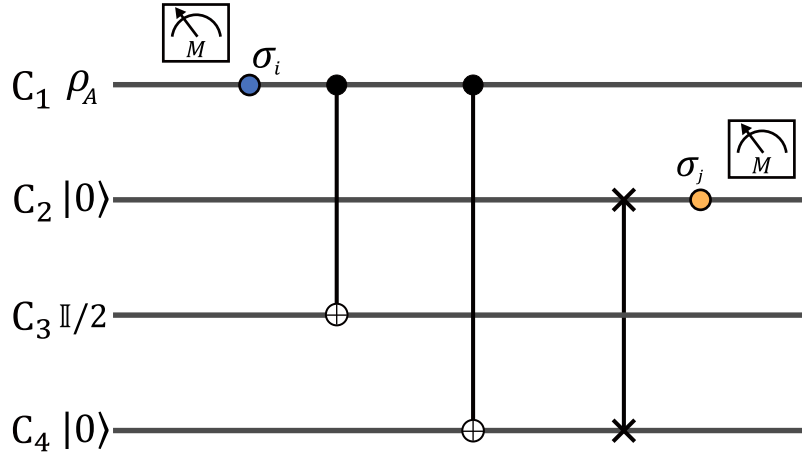


Figure 4-7 全退相干信道的模拟及 $\langle \sigma_i^A, \sigma_j^B \rangle$ 的测量。第一个自旋 C_1 作为信道的输入态 ρ_A ，而信道的最终输出态由第二个量子比特 C_2 给出。对应于两个不同时刻、两个不同量子系统的赝密度矩阵元 $\langle \sigma_i^A, \sigma_j^B \rangle$ 在实验中被测量。

第一个自旋 C_1 作为输入态 ρ_A ，而通道的最终态由第二个量子比特 C_2 输出。最后两个量子比特 C_3 和 C_4 用于模拟完全退相干通道。系统的初始态取为

$$\rho_A \otimes |0\rangle\langle 0| \otimes \frac{\mathbb{I}}{2} \otimes |0\rangle\langle 0|,$$

其中 $\rho_A = (1 - \lambda) \frac{\mathbb{I}}{2} + \lambda |+\rangle\langle +|$ 。该线路包含了 3 个量子门。第一个门为 CNOT 门，其中 C_1 和 C_3 分别为控制比特和受控比特。经过第一个 CNOT 门后， C_1 的密度矩阵变为

$$\langle 0 | \rho_A | 0 \rangle | 0 \rangle \langle 0 | + \langle 1 | \rho_A | 1 \rangle | 1 \rangle \langle 1 |.$$

第二个门也是 CNOT 门，其中 C_1 是控制比特而 C_4 为受控比特。经过该门后 C_1 和 C_4 的联合密度矩阵可表示为

$$\langle 0|\rho_A|0\rangle|00\rangle\langle 00| + \langle 1|\rho_A|1\rangle|11\rangle\langle 11|.$$

第三个门操作是 SWAP 操作。该操作将 C_2 的量子态替换为 C_4 的量子态。因此，经过第三个门操作后， C_1 和 C_2 的联合态为

$$\langle 0|\rho_A|0\rangle|00\rangle\langle 00| + \langle 1|\rho_A|1\rangle|11\rangle\langle 11|.$$

观察 C_1 的输入态 ρ_A 和 C_2 的最终态 $\langle 0|\rho_A|0\rangle|0\rangle\langle 0| + \langle 1|\rho_A|1\rangle|1\rangle\langle 1|$ ，我们的线路成功地模拟了完全退相干信道。

在该情形下，为减少所需量子比特数目，实验采用了常规量子线路而非散射线路。在实验中，我们首先将自旋 C_1 制备在 ρ_A 态，然后测量其在不同泡利算符 σ_i 作用下的本征态概率。随后，将 ρ_A 坍缩到特定的本征态，并使其通过设计的线路。最后，我们对 C_2 的最终态进行量子态层析，以计算其在不同泡利算符 σ_i 作用下的本征态概率。然后，根据参考文献^[83]中描述的方法，利用这些数据计算期望值 $\langle \sigma_i^A, \sigma_j^B \rangle$ ，从而得到 PDM R_{AB} 。当然，该 PDM 也可以在五比特量子模拟器上的使用散射线路进行测量。

我们研究了不同输入态下的完全退相干信道，其中 λ 从 0 变化到 1。在获得不同 λ 下的相关测量量 $\langle \sigma_i^A \sigma_j^B \rangle$ 后，重构得到相应的 R_{AB} 并进行分析，其结果如图 4-8 所示。除 $\lambda = 0$ 外，在所有参数取值下均观察到 R_{AB} 具有负本征值，从而排除了纯共同原因结构。

随后，按照前述流程进一步通过 $f(M^{TB})$ 判定时间顺序：由 R_{AB} 与 R_{BA} 分别提取 Choi 矩阵 M_{AB}^T 与 M_{BA}^T 并计算其负性，如图 4-9 (a) 所示，Choi 矩阵 M_{AB}^T 对于不同的 λ 值保持不变且为正。基于实验构建的 R_{AB} 得到的时变 Choi 矩阵 M_{BA}^T 随 λ 变化。图 4-9 (c) 展示了对应于不同 λ 的 M_{BA}^T 及其竖线形式的特征值结果。图 4-9 (b) 绘制了 M_{BA}^T 的特征值作为 λ 的函数。基于表 4.1.2 中的因果推断方案，由此推断出因果结构与 $A \rightarrow B$ 相一致。

当 $\lambda = 0$ 时，该方法如预期失效，此时初态不含计算基上的相干性，对应于经典极限。在该情形下，由于 $f(R) = 0$ ，分析流程将错误地给出与共同原因结构相容的结论。这反映出当系统完全回到经典概率论的情形时，仅凭观测数据通常无法区分因果结构。这一对比表明，在存在初态相干性时，量子时序关联为因果推

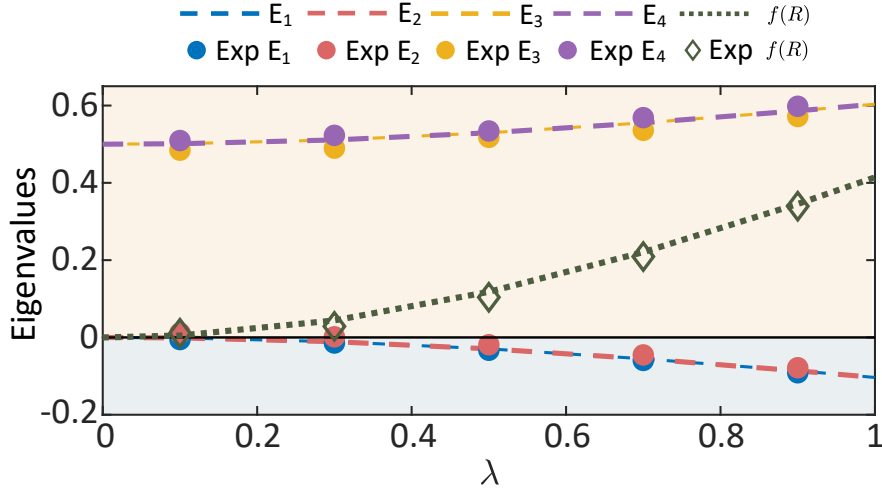


Figure 4-8 质密度矩阵 R_{AB} 的本征值及其负性 $f(R_{AB})$ 随初态参数 λ 变化的实验结果。圆点与菱形分别表示实验获得的本征值与 $f(R_{AB})$ 数据点，虚线表示理论预测。随着初态 ρ_A 从最大混合态逐渐过渡到量子态 $|+\rangle\langle+|$, R_{AB} 中负本征值的幅度相应增大。当 ρ_A 为 $|+\rangle\langle+|$ 并通过全退相干信道时, A 对 B 的因果影响达到最大; 相反, 当 ρ_A 退化为最大混合态时, A 与 B 之间的因果关联变得不可分辨。

断提供了相对于经典情形的优势。

4.2.3 共因因果结构

我们将共因因果结构作为第三组实验的研究对象。相应的因果结构和实验线路如图 4-10 所示。整体线路框架与第 4.2.1 节的方案类似, 但初始状态、相互作用

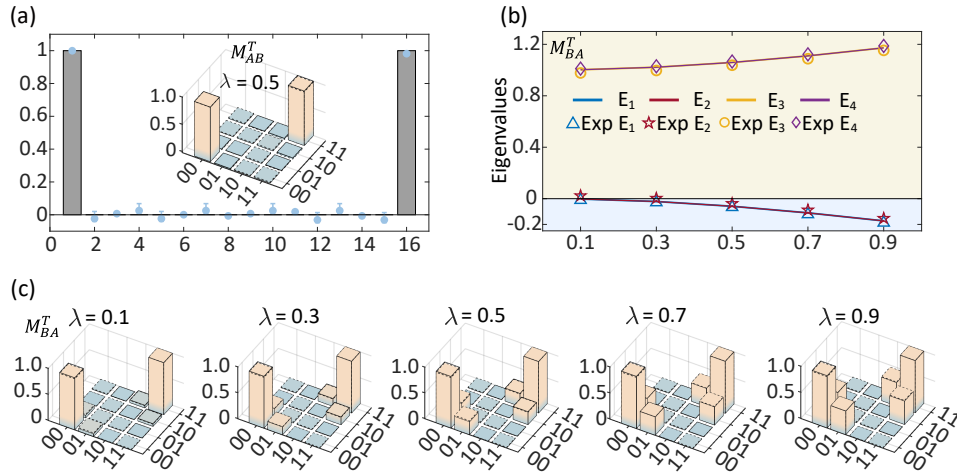


Figure 4-9 (a) 五个 λ 值对应的 Choi 矩阵 M_{AB}^T 的实验结果。不同初始状态下的 M_{AB}^T 相同。圆圈代表五个实验结果的平均值, 灰色条代表理论结果。中间的柱状图表示 $\lambda = 0.5$ 时的 Choi 矩阵 M_{AB}^T 。(b) M_{BA}^T 的特征值随 λ 的变化。标记点表示实验获得的特征值点, 实线表示相应的理论结果。(c) 不同 λ 值对应的 Choi 矩阵 M_{BA}^T 。黑色实线表示理论结果, 带虚线的色条表示实验结果。

和测量位置有所不同。初始状态为 $|+\rangle \otimes [\frac{1}{\sqrt{2}}|000\rangle + \frac{1}{\sqrt{2}}|101\rangle]$ ，通道为 $\mathcal{N} = e^{-i\theta_1 S}$ 和 $\mathcal{M} = e^{-i\theta_2 S}$ ，其中 θ_1 和 θ_2 为参数。

在本实验中，线路经过修改以提取期望值 $\langle \sigma_j^C, \sigma_k^D \rangle$ ，然后利用这些期望值重构 PDM R_{CD} 以进行因果推断。如图 4-10(a) 所示，经过信道操作后，系统 C 对系统 D 没有直接的因果影响——它们之间观察到的任何相关性都完全源于它们的共因。

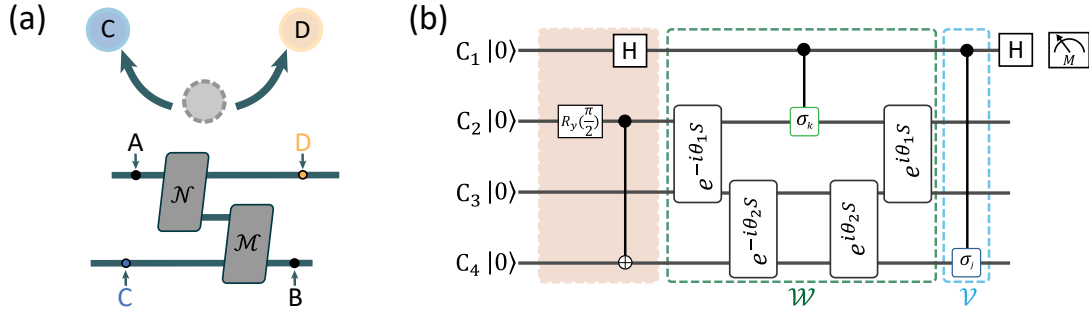


Figure 4-10 (a) C 与 D 之间的共同原因 (common-cause) 结构，以及在量子线路中对应的采样位置，其中信道 $\mathcal{N} = e^{-i\theta_1 S}$, $\mathcal{M} = e^{-i\theta_2 S}$. (b) 实验量子散射线路。该线路被设计用来测量如下形式的期望值 $\langle \sigma_j^C, \sigma_k^D \rangle$ ，这些期望值用于重构 PDM (厖密度矩阵) R_{CD} 。

实验结果如图 4-11(a) 所示。我们发现 PDM R_{CD} 的负性 $f(R_{CD}) = 0$ ，表明 R_{CD} 是半正定的。此外，我们将 \mathcal{M} 的信道参数 θ_2 从 0 变化到 π ，模拟结果表明 R_{CD} 的特征值保持不变。因此，我们将 C 和 D 归因于共同原因机制。由此可见，观察到的相关性完全可以归因于源自纠缠初始态的共同原因。

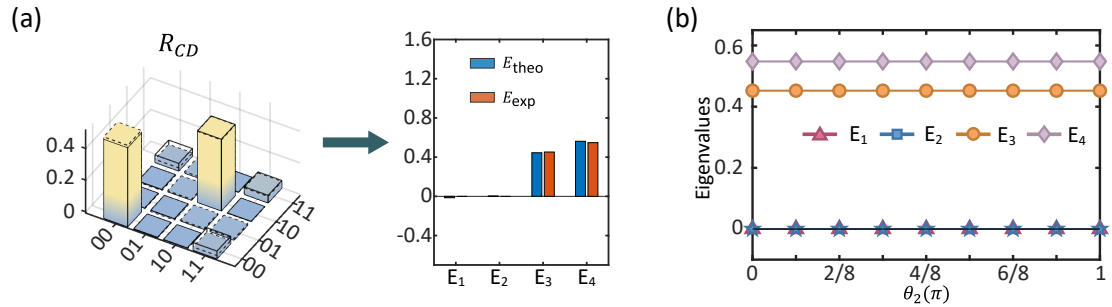


Figure 4-11 (a) PDM R_{CD} 的实验结果及其对应的特征值。(b) 在 $\theta_1 = 2\pi/5$ 的条件下， R_{CD} 的特征值随 θ_2 变化的函数关系。

4.2.4 $A \rightarrow B$ 与共因混合的因果结构

我们开展了第四组实验，针对共同原因机制与因果机制混合的因果结构。图 4-12(a) 展示了 A 和 B 之间的因果结构。该线路与图 4-2(a) 类似，但引入了 A 和 C 之间的初始关联作为共同原因。

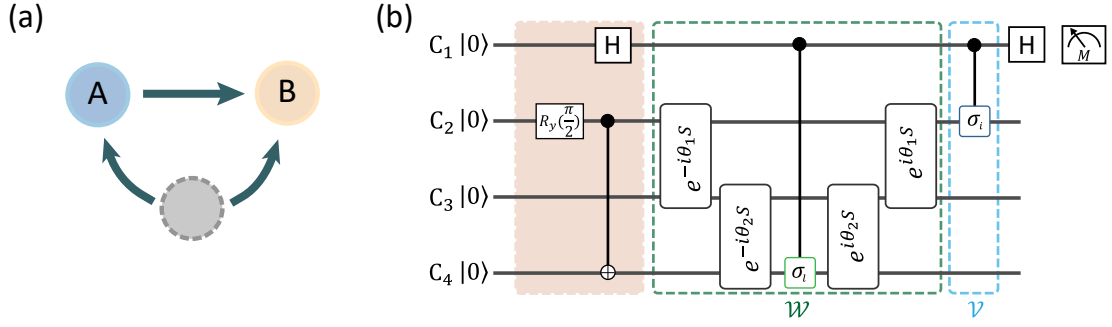


Figure 4-12 (a) 系统 A 对系统 B 存在直接因果影响，同时二者还受到一个共同原因（灰色虚线节点）的共同作用。图中节点表示量子系统，箭头表示因果影响方向。(b) 四自旋体系上的实验量子线路。该线路的目标是测量期望值 $\langle \sigma_i^A, \sigma_i^B \rangle$ 。

相应的实验线路如图 4-12(b) 所示。经过黄色框所示的初态制备步骤后，四比特量子处理器的初始状态为 $|+\rangle \otimes [\frac{1}{\sqrt{2}}|000\rangle + \frac{1}{\sqrt{2}}|101\rangle]$ ，即 AC 为贝尔态。如图 2(a) 所示，我们令 $\mathcal{N} = e^{-i\theta_1 S}$ 和 $\mathcal{M} = e^{-i\theta_2 S}$ 。然后，我们利用散射线路获得双时间关联函数 $\langle \sigma_i^A, \sigma_i^B \rangle$ ，并用其构建 PDM R_{AB} 。

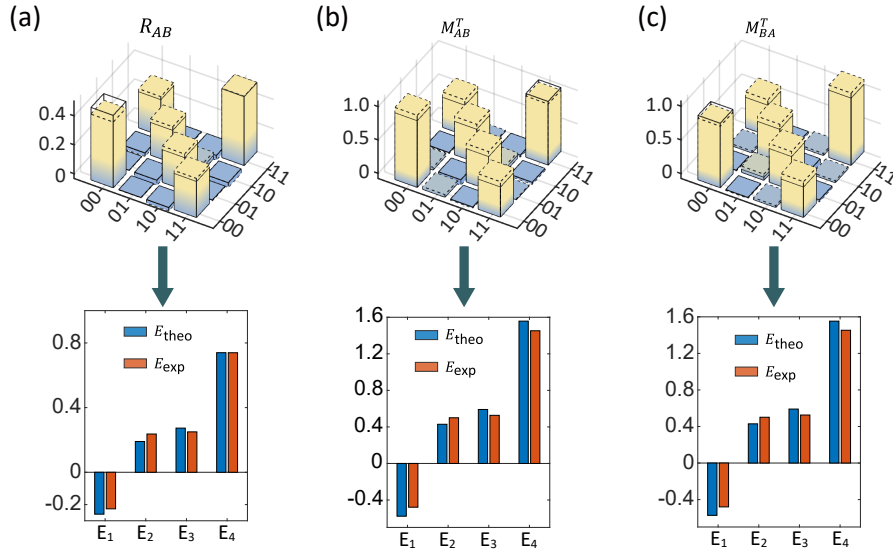


Figure 4-13 在 $\theta_1 = 2\pi/5$ 与 $\theta_2 = \pi/4$ 条件下的实验结果。上排给出了由实验数据构造得到的矩阵：(a) R_{AB} ，(b) M_{AB}^T ，(c) M_{BA}^T 。在每一种情形中，黑色实线表示理论预测结果，带虚线的彩色柱表示实验结果。下排给出了各矩阵对应的本征值谱：蓝色柱表示理论本征值 (E_{theo})，红色柱表示实验本征值 (E_{exp})。需要指出的是，由于正向与反向过程之间的对称性， M_{AB}^T 与 M_{BA}^T 在数值上几乎一致。

令 $\theta_1 = 2\pi/5$ 和 $\theta_2 = \pi/4$ ，PDM R_{AB} 的实验结果、Choi 矩阵 M_{AB}^T 和 M_{BA}^T 及其对应的特征值如图 4-13(a-c) 所示。根据我们的量子因果推断方法，我们首先评估 R_{AB} 的负性 $f(\cdot)$ ，发现 $f(R_{AB}) > 0$ ，因此 A 和 B 之间必然存在因果关系。然后，我们计算前向和后向过程的 Choi 矩阵，发现 $f(M_{AB}^T) > 0$ 和 $f(M_{BA}^T) > 0$ ，表明存

在共同原因。因此，我们推断存在共同原因。

4.3 总结

在本章我们围绕“量子时序关联在因果推断中的应用”系统开展了理论与实验研究。基于 PDM 形式及其负性与时间不对称性判据，在核磁共振量子处理平台上，实验实现了对多种量子因果结构的判定，并成功在仅依赖粗粒化投影测量的条件下，无需侵入式干预的情况下，仍然可以区分不同因果机制。

通过对么正信道与完全退相干信道两类代表性动力学过程的实验验证，我们发现，即便在量子相干性部分甚至完全丧失的情形下，系统中仍然保留足以用于因果推断的时序关联信息。特别是，在完全退相干信道中仍可正确识别因果方向，这一结果显著拓展了量子因果推断方法的适用范围，使其不再局限于高相干量子演化，而可覆盖更一般的开放量子系统动力学。

在方法层面，本章所采用的“PDM 负性 + 时间不对称性”的判据体系，为量子因果结构的实验判定提供了一套可操作、可量化的工具。相较于依赖侵入式干预或状态重置的传统方案，该方法仅基于测量数据即可完成因果结构分析，体现了量子时序关联在因果推断中的独特优势。

此外，由实验数据所反演得到的 Choi 矩阵 M_{AB} 实质上刻画了两次测量之间的中间动力学过程，因此该框架还为发展基于粗粒化测量的多量子比特量子信道层析方案提供了新的可能性。由于该方法允许初态与环境之间存在相关性，它还具备用于构造非马尔可夫性见证量的潜在应用价值。

当前工作的一个主要限制在于尚无法区分包含共同原因与因果影响混合情形的部分因果结构（对应图 4-1 中的结构 4 与 5）。这一问题在多子系统、多时间点的复杂量子过程中将更为突出，因此有必要在未来工作中进一步发展更精细的时间箭头与时序关联判据。总体而言，本章的结果展示了量子时序关联作为一种核心资源，在量子因果推断与量子动力学表征中的重要潜力。

CHAPTER 5 基于 DQC1 的神经量子嵌入

在前几章中，我们重点研究了量子系统中不同时间片之间所呈现的非经典关联，并通过 PDM 框架对量子时序关联的探测、表征及其在量子因果推断中的应用进行了系统分析。这一系列工作表明，即便在缺乏多体纠缠的系综量子平台中，时间维度上的非经典关联仍然可以作为一种可被操控和利用的量子资源。除了时间关联之外，量子信息理论的研究还揭示了另一类重要的非经典资源：并不依赖于纠缠、但仍然超越经典相关性的量子关联结构。其中，一个具有代表性的例子便是 DQC1 模型。该模型中几乎不存在可用的多体纠缠，但其整体量子态却表现出非平凡的量子相关性，通常被认为与量子失谐（quantum discord）等非纠缠型关联密切相关。DQC1 的存在挑战了“纠缠是量子优势唯一来源”的传统观点，也为在受限量子平台上探索和利用非经典量子资源提供了新的思路。

在这一背景下，本章将研究视角从量子时序关联进一步拓展至 DQC1 模型中所蕴含的非经典量子资源，并探讨其在量子机器学习任务中的实际应用。量子机器学习（quantum machine learning, QML）作为数据科学领域的重要前沿方向，旨在突破经典信息处理体系在计算能力与表示能力上的固有限制。尽管 QML 在处理量子数据方面具有天然优势^[194-197]，但在现实应用中，绝大多数数据分析任务仍然以经典数据为对象。因此，如何将 QML 有效地应用于经典数据，已成为推动其走向实际应用的关键问题。

解决这一问题的核心在于构建合适的量子数据嵌入（quantum data embedding）方案，即将经典数据映射为量子态或量子操作，使其在量子特征空间中呈现出有利于学习任务的结构。然而，在当前噪声中等规模量子器件（NISQ）阶段，构建通用且具备容错能力的量子硬件仍面临巨大挑战。为此，已有大量研究尝试利用非容错量子设备开展 QML 任务，并提出了多种变分量子算法与混合量子-经典框架^[198-206]。尽管如此，亚通用（subuniversal）量子计算模型在 QML 中的潜在作用仍然缺乏系统研究。探索这些计算能力受限、但在实验上更易实现的量子模型在机器学习中的应用，是迈向实际量子优势的重要一步。

为应对上述挑战，本章提出一种基于 DQC1 的量子数据嵌入优化方法。具体而言，我们关注于二分类这一数据分析中的基本任务^[193;207]。一个有效的分类器

应当在特征空间中使来自不同类别的数据点彼此分离，同时保持同一类别内数据点的紧密聚集^[208-210]。在量子资源受限的条件下，为实现上述目标，本文提出一种经典-量子混合算法，利用 DQC1 框架训练神经网络，使其学习一个满足分类需求的量子特征映射。

DQC1 是一种亚通用量子计算模型，其特点在于：仅包含一个具有非零纯度的探测量子比特、 n 个处于最大混态的辅助比特、对系统实施任意么正演化的能力，以及对探测比特进行 Pauli 测量。尽管 DQC1 在态制备与测量方面受到严格限制，但已被证明在若干计算任务中能够超越经典算法^[10;127;211-213]。其中一个典型例子是对 n 比特么正算符归一化迹的高效估计。这一能力可直接用于估计两个 n 比特么正算符 U_1 与 U_2 之间的 Hilbert-Schmidt 内积 $\langle U_1, U_2 \rangle_{\text{HS}} = \frac{\text{Tr}(U_1^\dagger U_2)}{2^n}$ 。本章方法的核心思想在于：通过训练神经网络，使得将同一类别（或不同类别）数据映射至量子特征空间后的么正算符之间，其 Hilbert-Schmidt 内积被最大化（或最小化），从而实现对量子数据嵌入的优化。我们将该方法称为基于 DQC1 的神经量子嵌入（Neural Quantum Embedding via DQC1, NQE-DQC1）。值得强调的是，基于自旋系综与磁共振技术的量子信息处理平台^[105;214-218] 非常适合实现 DQC1 方案。更进一步，一旦在系综平台上完成 NQE 的训练过程，后续的量子机器学习任务还可以无缝迁移至其他物理平台。这一特性使得系综量子系统不仅是研究非经典量子资源的理想试验场，也为面向经典数据的实用量子机器学习提供了独特而现实的路径。

5.1 DQC1

DQC1 是一种旨在以最小量子资源运行的量子计算模型，最早由 Knill 和 Laflamme 提出^[10]。在该模型中，量子系统仅包含一个处于非零纯度状态的探测量子比特，而其余 n 个量子比特均被初始化为最大混态。与标准量子计算模型中要求所有量子比特均可被制备为高纯态不同，DQC1 在初态制备层面对量子资源的需求被显著压缩，从而在理论与实验两个层面均具有独特优势。

DQC1 通常被归类为一种亚通用量子计算模型，其计算能力严格弱于通用量子计算，但仍被认为无法被高效经典模拟。这一介于经典计算与通用量子计算之间的地位，使得 DQC1 在量子复杂性理论中占据着重要位置，并为探索受限量子模型的潜在应用提供了清晰的研究对象。此外，DQC1 对初态纯度和测量能力的低要求，使其在实际物理平台上更易于实现。在诸如核磁共振、自旋系综以及其他

系综量子信息处理体系中，制备大量高纯度量子比特通常具有较高实验成本，而 DQC1 模型则能够天然地适配这些平台的实验条件。因此，DQC1 不仅在理论上为理解量子计算资源提供了重要视角，也在实验上为在受限量子硬件上探索实用量子算法提供了切实可行的途径。

5.1.1 DQC1 模型的基本结构

DQC1 模型的线路如图 5-1 所示，线路的初态通常表示为

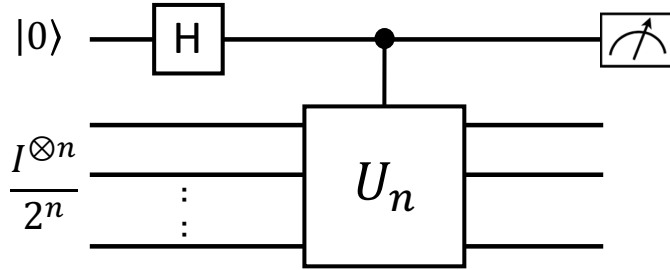


Figure 5-1 DQC1 线路示意图。该线路由一个纯态控制比特 c 和一个初始化为最大混合态 $I_n/2^n$ 的 n 比特寄存器组成。对控制比特施加 Hadamard 门后，执行受控- U_n 操作，其中 U_n 作用于 n 比特寄存器。通过重复运行该线路并在 Pauli $X(Y)$ 基上测量控制比特，可估计相应的期望值，从而得到归一化迹 $\text{Tr}(U_n)/2^n$ 的实部（虚部）。

$$\rho_{\text{in}} = |0\rangle\langle 0| \otimes \frac{\mathbb{I}_{2^n}}{2^n}, \quad (5-1)$$

其中第一个量子比特为控制比特（control qubit）用于探测，其余 n 个量子比特构成寄存器（register），并处于最大混态。需要指出的是，在更一般的情形下，控制比特也可以具有有限但非零的纯度，其初态可表示为

$$\rho_c = \frac{1}{2} (\mathbb{I} + \alpha \sigma_z), \quad 0 < \alpha \leq 1, \quad (5-2)$$

其中 α 表征探测比特的极化度。为简化表述，以下讨论中主要以纯态探测比特为例。

在计算过程中，首先对探测比特施加 Hadamard 门，随后在探测比特的控制下，对寄存器实施一个 n 比特么正算符 U ，即执行受控么正操作

$$C-U = |0\rangle\langle 0| \otimes \mathbb{I} + |1\rangle\langle 1| \otimes U. \quad (5-3)$$

整个演化过程可表示为

$$\rho_{\text{out}} = (C-U) [(H \otimes \mathbb{I}) \rho_{\text{in}} (H \otimes \mathbb{I})] (C-U)^\dagger. \quad (5-4)$$

该 $(n + 1)$ 比特的末态可表示为

$$\frac{1}{2N} \begin{pmatrix} \mathbb{I}_n & U_n^\dagger \\ U_n & \mathbb{I}_n \end{pmatrix}. \quad (5-5)$$

其中 $N = 2^n$ 。然后我们对寄存器进行偏迹操作，得到的控制比特 ρ_c 末态为

$$\rho_c^{\text{out}} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & \frac{\text{Tr}[U_n^\dagger]}{N} \\ \frac{\text{Tr}[U_n]}{N} & 1 \end{pmatrix}. \quad (5-6)$$

由此可以看出，探测比特的非对角元直接编码了么正算符 U 的归一化迹信息。进一步地，对探测比特进行 Pauli 测量，可以得到

$$\langle \sigma_x \rangle = \Re \left[\frac{\text{Tr}(U)}{2^n} \right], \quad (5-7)$$

$$\langle \sigma_y \rangle = \Im \left[\frac{\text{Tr}(U)}{2^n} \right]. \quad (5-8)$$

因此，DQC1 模型能够在多项式时间内高效估计任意 n 比特么正算符的归一化迹 $\text{Tr}(U)/2^n$ ，而这一任务目前尚无已知的高效经典算法。

5.2 基于 DQC1 的神经量子嵌入方案

设输入数据样本 \mathbf{x}_i 的类别标签为 $y_i \in \{+1, -1\}$ 。量子数据嵌入线路的设计目标在于：对于来自同一类别的数据点 ($y_i = y_j$)，其对应的量子态在量子特征空间中应尽可能相似；而对于来自不同类别的数据点 ($y_i \neq y_j$)，其对应的量子态应尽可能可区分。这一目标可以通过最大化不同类别数据在量子特征空间中的可区分性来实现。

具体而言，引入如下两个量子态

$$\rho_{\pm} = \frac{1}{m_{\pm}} \sum_i^{m_{\pm}} |\mathbf{x}_i\rangle\langle\mathbf{x}_i|, \quad (5-9)$$

其中 ρ_{\pm} 分别表示标签为 ± 1 的数据样本在量子特征空间中的态表示， m_{\pm} 为对应类别中的样本数量。在量子信息论中，上述分类目标等价于寻找一种量子特征映射，使得 ρ_+ 与 ρ_- 之间的迹距离 $\|\rho_+ - \rho_-\|_1/2$ 尽可能大。

基于这一思想，我们提出一种经典-量子混合的神经量子嵌入方法。具体做法

是利用经典神经网络来优化量子数据嵌入，其训练目标由如下损失函数给出：

$$L_{\text{NQE}} = \sum_{i,j} \left[\frac{1}{2^n} \text{Tr}(V(g_{\mathbf{x}_i})V^\dagger(g_{\mathbf{x}_j})) - \frac{1 + y_i y_j}{2} \right]^2. \quad (5-10)$$

其中 $g_{\mathbf{x}_i} = g(\mathbf{x}_i, \mathbf{w})$ 表示神经网络对输入数据 \mathbf{x}_i 的输出， \mathbf{w} 为可训练参数集合； V 为量子特征映射，其作用定义为

$$V(g_{\mathbf{x}}) |\psi\rangle = |\mathbf{x}\rangle,$$

即将经典数据映射为量子态 $|\mathbf{x}\rangle$ 。经由该量子嵌入后的量子态，可进一步作为输入送入量子神经网络或量子核方法（quantum kernel method）中，从而构建量子分类器。

损失函数式 (5-10) 中的第一项对应于两个 n 比特么正算符之间的 Hilbert–Schmidt (HS) 内积，用于刻画两个数据点在量子特征空间中的相似性。最小化该损失函数等价于学习一组参数 \mathbf{w} ，使得来自同一类别的数据点对应的 HS 内积尽可能大，而来自不同类别的数据点对应的 HS 内积尽可能小。这一度量也可从几何角度理解。记 Frobenius 范数为 $\|A\|_F = \sqrt{\text{Tr}(A^\dagger A)}$ ，则有

$$\|V(g_{\mathbf{x}_i}) - V(g_{\mathbf{x}_j})\|_F^2 = 2 \left\{ 2^n - \text{Re} \left[\text{Tr} \left(V(g_{\mathbf{x}_i}) V(g_{\mathbf{x}_j})^\dagger \right) \right] \right\}. \quad (5-11)$$

因此，最小化式 (5-10) 等价于在量子特征空间中拉大不同类别数据之间的距离，同时压缩同类数据的分布。

因此，整个问题可归结为：如何高效地计算损失函数中所包含的 Hilbert–Schmidt 内积。如前所述，DQC1 模型能够在多项式资源开销下高效估计该内积^[48]，从而成为实现该优化目标的关键工具。同时，量子特征映射 V 的参数由经典神经网络进行训练，使得该方案天然构成一个经典–量子混合优化框架。这一方法还克服了完全正且保迹映射（CPTP 映射）在量子信息论中的固有限制：任意 CPTP 映射 Λ 均满足 $\|\Lambda(\rho_+) - \Lambda(\rho_-)\|_1 \leq \|\rho_+ - \rho_-\|_1$ ，即无法增加量子态之间的迹距离^[219]。通过在量子态制备之前引入可训练的么正映射，我们的方案有效绕开了这一约束。为更清晰地阐明这一限制的物理内涵及其在量子监督学习中的普适性，下面将从量子二分类问题的一般理论框架出发，对经验风险的下界及其与量子态迹距离之间的关系进行系统分析。

在量子监督学习中，学习任务的核心目标是构造一个预测函数 f ，使其在给定的损失函数 l 下的真实风险 $R(f) = \mathbb{E}[l(f(X), Y)]$ 最小，其中随机变量 X, Y 服从未知

的数据分布。在实际情形中，仅能获得有限数量的训练样本 $\{(x_i, y_i)\}_{i=1}^N$ ，因此学习算法通常通过最小化经验风险 $R_N(f) = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N l(f(x_i), y_i)$ 来近似求解最优预测函数。为了在有限样本条件下获得良好的泛化性能，模型既需要具备足够的表达能力以刻画数据结构，又需避免过拟合。

在量子监督学习框架中，预测函数通常由量子设备实现。以量子神经网络 (QNN) 为例，经典数据 x 首先通过量子嵌入线路 Φ 被编码为量子态 $|x\rangle = \Phi(x)|0\rangle^{\otimes n}$ ，然后，应用参数化的酉算符 $U(\theta)$ 来变换量子态，最后用可观测物理量 O 进行测量。测量结果即为预测函数 $f(x; \theta) = \langle x| U^\dagger(\theta) O U(\theta) |x\rangle$ 。利用梯度下降或类似的优化方法，确定最优参数 θ^* 以最小化经验风险。在输入 $x \in \mathbb{R}^m$ 且标签 $y \in -1, 1$ 的二元分类任务中，新数据点 x_{new} 的标签通过决策规则 $y_{\text{new}} = \text{sign}[f(x_{\text{new}}; \theta^*)]$ 进行预测。

该过程也可视为量子态判别问题，其中定义了两个参数化的正算子值测度 (POVM) $E_\pm(\theta) = (I \pm U^\dagger(\theta) O U(\theta))/2$ 。对于给定的输入 x ，测量结果为 ± 1 的概率计算为 $P(E_\pm(\theta)|x) = \langle x| E_\pm(\theta) |x\rangle$ 。决策规则则变为 $y_{\text{new}} = \text{sign}[P(E_+(\theta)|x_{\text{new}}) - P(E_-(\theta)|x_{\text{new}})]$ 。在这种情况下，误分类概率 $l(f(x; \theta), y) = P(E_{-y}(\theta)|x)$ 自然而然地成为一个合适的损失函数。给定一个数据集 S ，其中包含 N^- 个标签为 -1 的样本和 N^+ 个标签为 1 的样本，经验风险可表示为：

$$\begin{aligned} L_S &= \frac{1}{N} \left[\sum_{i=1}^{N^-} P(E_+(\theta)|x_i^-) + \sum_{i=1}^{N^+} P(E_-(\theta)|x_i^+) \right] \\ &\geq \frac{1}{2} - D_{\text{tr}}(p^- \rho^-, p^+ \rho^+), \end{aligned} \quad (5-12)$$

其中 $\rho^\pm = \sum |x_i^\pm\rangle \langle x_i^\pm| / N^\pm$ ， $p^\pm = N^\pm / N$ ， $D_{\text{tr}}(\cdot, \cdot)$ 表示迹距离^[220]。对于任意正且保迹 (PTP) 映射 Λ ，迹距离满足压缩性质：

$$D_{\text{tr}}(\Lambda(\rho_0), \Lambda(\rho_1)) \leq D_{\text{tr}}(\rho_0, \rho_1), \quad (5-13)$$

这一性质意味着，在量子嵌入完成之后，无论施加何种参数化么正演化或测量结构，只要整体过程属于 CPTP 映射范畴，都无法进一步增大量子态之间的迹距离。因此，经验风险的最小可能值仅由量子嵌入阶段所生成的量子态集合决定，而与后续可训练量子线路的具体结构无关。经验风险达到理论最小值的情形，对应于 POVM $\{E_-(\theta), E_+(\theta)\}$ 实现了区分两类量子态集合的最优 Helstrom 测量。

上述分析揭示了一个根本性限制：在 NISQ 条件下，若量子嵌入本身未能在量

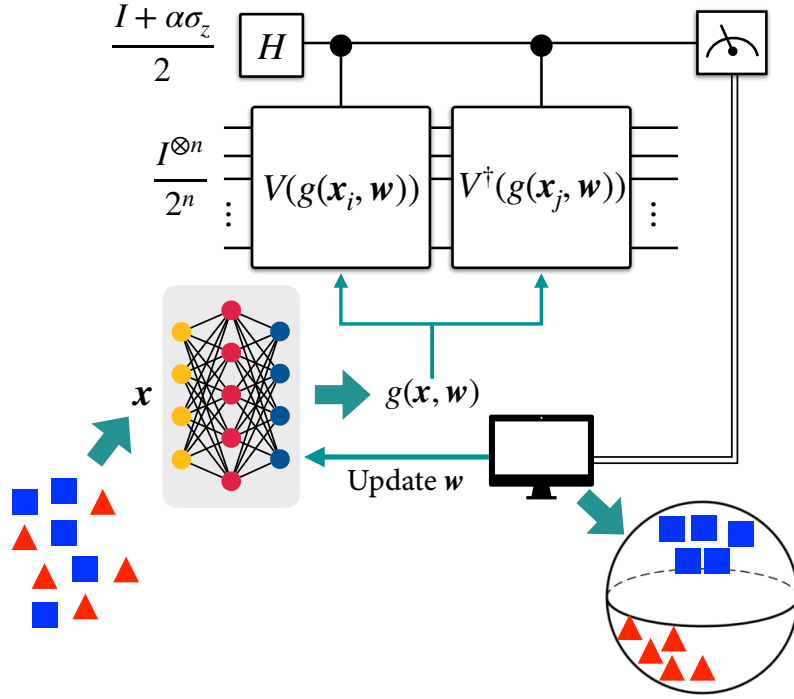


Figure 5-2 基于 DQC1 的神经量子嵌入示意图，展示了用于分类任务中识别最优量子特征映射的过程。具有不同标签的数据点分别用方形和三角形表示。（引自文献^[221]）

子特征空间中有效拉开不同类别数据对应量子态之间的迹距离，则单纯依赖后续可训练的量子演化或测量结构，在原则上无法显著降低分类误差。尽管已有研究尝试通过引入可训练量子嵌入来增强数据可分性，但此类方法通常需要更深的量子线路，从而放大噪声影响，并可能遭遇 barren plateau 等可扩展性问题；更重要的是，由于整体演化仍受限于 CPTP 映射的收缩性，其在提升量子态迹距离方面存在不可突破的理论上界。

需要强调的是，我们提出的 NQE-DQC1 方法并非试图在 CPTP 映射框架内突破迹距离的收缩性定理，而是通过在量子态制备之前引入由经典神经网络控制的可训练幺正映射，从而绕开该定理的适用前提。借助 DQC1 模型对 Hilbert–Schmidt 内积的高效估计能力，本方案得以在极低量子资源条件下，对量子特征映射进行有效优化，从而提升量子特征空间中数据的可分性。

NQE-DQC1 方案的整体示意如图 5-2 所示。在后续内容中，我们将展示该方案在 NMR 量子处理器上的原理性实验实现。尽管 DQC1 方案涉及受控- V 操作，但这些操作可被高效分解为单比特旋转与两比特相互作用。NMR 平台凭借其高精度量子控制能力以及脉冲优化技术，能够稳定实现此类复杂门序列。此外，NMR 量子比特天然处于混态的物理特性，与 DQC1 模型中“单个纯态探测比特 + 最大混

态寄存器”的结构高度匹配，使其成为实现 NQE-DQC1 方案的理想实验平台。

5.3 实验验证与分类结果

本节在 NMR 平台上对 NQE-DQC1 方案进行原理性实验验证，并系统评估其在二分类任务中的性能表现。

5.3.1 实验平台与初始化

实验在室温条件下于 Bruker 300 MHz 核磁谱仪上完成。实验样品为溶解于 d_6 -丙酮中的 ^{13}C 标记反式巴豆酸，其中四个 ^{13}C 核自旋构成一个四比特量子处理器^[122;145-147]。样品的分子结构如图 5-3(a) 所示，其中相关实验内容介绍见第二章。

该四自旋体系在旋转坐标系下由如下内部哈密顿量描述：

$$\mathcal{H}_{\text{NMR}} = - \sum_i \frac{\omega_i}{2} \sigma_z^i + \sum_{i,j} \frac{\pi J_{ij}}{2} \sigma_z^i \sigma_z^j, \quad (5-14)$$

其中 $\omega_i/2\pi$ 为第 i 个自旋的拉莫尔频率， J_{ij} 表示第 i 与第 j 个自旋之间的标量耦合强度。具体的谱学参数（化学位移与耦合常数）见图 3-13。

(i) 初始化 (Initialization) . 首先，利用空间平均 (spatial averaging) 方法将热平衡态制备为赝纯态 $|0000\rangle$ ^[110]。随后，对每个编码比特依次施加一个时长约 2 ms 的 $R_y(\pi/2)$ 脉冲（绕 y 轴的 $\pi/2$ 旋转）以及一个时长约 1 ms 的 z 向梯度场脉冲。该操作的效果是将编码寄存器制备为最大混态，同时保持探测比特处于 $|0\rangle$ ，从而将系统初始化为

$$\rho_0 = |0\rangle\langle 0| \otimes \frac{I}{2^n}, \quad (5-15)$$

其中 I 为 8×8 的单位矩阵，且此处编码比特数为 $n = 3$ 。

实验中使用的 NQE-DQC1 线路如图 5-3(a) 所示，其中 C_1 作为探测 (probe) 比特，其余三个自旋作为编码 (encoding) 比特。整体实验流程可分为三个阶段：初始化、NQE 训练以及测量与优化。

(ii) NQE 训练 (NQE training) . 本实验使用的数据来自 MNIST 手写数字数据集集中的“0”与“1”两类图像^[222]，共选取 500 张图像作为数据池。在每一次训练迭代中，随机抽取十对图像构成训练批次；每一对图像可能来自同一类别，也可能来自不同类别。随后，提取每张图像的灰度信息并进行主成分分析 (PCA) 预处理。需要说明的是，PCA 并非该方案的必要步骤：在原则上，NQE 的训练过程本

身即可吸收一定的“降维”作用^[209]。但为了降低经典神经网络的训练参数量并提高训练效率，我们在实现量子线路之前对图像先进行经典 PCA 处理。

经 PCA 后，每对图像被表示为两个 1×5 的实向量（例如 \mathbf{x}_1 与 \mathbf{x}_2 ）。随后，每个向量 \mathbf{x} 通过非线性映射被编码到编码比特上，对应的量子态写为

$$|\mathbf{x}\rangle = V(g_{\mathbf{x}}) |0\rangle, \quad (5-16)$$

其中 $g_{\mathbf{x}}$ 为经典神经网络对输入 \mathbf{x} 的输出， V 为量子特征映射。本实验中选用 ZZ 特征映射（ZZ-feature map）^[199]，其形式为

$$V(\boldsymbol{\phi}) = \left\{ \exp \left[i \sum_k \boldsymbol{\phi}_k Z_k + \boldsymbol{\phi}_{n+k} Z_k Z_{k+1} \right] H^{\otimes n} \right\}^M, \quad (5-17)$$

其中 H 为 Hadamard 门， Z_k 表示作用在第 k 个自旋上的 Pauli-z 算符， $\boldsymbol{\phi}_k$ 为向量 $\boldsymbol{\phi}$ 的第 k 个分量， M 为层数（本实验取 $M = 1$ ）。尽管本实现采用 ZZ-feature map，NQE 框架本身与具体嵌入方式无关，原则上可与多种量子数据嵌入方案结合，例如振幅编码、角度编码以及基于哈密顿量的嵌入方法等。

按照 DQC1 模型的要求，上述特征映射的实现需要依赖探测比特 C_1 的状态。以 ρ_0 为起点，实验中施加如下门序列（从右至左作用）：

$$\mathcal{U} = H_1 \mathcal{V}_c^\dagger(g_{\mathbf{x}_2}) \mathcal{V}_c(g_{\mathbf{x}_1}) H_1, \quad (5-18)$$

其中 H_1 表示施加在 C_1 上的 Hadamard 门， $\mathcal{V}_c(g_{\mathbf{x}}) = |0\rangle\langle 0| \otimes I + |1\rangle\langle 1| \otimes V(g_{\mathbf{x}})$ 为由 C_1 控制的特征映射（controlled feature map）。对应的量子线路如图 5-3(a) 所示。

(iii) 测量与优化 (Measurement and optimization) . 在该实验中，仅需沿探测比特的 z 方向测量即可获得所需信息。具体地，探测比特的期望值满足

$$\langle \sigma_z \rangle = \frac{\Re\{\text{Tr}[V(g_{\mathbf{x}_1})V^\dagger(g_{\mathbf{x}_2})]\}}{2^n}, \quad (5-19)$$

因此一次实验测量即可为损失函数中的 Hilbert–Schmidt 内积项提供估计值。将实验结果代入式 (5-10) 可计算得到损失 L_{NQE} 。随后，依据十对图像数据得到的平均损失计算梯度 ∇L_{NQE} ，并对神经网络 g 的参数进行更新以最小化损失。在下一次迭代中，重新随机选取十对图像并重复上述流程，从而逐步优化神经网络并学习到更适合分类任务的量子特征映射。

5.3.2 NQE-DQC1 训练过程与效果

在本实验中，我们基于 DQC1 线路共执行了 15 次 NQE 训练迭代。随着迭代次数的增加，训练损失函数 L_{NQE} 持续下降，其变化趋势如图 5-3(b) 所示。其中，三角形标记对应 NMR 量子处理器给出的实验结果，实线为数值模拟结果。可以看到， L_{NQE} 在约第 10 次迭代附近已收敛到接近零的水平。与此同时，实验曲线与模拟曲线在整个训练过程中保持良好一致性，表明本实验具备较高的量子控制精度与稳定性。

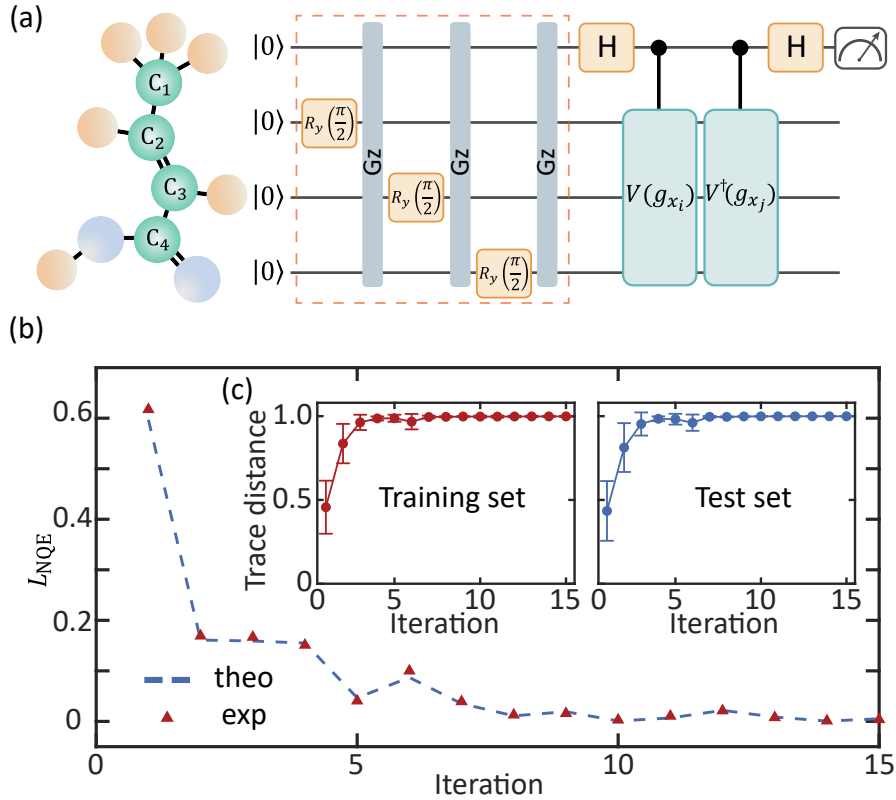


Figure 5-3 (a) 用于 NQE-DQC1 训练的实验量子线路示意图。实验平台为由四个碳核自旋构成的四比特 NMR 量子处理器。红色虚线框内的操作用于将系统初始化为 $|0\rangle\langle 0| \otimes I/2^n$ (其中 $n = 3$)。灰色条表示一个 1 ms 的 z 轴方向梯度脉冲，用于消除相干项。幺正算符 V 与 V^\dagger 由神经网络 g 的输出确定，其中 x_i 作为图像数据输入， w 表示可训练参数。 H 表示 Hadamard 门，测量仅施加在探测比特上。(b) 给出了训练损失的演化曲线：实线与三角形分别表示在 10 对图像数据上训练损失的数值模拟均值与实验测量均值。(c) 采用迹距离作为衡量不同类别图像可区分性的指标。每次迭代后都分别从训练集与测试集中随机选取 20 对图像样本。实心圆点表示迹距离的平均值，误差棒表示标准差。(引自文献^[221])

为进一步评估 NQE 的嵌入效果，我们考察量子态迹距离 (trace distance) 在训练迭代中的演化。具体而言，分别从训练集与测试集中随机抽取 20 对图像样本，每一对由两类数据 (“0” 与 “1”) 各取一张组成。理想情况下，经过 NQE 优化后，

来自不同类别的两态应尽可能可区分，从而使每一对样本对应量子态之间的迹距离趋近于 1。

我们在每一次迭代后随即选取了 20 对样本计算迹距离，并统计其均值与标准差。如图 5-3(c) 所示，实心圆点表示 20 对样本迹距离的平均值，误差棒表示标准差。无论是在训练集还是测试集上，迹距离均随着迭代推进呈现逐步增大的趋势，说明 NQE 训练显著提升了嵌入数据在量子特征空间中的可分性。该结果从实验层面验证了 NQE-DQC1 在二分类任务中增强类别可区分性的有效性。

我们进一步探索了不同的线路结构选择对 NQE 嵌入效果的影响。对于前面展示的结果，我们使用的 ZZ 特征映射灵感来源于哈密顿动力学。一般来说，该 ansatz 可以写成 $V(\phi) = \left[\exp \left(i \sum_k \phi_k Z_k + i \sum_{k,l} \phi_{k,l} Z_k Z_l \right) H^{\otimes n} \right]^M$ ，利用恒等式 $HZH = X$ ，可以看出上述线路等价于一个含有 X 与 Z 项的有效哈密顿量在一阶 Trotter 展开下所生成的时间演化过程，即

$$H_{XZ} = \sum_k \alpha_k (X_k + Z_k) + \sum_{k,l} \beta_{k,l} (X_k X_l + Z_k Z_l).$$

从这一哈密顿量视角出发，我们进一步考察了由不同泡利算符组合所构造的多种替代性 ansatz，并系统分析其对 NQE 性能的影响。具体而言，除主文中采用的 H_{XZ} （即 ZZ 特征映射）外，我们还测试了三种受不同相互作用形式启发的编码线路，分别对应于 H_{XY} 、 H_{YZ} 以及 H_{XYZ} 哈密顿量。上述编码线路在结构上均保持与式 (5-17) 一致，即由若干层单比特与两比特门构成，并具有相同的比特连通方式。其显式形式分别为：

$$V_{XY}(\phi) = \left\{ \exp \left[i \sum_k \phi_k Y_k + \phi_{n+k} Y_k Y_{k+1} \right] \exp \left[i \sum_k \phi_k X_k + \phi_{n+k} X_k X_{k+1} \right] \right\}^{M/2}, \quad (5-20)$$

$$V_{YZ}(\phi) = \left\{ \exp \left[i \sum_k \phi_k Z_k + \phi_{n+k} Z_k Z_{k+1} \right] \exp \left[i \sum_k \phi_k Y_k + \phi_{n+k} Y_k Y_{k+1} \right] \right\}^{M/2}, \quad (5-21)$$

$$V_{XYZ}(\phi) = \left\{ \exp \left[i \sum_k \phi_k Z_k + \phi_{n+k} Z_k Z_{k+1} \right] \exp \left[i \sum_k \phi_k Y_k + \phi_{n+k} Y_k Y_{k+1} \right] \right\}^{M/2} \times \exp \left[i \sum_k \phi_k X_k + \phi_{n+k} X_k X_{k+1} \right] \quad (5-22)$$

为保证比较的一致性，所有 ansatz 的线路深度均固定为 $M = 4$ 。

随后，我们分别在 MNIST 与 Fashion-MNIST 数据集上，使用上述不同 ansatz 对 NQE-DQC1 方案进行了训练。对应的训练结果如图 5-4 所示。可以看到，对于不同的 ansatz-数据集组合，训练过程均表现出稳定的收敛行为：随着训练迭代次数的增加，NQE 损失函数持续下降，而不同类别数据在量子特征空间中的迹距离则稳步增大。

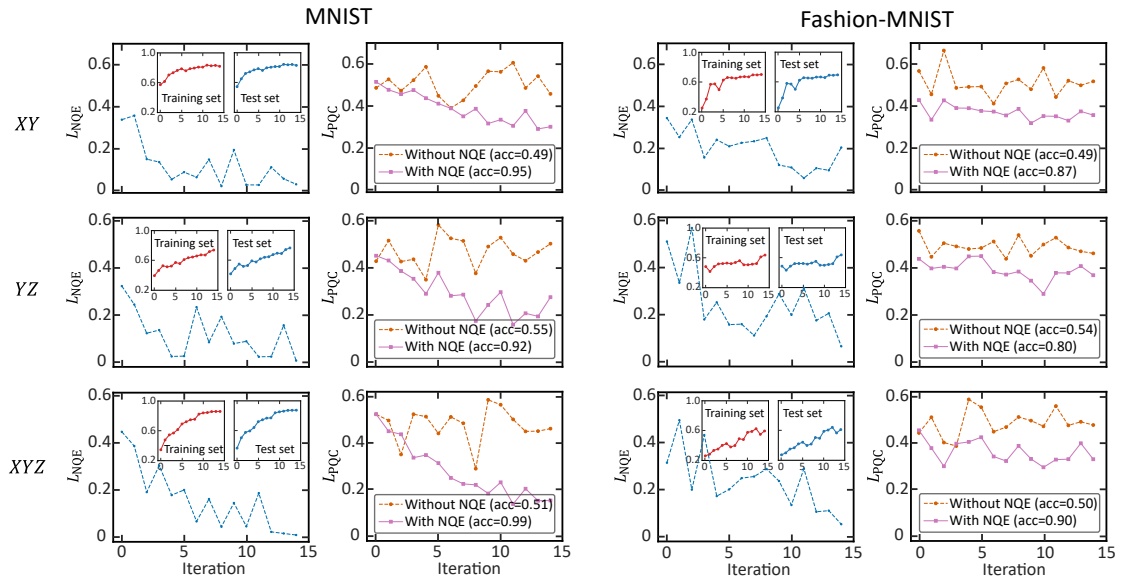


Figure 5-4 在 MNIST 与 Fashion-MNIST 数据集上，采用三种不同量子特征映射 (H_{XY} 、 H_{YZ} 和 H_{XYZ}) 时的 NQE-DQC1 训练结果。结果表明，在不同线路结构 (ansatz) 选择下，训练过程均表现出一致且稳定的收敛行为。

上述结果表明，尽管具体的 ansatz 选择会对嵌入效果产生一定影响，但 NQE-DQC1 框架在不同基于哈密顿动力学构造的量子特征映射下均保持良好的稳定性与有效性。这不仅验证了所提出方法对 ansatz 选择的鲁棒性，也进一步说明 NQE 作为一种通用量子数据嵌入策略，具有较强的灵活性与可推广性。

5.3.3 参数化量子线路的训练与优化

为进一步验证 NQE 在量子机器学习任务中的有效性，我们训练了一个参数化量子线路（parameterized quantum circuit, PQC），并将其应用于具体的分类任务中。PQC 的线路结构如图 5-5(a) 所示，整体可分为两个部分：第一部分用于将经典数据嵌入到量子态中，第二部分则通过训练参数化量子线路，实现对数据的高效分类。针对手写数字“0”与“1”的二分类任务，我们采用了一个双层 PQC 结构，其中包含四个可调参数 θ 以及两个 CNOT 门，并在第三个量子比特上测量 $\langle \sigma_z \rangle$ 作为分类输出。PQC 的训练过程基于标准的参数位移规则（parameter-shift rule）^[223-226]，以实现线路参数的梯度估计。

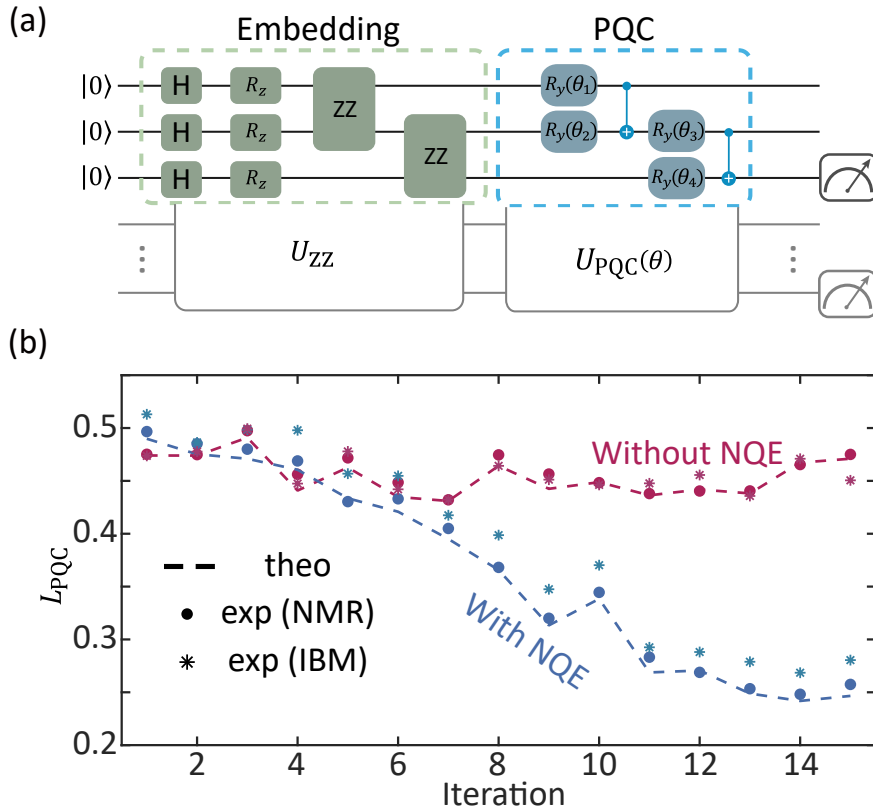


Figure 5-5 (a) 用于分类任务的量子线路。经典图像首先通过 NQE 编码为量子态，随后输入至 PQC 分类器进行处理。该 PQC 由两层结构组成，包含四个可调参数 θ 以及两个 CNOT 门，并在第三个自旋上测量 $\langle \sigma_z \rangle$ 作为分类输出。(b) PQC 的优化结果。图中展示了 PQC 的优化过程，其中虚线、圆点和星号分别对应于数值模拟、NMR 实验以及 IBM 平台实验中得到的损失函数 L_{PQC} 。红色与蓝色曲线分别表示采用传统 ZZ 特征嵌入（未引入 NQE）和引入 NQE 编码情况下的结果。（引自文献^[221]）

我们将传统的 ZZ 特征映射嵌入方案（未引入 NQE）^[199] 与本文提出的 NQE-DQC1 方案在分类性能上的表现进行了对比。具体而言，通过在每一次训练迭代中

计算 PQC 的损失函数

$$L_{\text{PQC}} = \frac{1}{m} \sum_i \frac{1}{2} (1 - f_i \times y_i), \quad (5-23)$$

来评估分类性能。其中， f_i 表示实验中在第三个量子比特上测得的 $\langle \sigma_z \rangle$ 值， y_i 为对应图像的类别标签（数字“0”对应 $y = -1$ ，数字“1”对应 $y = +1$ ）。在每一次迭代中，我们随机选取 $m = 10$ 张图像构成一个训练批次，并据此计算损失函数 L_{PQC} 。

实验结果如图 5-5(b) 所示。其中，蓝色与红色曲线分别表示在引入 NQE 和未引入 NQE 的情况下，数值模拟得到的损失函数演化；实心圆点则对应于 NMR 实验平台上获得的实验结果。可以清楚地看到，在引入 NQE 的情形下， L_{PQC} 随着训练迭代显著下降，表明分类性能得到了有效提升。相比之下，采用传统 ZZ 特征映射、未引入 NQE 的 PQC 训练过程仅表现出极为有限的性能改进。这一对比结果直观地突显了 NQE 方案在提升量子分类任务性能方面的有效性。此外，我们还探索了在 PQC 训练过程中同步优化嵌入网络 $V(g_{\mathbf{x}})$ 的情形。

为此，我们开展了额外的实验，在其中同时对嵌入网络 $V = g(\mathbf{x}, \mathbf{w})$ 与参数化量子线路（PQC）进行训练。与标准的端到端训练方式（即从训练初始阶段起同时联合优化嵌入网络与 PQC 参数）不同，我们采用了一种分阶段的训练策略：首先对嵌入网络 V 进行预训练，直至其收敛；随后，在 PQC 训练阶段重新引入 V ，并将其作为可训练模块参与优化。该渐进式训练方式有助于提升训练过程的稳定性，并进一步改善最终性能。

在本工作的主要实验实现中，嵌入网络仅在训练数据集上进行预训练，并在后续 PQC 训练过程中保持固定不变。这种模块化的训练策略使得量子嵌入可以在一个物理平台（例如 NMR 系统）上完成训练，并随后迁移至另一种量子处理器（例如超导量子芯片）上使用，从而赋予该方案良好的跨平台灵活性。

在扩展配置中，我们允许嵌入网络与 PQC 参数在训练过程中同步更新。具体而言，在每一次训练迭代中，嵌入网络的输出首先用于将输入数据编码为量子态，随后通过 PQC 进行测量，测得的损失函数值作为代价函数，反向更新 PQC 参数以及嵌入网络的参数。这种经典-量子混合的反馈回路使得量子嵌入能够在训练过程中动态地适应 PQC 的演化，从而提升整体表达能力。

该联合训练方案的实验结果如图 5-6 所示。其中，灰色虚线表示联合优化条件下的数值模拟结果，灰色圆点对应于在 NMR 平台上获得的实验结果。与嵌入网络保持固定的情形（蓝色曲线与圆点）相比，联合训练的嵌入网络能够获得更低的

PQC 损失值, 表明该策略在提升模型表达能力和分类性能方面具有明显优势。

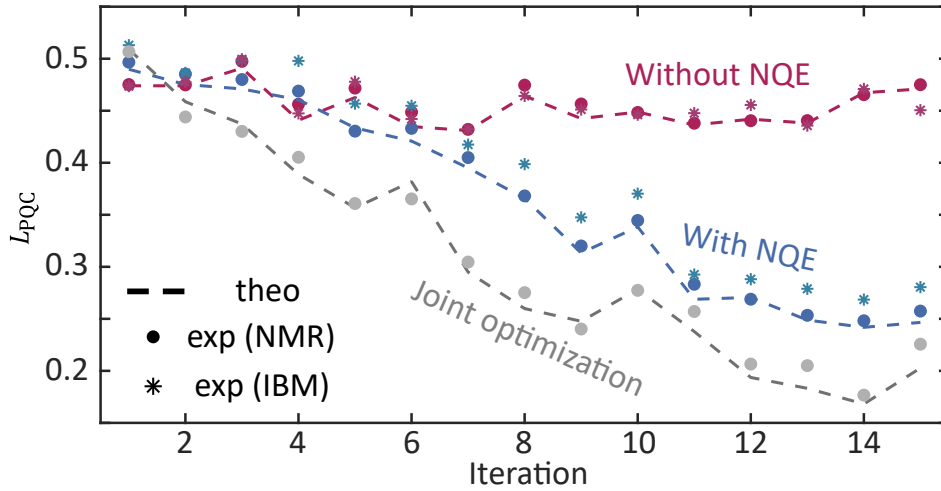


Figure 5-6 PQC 的优化结果。图中展示了参数化量子线路 (PQC) 的优化过程, 其中虚线、圆点和星号分别对应于数值模拟结果、NMR 实验结果以及 IBM 超导量子处理器上的实验结果, 纵轴为损失函数 L_{PQC} 。红色与蓝色分别表示采用传统 ZZ 特征嵌入 (不使用 NQE) 以及引入 NQE 编码时得到的结果。灰色虚线与灰色圆点对应于在 PQC 训练过程中对嵌入网络与 PQC 参数进行联合优化时的结果。(引自文献 [221])

在完成 NMR 平台上的 PQC 优化过程之后, 我们进一步探索了在完成 NQE 训练后, 将后续量子机器学习任务迁移至其他物理平台执行的可能性。具体而言, 我们利用 NQE 训练阶段得到的神经网络模型, 将其直接迁移并应用于其他量子处理器上的分类任务, 从而验证 NQE-DQC1 方案在实际应用层面的可扩展性。DQC1 模型本身是为系综量子系统量身设计的, 使得 NMR 等平台天然适合其实现。然而, 一旦神经网络完成训练, 后续的分类任务并不局限于系综平台, 也可以在其他类型的量子处理器上执行。作为对比, 我们在 IBM 云端超导量子处理器上对 PQC 进行了训练, 其对应结果同样展示在图 5-5(b) 中。其中, 红色与蓝色星形标记分别表示在未引入和引入 NQE 嵌入时 IBM 实验平台上的结果。尽管其整体性能略低于 NMR 实验, 但实验趋势与数值模拟结果保持一致, 进一步验证了 NQE-DQC1 方案在不同物理平台上的可扩展性。

5.3.4 分类性能评估

在完成 PQC 训练后, 我们进一步评估了其预测准确率。具体而言, 从训练集与测试集中各随机选取 8 张图像, 并在通过 NQE 编码后输入至训练完成的 PQC 线路中。通过测量第三个量子比特的 $\langle \sigma_z \rangle$ 值来给出分类结果, 其对应实验结果如

图 5-7(a) 所示。在理想情况下, $\langle\sigma_z\rangle$ 为负值 (对应红色柱或向下的 NMR 谱峰) 表示数字 “0”, 而 $\langle\sigma_z\rangle$ 为正值 (对应绿色柱或向上的谱峰) 表示数字 “1”。可以看到, 在训练集与测试集上, 引入 NQE 编码后, $\langle\sigma_z\rangle$ 的数值更加集中且符号区分更加清晰, 从而显著提升了分类的可靠性。相较之下, 在未引入 NQE 的情况下, 分类错误较为明显, 例如训练集中第五张图像和测试集中第七张图像均出现了误判。

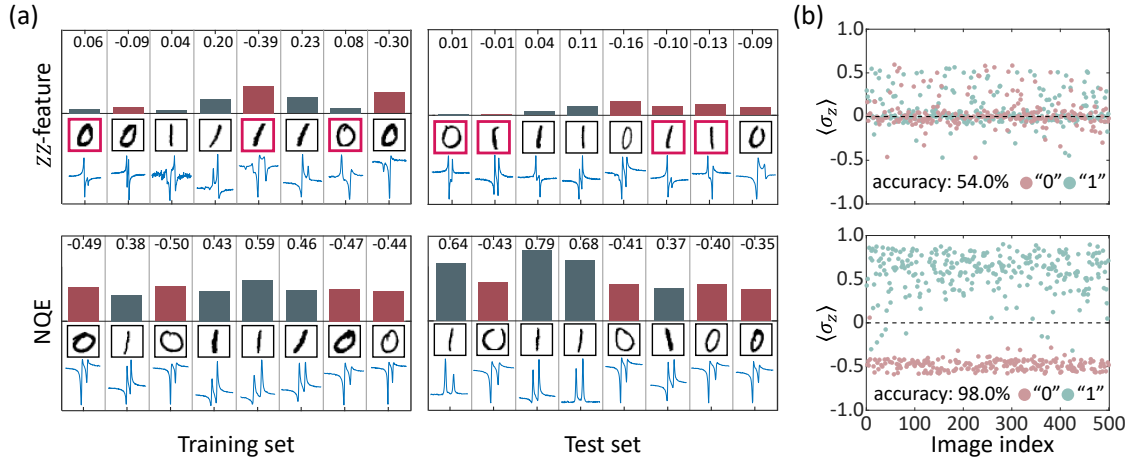


Figure 5-7 经 PQC 线路处理后的实验分类结果, 对比了 ZZ 特征嵌入与 NQE 编码两种情形。(a) 上、下两个面板分别对应采用 ZZ 特征嵌入和 NQE 编码时的分类结果。图中给出了实验测得的 $\langle\sigma_z\rangle$ 数值, 其对应的彩色柱状条高度用于直观展示 (红色表示负值, 绿色表示正值)。同时, NMR 谱峰作为辅助可视化指标: 向下的谱峰对应数字 “0”, 向上的谱峰对应数字 “1”。以红色边框标出的手写图像表示被错误分类的样本。结果清楚地表明, 引入 NQE 编码后, 分类准确率得到了显著提升。(b) 对全部 500 张图像的分类结果统计, 其中虚线表示分类判别边界。可以看到, 分类准确率从未使用 NQE 时的 54.0% (与随机猜测相当) 提升至使用 NQE 编码后的 98.0%。(引自文献 [221])

为进一步系统性评估分类性能, 我们统计了整个包含 500 张图像的数据集上的分类结果, 如图 5-7(b) 所示。在引入 NQE 的情况下, 分类准确率达到 98.0%, 成功识别了 500 张图像中的 490 张; 而采用传统 ZZ 特征映射的方案仅取得了 54.0% 的分类准确率, 仅正确分类了 270 张图像, 其性能几乎等同于随机猜测。上述结果充分表明, NQE-DQC1 方案在量子分类任务中能够显著提升数据的可分性与分类准确率。

我们还针对其他数据集的做了一些额外实验来验证 NQE 方案的有效性。我们选取了 Fashion-MNIST 数据集 [227] 以及卫星图像数据集作为补充测试对象。首先, 在数值模拟中对 NQE 训练过程进行实现, 并在模拟中引入与 NMR 实验相一致的噪声条件, 以优化神经网络参数 \mathbf{w} 。在完成嵌入网络的训练后, 进一步开展参数化量子线路 (PQC) 的训练。PQC 的训练分别在一台 127 比特的 IBM Eagle 架构超

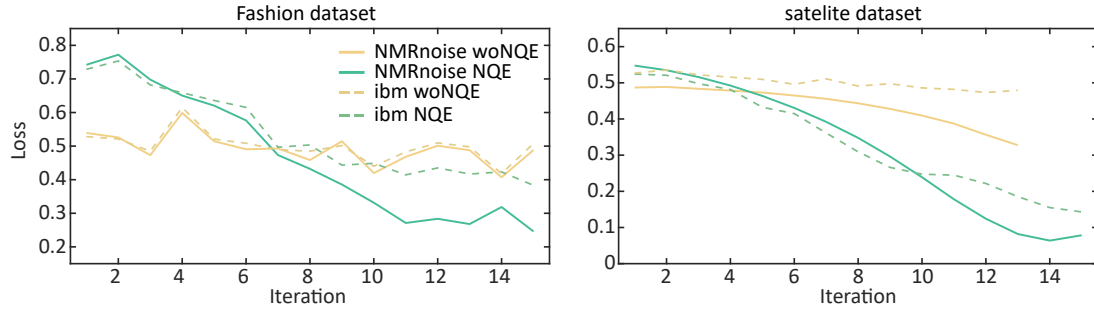


Figure 5-8 Fashion-MNIST (左) 与卫星图像数据集 (右) 上参数化量子线路 (PQC) 的优化结果。图中展示了 PQC 训练过程中损失函数 L_{PQC} 的变化情况, 其中实线、圆点和虚线分别对应数值模拟、包含 NMR 噪声的数值实验以及 IBM 实验平台上的结果。黄色与绿色曲线分别表示采用传统 ZZ 特征嵌入 (未引入 NQE) 和引入 NQE 编码时的训练结果。

导量子处理器 (*ibm_yonsei*) 上以及包含 NMR 噪声模型的数值模拟中进行。针对每一种数据集, 我们分别在引入 NQE 嵌入和未引入 NQE 的两种情况下, 对 PQC 的训练过程及其在测试集上的分类性能进行了系统对比。相应的实验与模拟结果如图 5-8 所示。

接下来我们进一步考察了联合训练策略下的分类性能, 即允许量子嵌入网络与参数化量子线路 (PQC) 的参数在训练过程中同步更新。为验证该策略对数据可分性的影响, 我们在每一次训练迭代中计算了两类图像对应量子态之间的迹距离。结果表明, 随着训练的推进, 迹距离始终稳定地趋近于 1, 这清晰地表明不同类别的数据在量子特征空间中的可区分性得到了显著增强 (见图 5-9)。此外, 基于最终经联合训练得到的嵌入网络与 PQC, 我们对整个包含 500 张图像的数据集进行了分类测试, 最终获得了 98% 的分类准确率。该结果与采用固定嵌入时的性能基本相当, 其提升幅度有限主要源于二分类任务本身的简单性, 使得进一步性能提升的空间较为有限。

尽管联合训练策略在性能上具有一定优势, 但其同时引入了额外的实验与计算开销。具体而言, 可训练参数的数量显著增加, 嵌入网络需要在训练过程中被频繁更新; 与此同时, 该策略也削弱了方案的跨平台灵活性, 即嵌入网络与 PQC 无法再分别部署于不同的量子硬件平台上独立执行。

总体而言, 这一系列补充实验表明, 对量子嵌入 V 与参数化量子线路 (PQC) 进行同步优化在实验上是可行的, 并且能够在一定程度上进一步提升分类性能; 同时, 这些结果也清晰地揭示了性能提升与实验复杂度、系统灵活性之间所存在的

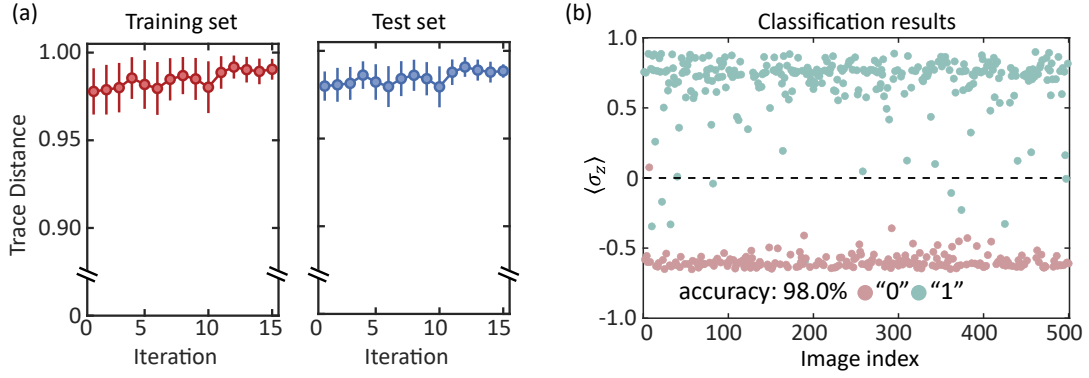


Figure 5-9 (a) 在嵌入网络与参数化量子线路 (PQC) 进行联合优化的过程中, 采用迹距离作为衡量两类图像可区分性的指标。从训练集与测试集中随机选取 20 对图像样本, 在每一次训练迭代中, 利用与 PQC 同步更新的量子嵌入 V 计算对应量子态之间的迹距离。图中实心圆点表示 20 对样本迹距离的平均值, 误差棒表示标准差。可以看出, 在整个训练过程中, 迹距离始终稳定地保持在接近 1 的水平, 表明不同类别在量子特征空间中具有很强的可分性。(b) 对包含全部 500 张图像的数据集进行的分类结果, 其中虚线表示分类决策边界。在联合优化策略下, 最终分类准确率达到 98.0%。

现实权衡关系。

5.4 本章小结

本章围绕 DQC1 模型所蕴含的非纠缠型非经典关联资源, 提出并实验验证了一种面向经典数据的神经量子嵌入方案 (NQE-DQC1)。与前几章聚焦于时间维度上的非经典关联不同, 本章进一步展示了: 即便在几乎不依赖多体纠缠、且初态资源极度受限的计算模型中, 仍可以通过适当的方案设计与训练策略, 将“非经典量子关联”(如量子失谐所刻画的相关性) 转化为可服务于量子信息处理任务的有效资源。

在方法层面, 我们提出的 NQE 训练目标是增强不同类别数据在量子特征空间中的可分性。具体而言, 通过经典神经网络生成量子特征映射的参数, 并以 Hilbert-Schmidt (HS) 内积为核心量度构造损失函数, 使得同类数据对应的量子表示趋于相似、异类数据对应的量子表示趋于可区分, 从而间接推动两类数据集态 ρ_+ 与 ρ_- 的迹距离增大。该策略的关键在于: DQC1 能够在极低纯态资源条件下高效估计归一化迹与 HS 内积, 从而为 NQE 的迭代训练提供可扩展的实验实现路径; 同时, 通过在量子态制备之前引入可训练的么正映射, 本方案在实践上有效绕开了 CPTP 映射对迹距离的收缩性限制, 使量子嵌入真正承担起“拉开类别间距”的主

要功能，从而降低后续分类器的训练难度。

在实验实现方面，我们在四比特 NMR 量子处理器上完成了 NQE-DQC1 的原理性验证。针对 MNIST 手写数字“0”/“1”的二分类任务，我们利用 DQC1 线路对嵌入网络进行迭代训练，实验结果表明训练损失在约第 10 次迭代后收敛，并且迹距离指标随训练显著提升，验证了 NQE 对数据可分性的增强作用。进一步地，我们在训练完成的嵌入基础上实现参数化量子线路（PQC）分类任务，实验显示：采用 NQE 编码后分类准确率达到 98.0%，显著优于传统 ZZ 特征映射在相同实验设置下仅约 54.0% 的结果。该对比清晰表明，NQE 在量子特征空间中对经典数据结构的重塑能够有效提升下游量子分类性能。

此外，本章还从两个方向进一步讨论了方案的鲁棒性与可推广性。其一，我们系统比较了多种受哈密顿量动力学启发的特征映射 ansatz（包括 H_{XY} 、 H_{YZ} 与 H_{XYZ} ），结果显示 NQE-DQC1 在不同线路结构下均能稳定收敛，体现出对 ansatz 选择的鲁棒性与框架层面的通用性。其二，我们展示了 NQE 的跨平台可迁移性：一旦嵌入网络在系综平台（如 NMR）上完成训练，后续 QML 任务可在其他物理系统上执行；我们在 IBM 云端超导处理器上实现了与数值模拟一致的分类趋势，验证了 NQE-DQC1 在不同硬件平台上的可扩展性。进一步的补充实验（Fashion-MNIST 与卫星图像数据集）也从更广泛的数据分布层面支持了该结论。

综上所述，本章工作提出并验证了 NQE-DQC1 这一“经典-量子混合”的嵌入优化框架：NQE 负责提升经典数据在量子特征空间中的可分性，DQC1 则为训练过程提供了面向系综量子系统的高效实现手段。该结果不仅为亚通用量子计算模型在量子机器学习中的应用提供了一个清晰范例，也进一步表明系综量子信息处理平台能够成为面向经典数据的实用量子机器学习的重要工具与实验支撑。

CONCLUSION

本论文以“系综量子平台中的非传统量子资源探索与利用”为主线，试图回答一个贯穿量子信息与量子基础的朴素问题：当我们把目光从空间的纠缠网络移向时间的序贯统计，并进一步面对“纠缠稀缺”甚至“纠缠缺席”的现实实验条件时，量子系统还留下些什么可被捕捉、可被认证、并最终可被任务化利用的非经典结构？NMR 所代表的系综量子平台，以其高精度的可控性与高信噪比的期望值读出，为这一问题提供了独特的实验土壤：在这里，非经典性不必依赖单次测量的“瞬时快照”，而可以在大量重复实验的平均读出中，以统计结构的形式被稳健地显影。

围绕时间维度的量子关联，本文首先关注其最基本也最困难的一步——实验表征。为在统一框架下刻画多时刻测量统计，我们引入 PDM 作为工具，并提出基于散射线路的粗粒化测量方案，在四比特 NMR 量子处理器上实现了两时刻 PDM 的完整测量与重构。该方案通过引入辅助探针比特，将跨时间片的联合测量统计转写为探针的可测期望值，从而在尽量不扰动系统动力学的前提下“读取”时间关联。实验结果与理论预言高度一致，使我们确信：散射线路不仅是概念上优雅的构造，也是一条在系综平台上可操作、可复现、可扩展的实验路径。

然而，时间关联的丰富性与实验代价往往相伴而生。随着比特数与时间片数增长，完整 PDM 层析的资源开销迅速攀升，成为走向多体、多时刻研究的现实瓶颈。为跨越这一障碍，本文进一步提出结合准概率分解与随机测量的高效探测方案：无需完整重构 PDM，而是通过在单一时间片内“虚拟制备”PDM 并估计其二阶矩 $\text{Tr}(R^2)$ ，实现对 PDM 负性的间接评估。尤为关键的是，该方案仅需常数数量的测量基，与 NMR 等系综平均读出平台天然契合——在固定测量基下，指数数量的投影统计可借助系综平均被高效并行获取。不同信道参数与态参数下的实验结果表明，该方案能够可靠地区分经典与量子时间关联，在显著降低复杂度的同时保持了良好的认证稳定性。

当时间关联得以被表征与认证之后，一个更具方向感的问题随之浮现：这些跨时间的统计结构是否不仅“可见”，而且“可用”？本文将这一追问落在量子因果推断上，基于 PDM 负性与时间不对称性两类判据，在 NMR 平台上系统检验了四类因果结构：么正信道下的因果结构、完全退相干信道下的因果结构、共同原因

结构以及混合因果结构。实验表明，仅依赖粗粒化投影测量、无需侵入式干预，即可判定实验数据与不同因果结构的相容性。尤其值得强调的是，即便在完全退相干信道中量子相干性已被抹除，我们仍能正确识别因果方向——这提示我们，量子因果推断的有效性并不必然以“高相干演化”为前提；时间统计本身所承载的非经典结构，能够在更一般的开放系统动力学中发挥作用，从而拓宽了相关方法的适用边界。

除时间维度的量子关联外，本文亦将视角投向另一类常被忽视、却可能更贴近当下硬件现实的资源：非纠缠型非经典关联。DQC1 模型几乎不存在可用的多体纠缠，却仍能在若干任务中展现量子优势。基于这一特性，我们提出 NQE-DQC1 方案：利用 DQC1 对 Hilbert–Schmidt 内积的高效估计能力，通过经典神经网络优化量子特征映射，从而提升数据在量子特征空间中的可分性。在 NMR 平台针对 MNIST 手写数字二分类任务的实验中，引入 NQE 编码后分类准确率由传统 ZZ 特征映射的 54.0% 提升至 98.0%，直观体现了量子嵌入质量的显著改善。进一步地，我们在 IBM 超导量子处理器上完成跨平台迁移实验，验证了在系综平台上训练得到的嵌入可迁移至其他物理系统继续执行后续量子机器学习任务，为其面向更广硬件生态的可用性提供了实验支撑。

回顾本论文的研究历程，从 PDM 框架的建立与实验实现，到随机测量方案的设计与资源瓶颈的突破，再到基于时序统计的因果结构推断，以及非纠缠型关联在量子机器学习中的功能化利用，各部分工作虽对应不同物理问题与任务目标，却共同指向同一核心观点：量子系统中除纠缠之外仍蕴含多样而可操作的非经典结构；而系综量子平台凭借其可控性与可读性，为这些“非传统量子资源”的可实验认证与可任务化利用提供了独特而现实的土壤。时间维度的量子关联不仅是量子非经典性的另一种重要体现，也可能成为连接量子基础理论与信息处理应用的一座桥梁；而非纠缠型关联则为在受限硬件条件下实现量子优势提供了值得持续深挖的资源方向。

当然，本文工作仍存在进一步拓展的空间。在时序关联的高效探测方面，目前随机测量方案主要依赖 PDM 的二阶矩来评估负性；若能引入更高阶矩的估计，将有望在多时间片、多体系统中提供更精细的非经典性刻画。在量子因果推断方面，本文主要聚焦两节点因果方向判定，而现实中的因果网络往往包含更多节点与更复杂拓扑；如何将基于 PDM 的判据推广至多节点因果网络的辨识并在实验上

验证，是一个兼具理论深度与应用意义的开放问题。在 NQE-DQC1 方面，将二分类推广至多分类场景并面向更复杂数据结构开展系统评估，有助于进一步检验方案的通用性与可扩展性；同时，若能在离子阱、光量子等更多物理平台上开展跨平台迁移与验证工作，将为其走向实际应用奠定更坚实的基础。

我们期待本文的探索能为量子时序关联的理论理解、实验方法与因果应用提供参考，也希望在系综量子平台上沉淀的实验范式与技术经验，能够在未来更广泛的量子信息处理研究中继续发挥作用。更重要的是，愿这些工作传递出一个克制而坚定的信念：在纠缠之外、在空间之外、甚至在相干性被耗散的边界处，量子系统仍保有值得被追问与利用的非经典结构——而对这些结构的辨认与转化，正是通往更深理解与更实用技术的共同道路。

REFERENCES

- [1] E. Chitambar and G. Gour, Quantum resource theories, *Rev. Mod. Phys.* **91**, 025001 (2019).
- [2] R. Horodecki, P. Horodecki, M. Horodecki, and K. Horodecki, Quantum entanglement, *Rev. Mod. Phys.* **81**, 865 (2009).
- [3] C. H. Bennett, Quantum information, *Phys. Scr.* **1998**, 210 (1998).
- [4] T. Baumgratz, M. Cramer, and M. B. Plenio, Quantifying coherence, *Phys. Rev. Lett.* **113**, 140401 (2014).
- [5] A. Streltsov, G. Adesso, and M. B. Plenio, Colloquium: Quantum coherence as a resource, *Rev. Mod. Phys.* **89**, 041003 (2017).
- [6] H. Ollivier and W. H. Zurek, Quantum discord: A measure of the quantumness of correlations, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 017901 (2001).
- [7] K. Modi, A. Brodutch, H. Cable, T. Paterek, and V. Vedral, The classical-quantum boundary for correlations: Discord and related measures, *Rev. Mod. Phys.* **84**, 1655 (2012).
- [8] A. Einstein, B. Podolsky, and N. Rosen, Can quantum-mechanical description of physical reality be considered complete?, *Phys. Rev.* **47**, 777 (1935).
- [9] J. S. Bell, On the Einstein Podolsky Rosen paradox, *Physics* **1**, 195 (1964).
- [10] E. Knill and R. Laflamme, Power of one bit of quantum information, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 5672 (1998).
- [11] B. P. Lanyon, M. Barbieri, M. P. Almeida, and A. G. White, Experimental quantum computing without entanglement, *Physical review letters* **101**, 200501 (2008).
- [12] W. Wang, J. Han, B. Yadin, Y. Ma, J. Ma, W. Cai, Y. Xu, L. Hu, H. Wang, Y. P. Song, *et al.*, Witnessing quantum resource conversion within deterministic quantum computation using one pure superconducting qubit, *Physical Review Letters* **123**, 220501 (2019).
- [13] A. Aspect, P. Grangier, and G. Roger, Experimental realization of Einstein-Podolsky-Rosen-Bohm Gedankenexperiment: A new violation of Bell's inequalities, *Phys. Rev. Lett.* **49**, 91 (1982).
- [14] A. Aspect, J. Dalibard, and G. Roger, Experimental test of Bell's inequalities using time-varying analyzers, *Phys. Rev. Lett.* **49**, 1804 (1982).
- [15] S. J. Freedman and J. F. Clauser, Experimental test of local hidden-variable theories, *Phys. Rev. Lett.* **28**, 938 (1972).
- [16] G. Weihs, T. Jennewein, C. Simon, H. Weinfurter, and A. Zeilinger, Violation of Bell's inequality under strict Einstein locality conditions, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 5039 (1998).

REFERENCES

- [17] D. M. Greenberger, M. A. Horne, and A. Zeilinger, Going beyond Bell's theorem, in *Bell's theorem, quantum theory and conceptions of the universe* (1989) pp. 69–72.
- [18] N. Gisin, Bell inequality for arbitrary many settings of the analyzers, *Phys. Lett. A* **260**, 1 (1999).
- [19] S. Popescu and D. Rohrlich, Generic quantum nonlocality, *Phys. Lett. A* **166**, 293 (1992).
- [20] C. A. Kocher and E. D. Commins, Polarization correlation of photons emitted in an atomic cascade, *Phys. Rev. Lett.* **18**, 575 (1967).
- [21] T. Scheidl, R. Ursin, J. Kofler, S. Ramelow, X.-S. Ma, T. Herbst, L. Ratschbacher, A. Fedrizzi, N. K. Langford, T. Jennewein, *et al.*, Violation of local realism with freedom of choice, *Proc. Natl. Acad. Sci.* **107**, 19708 (2010).
- [22] D. Bouwmeester, J.-W. Pan, K. Mattle, M. Eibl, H. Weinfurter, and A. Zeilinger, Experimental quantum teleportation, *Nature* **390**, 575 (1997).
- [23] J.-W. Pan, D. Bouwmeester, H. Weinfurter, and A. Zeilinger, Experimental entanglement swapping: Entangling photons that never interacted, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 3891 (1998).
- [24] R. Horodecki *et al.*, Information-theoretic aspects of inseparability of mixed states, *Phys. Rev. A* **54**, 1838 (1996).
- [25] R. Horodecki, P. Horodecki, and M. Horodecki, Quantum α -entropy inequalities: Independent condition for local realism?, *Phys. Lett. A* **210**, 377 (1996).
- [26] N. J. Cerf and C. Adami, Negative entropy and information in quantum mechanics, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 5194 (1997).
- [27] B. Schumacher and M. A. Nielsen, Quantum data processing and error correction, *Phys. Rev. A* **54**, 2629 (1996).
- [28] S. Lloyd, Capacity of the noisy quantum channel, *Phys. Rev. A* **55**, 1613 (1997).
- [29] M. Horodecki, J. Oppenheim, and A. Winter, Partial quantum information, *Nature* **436**, 673 (2005).
- [30] M. Horodecki, J. Oppenheim, and A. Winter, Quantum state merging and negative information, *Commun. Math. Phys.* **269**, 107 (2007).
- [31] F. A. Bovino, G. Castagnoli, A. Ekert, P. Horodecki, . f. C. M. Alves, and A. V. Sergienko, Direct measurement of nonlinear properties of bipartite quantum states, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 240407 (2005).
- [32] A. K. Ekert, Quantum cryptography based on Bell's theorem, *Phys. Rev. Lett.* **67**, 661 (1991).
- [33] C. H. Bennett and S. J. Wiesner, Communication via one-and two-particle operators on Einstein-Podolsky-Rosen states, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 2881 (1992).
- [34] C. H. Bennett, G. Brassard, C. Crépeau, R. Jozsa, A. Peres, and W. K. Wootters, Teleporting an unknown quantum state via dual classical and Einstein-Podolsky-Rosen channels, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 1895 (1993).

REFERENCES

- [35] B. Yurke and D. Stoler, Bell's-inequality experiments using independent-particle sources, *Phys. Rev. A* **46**, 2229 (1992).
- [36] B. Yurke and D. Stoler, Einstein-Podolsky-Rosen effects from independent particle sources, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 1251 (1992).
- [37] M. Żukowski, A. Zeilinger, M. A. Horne, and A. K. Ekert, "Event-ready-detectors" Bell experiment via entanglement swapping, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 4287 (1993).
- [38] S. Bose, V. Vedral, and P. L. Knight, Multiparticle generalization of entanglement swapping, *Phys. Rev. A* **57**, 822 (1998).
- [39] A. Furusawa, J. L. Sørensen, S. L. Braunstein, C. A. Fuchs, H. J. Kimble, and E. S. Polzik, Unconditional quantum teleportation, *Science* **282**, 706 (1998).
- [40] D. Boschi, S. Branca, F. De Martini, L. Hardy, and S. Popescu, Experimental realization of teleporting an unknown pure quantum state via dual classical and Einstein-Podolsky-Rosen channels, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 1121 (1998).
- [41] T. Jennewein, C. Simon, G. Weihs, H. Weinfurter, and A. Zeilinger, Quantum cryptography with entangled photons, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 4729 (2000).
- [42] D. Naik, C. Peterson, A. White, A. Berglund, and P. Kwiat, Entangled state quantum cryptography: Eavesdropping on the Ekert protocol, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 4733 (2000).
- [43] C. H. Bennett and G. i. Brassard, Proc. IEEE Int. Conf. on computers, systems and signal processing, bangalore, india, in *Proc. of the IEEE Int. Conf. on Computers, Systems, and Signal Processing, Bangalore, India* (IEEE, New York, 1984) p. 175.
- [44] R. P. Feynman, Simulating physics with computers, *Int. J. Theor. Phys.* **21**, 467 (1982).
- [45] D. Deutsch, Quantum theory, the Church–Turing principle and the universal quantum computer, *Proc. R. Soc. Lond. A* **400**, 97 (1985).
- [46] P. W. Shor, Scheme for reducing decoherence in quantum computer memory, *Phys. Rev. A* **52**, R2493 (1995).
- [47] A. M. Steane, Error correcting codes in quantum theory, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 793 (1996).
- [48] M. A. Nielsen and I. L. Chuang, *Quantum computation and quantum information* (Cambridge university press, 2010).
- [49] G. Alber, T. Beth, M. Horodecki, P. Horodecki, R. Horodecki, M. Rötteler, H. Weinfurter, R. Werner, and A. Zeilinger, *Quantum information: An introduction to basic theoretical concepts and experiments*, Vol. 173 (Springer, 2003).
- [50] D. Bouwmeester and A. Zeilinger, The physics of quantum information: Basic concepts, in *The physics of quantum information: quantum cryptography, quantum teleportation, quantum computation* (2000) pp. 1–14.
- [51] H. J. Kimble, The quantum internet, *Nature* **453**, 1023 (2008).

REFERENCES

- [52] H.-J. Briegel, W. Dür, J. I. Cirac, and P. Zoller, Quantum repeaters: The role of imperfect local operations in quantum communication, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 5932 (1998).
- [53] J. Niu, L. Zhang, Y. Liu, J. Qiu, W. Huang, J. Huang, H. Jia, J. Liu, Z. Tao, W. Wei, *et al.*, Low-loss interconnects for modular superconducting quantum processors, *Nat. Electron.* **6**, 235 (2023).
- [54] V. Giovannetti, S. Lloyd, and L. Maccone, Quantum-enhanced measurements: Beating the standard quantum limit, *Science* **306**, 1330 (2004).
- [55] S. F. Huelga, C. Macchiavello, T. Pellizzari, A. K. Ekert, M. B. Plenio, and J. I. Cirac, Improvement of frequency standards with quantum entanglement, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 3865 (1997).
- [56] M. Kitagawa and M. Ueda, Squeezed spin states, *Phys. Rev. A* **47**, 5138 (1993).
- [57] J. Aasi, J. Abadie, B. Abbott, R. Abbott, T. Abbott, M. Abernathy, C. Adams, T. Adams, P. Addesso, R. Adhikari, *et al.*, Enhanced sensitivity of the LIGO gravitational wave detector by using squeezed states of light, *Nat. Photonics* **7**, 613 (2013).
- [58] I. D. Leroux, M. H. Schleier-Smith, and V. Vuletić, Implementation of cavity squeezing of a collective atomic spin, *Phys. Rev. Lett.* **104**, 073602 (2010).
- [59] V. M. Kendon and W. J. Munro, Entanglement and its role in Shor’s algorithm, *Quantum Inf. Comput.* **6**, 630 (2006).
- [60] R. Raussendorf and H. J. Briegel, A one-way quantum computer, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 5188 (2001).
- [61] R. Jozsa and N. Linden, On the role of entanglement in quantum-computational speed-up, *Proc. R. Soc. Lond. A* **459**, 2011 (2003).
- [62] G. Vidal, Efficient classical simulation of slightly entangled quantum computations, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 147902 (2003).
- [63] S. R. White, Density matrix formulation for quantum renormalization groups, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 2863 (1992).
- [64] F. Verstraete and J. I. Cirac, Renormalization algorithms for quantum-many body systems in two and higher dimensions, *arXiv:cond-mat/0407066* (2004).
- [65] A. J. Leggett and A. Garg, Quantum mechanics versus macroscopic realism: Is the flux there when nobody looks?, *Phys. Rev. Lett.* **54**, 857 (1985).
- [66] C. Emary, N. Lambert, and F. Nori, Leggett–Garg inequalities, *Rep. Prog. Phys.* **77**, 016001 (2013).
- [67] J. Kofler and i. c. v. Brukner, Conditions for quantum violation of macroscopic realism, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 090403 (2008).
- [68] M. M. Wolf and D. Perez-Garcia, Assessing quantum dimensionality from observable dynamics, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 190504 (2009).

REFERENCES

- [69] C. Spee, H. Siebeneich, T. F. Gloger, P. Kaufmann, M. Johanning, M. Kleinmann, C. Wunderlich, and O. Gühne, Genuine temporal correlations can certify the quantum dimension, *New J. Phys.* **22**, 023028 (2020).
- [70] L. B. Vieira, S. Milz, G. Vitagliano, and C. Budroni, Witnessing environment dimension through temporal correlations, *Quantum* **8**, 1224 (2024).
- [71] P. Erker, M. T. Mitchison, R. Silva, M. P. Woods, N. Brunner, and M. Huber, Autonomous quantum clocks: Does thermodynamics limit our ability to measure time?, *Phys. Rev. X* **7**, 031022 (2017).
- [72] C. Budroni, G. Vitagliano, and M. P. Woods, Ticking-clock performance enhanced by nonclassical temporal correlations, *Phys. Rev. Res.* **3**, 033051 (2021).
- [73] M. P. Woods, R. Silva, G. Pütz, S. Stupar, and R. Renner, Quantum clocks are more accurate than classical ones, *PRX Quantum* **3**, 010319 (2022).
- [74] G. Chiribella, G. M. D’Ariano, and P. Perinotti, Theoretical framework for quantum networks, *Phys. Rev. A* **80**, 022339 (2009).
- [75] G. Chiribella, G. M. D’Ariano, P. Perinotti, and B. Valiron, Quantum computations without definite causal structure, *Phys. Rev. A* **88**, 022318 (2013).
- [76] P. A. Guérin, A. Feix, M. Araújo, and Č. Brukner, Exponential communication complexity advantage from quantum superposition of the direction of communication, *Phys. Rev. Lett.* **117**, 100502 (2016).
- [77] M. Araújo, F. Costa, and Č. Brukner, Computational advantage from quantum-controlled ordering of gates, *Phys. Rev. Lett.* **113**, 250402 (2014).
- [78] Y. Guo, X.-M. Hu, Z.-B. Hou, H. Cao, J.-M. Cui, B.-H. Liu, Y.-F. Huang, C.-F. Li, G.-C. Guo, and G. Chiribella, Experimental transmission of quantum information using a superposition of causal orders, *Phys. Rev. Lett.* **124**, 030502 (2020).
- [79] D. Ebler, S. Salek, and G. Chiribella, Enhanced communication with the assistance of indefinite causal order, *Phys. Rev. Lett.* **120**, 120502 (2018).
- [80] X. Zhao, Y. Yang, and G. Chiribella, Quantum metrology with indefinite causal order, *Phys. Rev. Lett.* **124**, 190503 (2020).
- [81] P. Yin, X. Zhao, Y. Yang, Y. Guo, W.-H. Zhang, G.-C. Li, Y.-J. Han, B.-H. Liu, J.-S. Xu, G. Chiribella, *et al.*, Experimental super-Heisenberg quantum metrology with indefinite gate order, *Nat. Phys.* **19**, 1122 (2023).
- [82] X. Nie, X. Zhu, K. Huang, K. Tang, X. Long, Z. Lin, Y. Tian, C. Qiu, C. Xi, X. Yang, *et al.*, Experimental realization of a quantum refrigerator driven by indefinite causal orders, *Phys. Rev. Lett.* **129**, 100603 (2022).
- [83] J. F. Fitzsimons, J. A. Jones, and V. Vedral, Quantum correlations which imply causation, *Sci. Rep.* **5**, 18281 (2015).

REFERENCES

- [84] M. Gachechiladze, N. Miklin, and R. Chaves, Quantifying causal influences in the presence of a quantum common cause, *Phys. Rev. Lett.* **125**, 230401 (2020).
- [85] K. Ried, M. Agnew, L. Vermeyden, D. Janzing, R. W. Spekkens, and K. J. Resch, A quantum advantage for inferring causal structure, *Nat. Phys.* **11**, 414 (2015).
- [86] J. Barrett, R. Lorenz, and O. Oreshkov, Cyclic quantum causal models, *Nat. Commun.* **12**, 885 (2021).
- [87] J.-P. W. MacLean, K. Ried, R. W. Spekkens, and K. J. Resch, Quantum-coherent mixtures of causal relations, *Nat. Commun.* **8**, 15149 (2017).
- [88] X. Liu, Z. Jia, Y. Qiu, F. Li, and O. Dahlsten, Unification of spatiotemporal quantum formalisms: Mapping between process and pseudo-density matrices via multiple-time states, *New J. Phys.* **26**, 033008 (2024).
- [89] X. Liu, Y. Qiu, O. Dahlsten, and V. Vedral, Quantum causal inference with extremely light touch, *npj Quantum Inf.* **11**, 1 (2025).
- [90] C. Marletto, V. Vedral, S. Virzì, A. Avella, F. Piacentini, M. Gramegna, I. P. Degiovanni, and M. Genovese, Temporal teleportation with pseudo-density operators: How dynamics emerges from temporal entanglement, *Sci. Adv.* **7**, eabe4742 (2021).
- [91] O. Oreshkov, F. Costa, and Č. Brukner, Quantum correlations with no causal order, *Nat. Commun.* **3**, 1092 (2012).
- [92] M. Araújo, C. Branciard, F. Costa, A. Feix, C. Giarmatzi, and Č. Brukner, Witnessing causal nonseparability, *New J. Phys.* **17**, 102001 (2015).
- [93] M. S. Leifer and R. W. Spekkens, Towards a formulation of quantum theory as a causally neutral theory of Bayesian inference, *Phys. Rev. A* **88**, 052130 (2013).
- [94] H. Shrotriya, L.-C. Kwek, and K. Bharti, Certifying temporal correlations, *arXiv:2206.06092* (2022).
- [95] J. Clarke and F. K. Wilhelm, Superconducting quantum bits, *Nature* **453**, 1031 (2008).
- [96] H. Häffner, C. F. Roos, and R. Blatt, Quantum computing with trapped ions, *Phys. Rep.* **469**, 155 (2008).
- [97] C. D. Bruzewicz, J. Chiaverini, R. McConnell, and J. M. Sage, Trapped-ion quantum computing: Progress and challenges, *Appl. Phys. Rev.* **6**, 021314 (2019).
- [98] A. Blais, A. L. Grimsmo, S. Girvin, and A. Wallraff, Circuit quantum electrodynamics, *Rev. Mod. Phys.* **93**, 025005 (2021).
- [99] L. M. K. Vandersypen and I. L. Chuang, NMR techniques for quantum control and computation, *Rev. Mod. Phys.* **76**, 1037 (2005).
- [100] J. A. Jones, Quantum computing with NMR, *Prog. Nucl. Magn. Reson. Spectrosc.* **59**, 91 (2011).
- [101] L.-M. Duan, M. D. Lukin, J. I. Cirac, and P. Zoller, Long-distance quantum communication with atomic ensembles and linear optics, *Nature* **414**, 413 (2001).

REFERENCES

- [102] A. I. Lvovsky, B. C. Sanders, and W. Tittel, Optical quantum memory, *Nat. Photonics* **3**, 706 (2009).
- [103] M. W. Doherty, N. B. Manson, P. Delaney, F. Jelezko, J. Wrachtrup, and L. C. Hollenberg, The nitrogen-vacancy colour centre in diamond, *Phys. Rep.* **528**, 1 (2013).
- [104] R. Schirhagl, K. Chang, M. Loretz, and C. L. Degen, Nitrogen-vacancy centers in diamond: Nanoscale sensors for physics and biology, *Annu. Rev. Phys. Chem.* **65**, 83 (2014).
- [105] D. G. Cory, A. F. Fahmy, and T. F. Havel, Ensemble quantum computing by NMR spectroscopy, *Proc. Nat. Acad. Sci.* **94**, 1634 (1997).
- [106] R. Schmied, J.-D. Bancal, B. Allard, M. Fadel, V. Scarani, P. Treutlein, and N. Sangouard, Bell correlations in a Bose-Einstein condensate, *Science* **352**, 441 (2016).
- [107] C. Findler, R. Blinder, K. Schüle, P. Balasubramanian, C. Osterkamp, and F. Jelezko, Detecting nitrogen-vacancy-hydrogen centers on the nanoscale using nitrogen-vacancy centers in diamond, *Physical Review Materials* **8**, 026203 (2024).
- [108] N. A. Gershenfeld and I. L. Chuang, Bulk spin-resonance quantum computation, *Science* **275**, 350 (1997).
- [109] I. Bloch, Quantum coherence and entanglement with ultracold atoms in optical lattices, *Nature* **453**, 1016 (2008).
- [110] D. G. Cory, M. D. Price, and T. F. Havel, Nuclear magnetic resonance spectroscopy: An experimentally accessible paradigm for quantum computing, *Physica D* **120**, 82 (1998).
- [111] K. Huang, Q. Zhang, X. Liu, R. Li, X. Long, H. Liu, X. Wang, Y.-a. Fan, Y. Zheng, Y. Feng, Y. Zhou, J. Ng, X. Nie, Z.-X. Man, and D. Lu, Reversing Heat Flow by Coherence in a Multipartite Quantum System, *Phys. Rev. Lett.* **136**, 050403 (2026).
- [112] R. Liu, X. Yang, X. Lv, X. Long, H. Liu, D. Lu, Y. Dong, and J. Li, Experimental realization of quantum Zeno dynamics for robust quantum metrology, *Phys. Rev. Lett.* **135**, 250805 (2025).
- [113] Z. Luo, J. Li, Z. Li, L.-Y. Hung, Y. Wan, X. Peng, and J. Du, Experimentally probing topological order and its breakdown through modular matrices, *Nat. Phys.* **14**, 160 (2018).
- [114] J. P. Peterson, T. B. Batalhão, M. Herrera, A. M. Souza, R. S. Sarthour, I. S. Oliveira, and R. M. Serra, Experimental characterization of a spin quantum heat engine, *Phys. Rev. Lett.* **123**, 240601 (2019).
- [115] K. Micadei, J. P. Peterson, A. M. Souza, R. S. Sarthour, I. S. Oliveira, G. T. Landi, R. M. Serra, and E. Lutz, Experimental validation of fully quantum fluctuation theorems using dynamic Bayesian networks, *Phys. Rev. Lett.* **127**, 180603 (2021).
- [116] X. Chen, Z. Wu, M. Jiang, X.-Y. Lü, X. Peng, and J. Du, Experimental quantum simulation of superradiant phase transition beyond no-go theorem via antisqueezing, *Nat. Commun.* **12**, 6281 (2021).

REFERENCES

- [117] Y.-a. Fan, Y. Li, Y. Hu, Y. Li, X. Long, H. Liu, X. Yang, X. Nie, J. Li, T. Xin, *et al.*, Experimental quantum simulation of a topologically protected hadamard gate via braiding fibonacci anyons, *The Innovation* **4**, 100480 (2023).
- [118] M. H. Levitt, *Spin dynamics: basics of nuclear magnetic resonance* (John Wiley & Sons, 2008).
- [119] F. Bloch, Nuclear induction, *Phys. Rev.* **70**, 460 (1946).
- [120] E. M. Purcell, H. C. Torrey, and R. V. Pound, Resonance absorption by nuclear magnetic moments in a solid, *Phys. Rev.* **69**, 37 (1946).
- [121] X. Liu, Q. Chen, and O. Dahlsten, Inferring the arrow of time in quantum spatiotemporal correlations, *Phys. Rev. A* **109**, 032219 (2024).
- [122] Z. Lin, H. Liu, K. Tang, Y. Liu, L. Che, X. Long, X. Wang, Y.-a. Fan, K. Huang, X. Yang, *et al.*, Hardware-efficient quantum principal component analysis for medical image recognition, *Front. Phys.* **19**, 51202 (2024).
- [123] N. Khaneja, T. Reiss, C. Kehlet, T. Schulte-Herbrüggen, and S. J. Glaser, Optimal control of coupled spin dynamics: Design of NMR pulse sequences by gradient ascent algorithms, *J. Magn. Reson.* **172**, 296 (2005).
- [124] J. Li, S. Huang, Z. Luo, K. Li, D. Lu, and B. Zeng, Optimal design of measurement settings for quantum-state-tomography experiments, *Phys. Rev. A* **96**, 032307 (2017).
- [125] C. Miquel, J. P. Paz, M. Saraceno, E. Knill, R. Laflamme, and C. Negrevergne, Interpretation of tomography and spectroscopy as dual forms of quantum computation, *Nature* **418**, 59 (2002).
- [126] A. Souza, I. Oliveira, and R. Sarthour, A scattering quantum circuit for measuring Bell’s time inequality: A nuclear magnetic resonance demonstration using maximally mixed states, *New J. Phys.* **13**, 053023 (2011).
- [127] A. Datta, S. T. Flammia, and C. M. Caves, Entanglement and the power of one qubit, *Phys. Rev. A* **72**, 042316 (2005).
- [128] T. Fritz, Quantum correlations in the temporal Clauser–Horne–Shimony–Holt (CHSH) scenario, *New J. Phys.* **12**, 083055 (2010).
- [129] C. Budroni, T. Moroder, M. Kleinmann, and O. Gühne, Bounding temporal quantum correlations, *Phys. Rev. Lett.* **111**, 020403 (2013).
- [130] O. Pusuluk, Z. Gedik, and V. Vedral, Witnessing superpositions of causal orders by weak measurements at a given time, *arXiv:2209.09172* (2022).
- [131] Z. Jia, M. Song, and D. Kaszlikowski, Quantum space-time marginal problem: Global causal structure from local causal information, *New J. Phys.* **25**, 123038 (2023).
- [132] M. Song, V. Narasimhachar, B. Regula, T. J. Elliott, and M. Gu, Causal classification of spatiotemporal quantum correlations, *Phys. Rev. Lett.* **133**, 110202 (2024).
- [133] D. F. James, P. G. Kwiat, W. J. Munro, and A. G. White, Measurement of qubits, *Phys. Rev. A* **64**, 052312 (2001).

REFERENCES

- [134] M. Paris and J. Rehacek, *Quantum state estimation*, Vol. 649 (Springer Science & Business Media, 2004).
- [135] H. Liu, Z. Liu, S. Chen, X. Nie, X. Liu, and D. Lu, Certifying quantum temporal correlation via randomized measurements: Theory and experiment, *Physical Review Letters* **134**, 040201 (2025).
- [136] C. Marletto, V. Vedral, S. Virzi, E. Rebufello, A. Avella, F. Piacentini, M. Gramegna, I. P. Degiovanni, and M. Genovese, Theoretical description and experimental simulation of quantum entanglement near open time-like curves via pseudo-density operators, *Nat. Commun.* **10**, 182 (2019).
- [137] D. Horsman, C. Heunen, M. F. Pusey, J. Barrett, and R. W. Spekkens, Can a quantum state over time resemble a quantum state at a single time?, *Proc. R. Soc. A* **473**, 20170395 (2017).
- [138] Z. Zhao, R. Pisarczyk, J. Thompson, M. Gu, V. Vedral, and J. F. Fitzsimons, Geometry of quantum correlations in space-time, *Phys. Rev. A* **98**, 052312 (2018).
- [139] R. Pisarczyk, Z. Zhao, Y. Ouyang, V. Vedral, and J. F. Fitzsimons, Causal limit on quantum communication, *Phys. Rev. Lett.* **123**, 150502 (2019).
- [140] G. Vidal, Entanglement monotones, *J. Mod. Opt.* **47**, 355 (2000).
- [141] X. Nie, B.-B. Wei, X. Chen, Z. Zhang, X. Zhao, C. Qiu, Y. Tian, Y. Ji, T. Xin, D. Lu, and J. Li, Experimental observation of equilibrium and dynamical quantum phase transitions via out-of-time-ordered correlators, *Phys. Rev. Lett.* **124**, 250601 (2020).
- [142] Z. Zhang, X. Long, X. Zhao, Z. Lin, K. Tang, H. Liu, X. Yang, X. Nie, J. Wu, J. Li, T. Xin, K. Li, and D. Lu, Identifying Abelian and non-Abelian topological orders in the string-net model using a quantum scattering circuit, *Phys. Rev. A* **105**, L030402 (2022).
- [143] Z. Lin, L. Zhang, X. Long, Y.-a. Fan, Y. Li, K. Tang, J. Li, X. Nie, T. Xin, X.-J. Liu, *et al.*, Experimental quantum simulation of non-Hermitian dynamical topological states using stochastic Schrödinger equation, *npj Quantum Inf.* **8**, 77 (2022).
- [144] X. Nie, X. Zhu, Y.-a. Fan, X. Long, H. Liu, K. Huang, C. Xi, L. Che, Y. Zheng, Y. Feng, X. Yang, and D. Lu, Self-Consistent determination of single-impurity Anderson model using hybrid quantum-classical approach on a spin quantum simulator, *Phys. Rev. Lett.* **133**, 140602 (2024).
- [145] C. Xi, X. Liu, H. Liu, K. Huang, X. Long, D. Ebler, X. Nie, O. Dahlsten, and D. Lu, Experimental validation of enhanced information capacity by quantum switch in accordance with thermodynamic laws, *Phys. Rev. Lett.* **133**, 040401 (2024).
- [146] K. Huang, C. Xi, X. Long, H. Liu, Y.-a. Fan, X. Wang, Y. Zheng, Y. Feng, X. Nie, and D. Lu, Experimental realization of self-contained quantum refrigeration, *Phys. Rev. Lett.* **132**, 210403 (2024).

REFERENCES

- [147] X. Long, W.-T. He, N.-N. Zhang, K. Tang, Z. Lin, H. Liu, X. Nie, G. Feng, J. Li, T. Xin, Q. Ai, and D. Lu, Entanglement-enhanced quantum metrology in colored noise by quantum zeno effect, *Phys. Rev. Lett.* **129**, 070502 (2022).
- [148] S. Aaronson, Shadow tomography of quantum states, in *Proceedings of the 50th Annual ACM SIGACT Symposium on Theory of Computing*, STOC 2018 (2018) p. 325–338.
- [149] H.-Y. Huang, R. Kueng, and J. Preskill, Predicting many properties of a quantum system from very few measurements, *Nat. Phys.* **16**, 1050 (2020).
- [150] K. Temme, S. Bravyi, and J. M. Gambetta, Error mitigation for short-depth quantum circuits, *Phys. Rev. Lett.* **119**, 180509 (2017).
- [151] S. Endo, S. C. Benjamin, and Y. Li, Practical quantum error mitigation for near-future applications, *Phys. Rev. X* **8**, 031027 (2018).
- [152] A. Elben, B. Vermersch, C. F. Roos, and P. Zoller, Statistical correlations between locally randomized measurements: A toolbox for probing entanglement in many-body quantum states, *Phys. Rev. A* **99**, 052323 (2019).
- [153] A. Elben, S. T. Flammia, H.-Y. Huang, R. Kueng, J. Preskill, B. Vermersch, and P. Zoller, The randomized measurement toolbox, *Nat. Rev. Phys.* **5**, 9 (2023).
- [154] T. Brydges, A. Elben, P. Jurcevic, B. Vermersch, C. Maier, B. P. Lanyon, P. Zoller, R. Blatt, and C. F. Roos, Probing Rényi entanglement entropy via randomized measurements, *Science* **364**, 260 (2019).
- [155] J. Fullwood and A. J. Parzygnat, On quantum states over time, *Proc. R. Soc. A* **478**, 20220104 (2022).
- [156] A. J. Parzygnat and J. Fullwood, From time-reversal symmetry to quantum Bayes’ rules, *PRX Quantum* **4**, 020334 (2023).
- [157] S. H. Lie and N. H. Y. Ng, Quantum state over time is unique, *Phys. Rev. Res.* **6**, 033144 (2024).
- [158] J. Haah, A. W. Harrow, Z. Ji, X. Wu, and N. Yu, Sample-optimal tomography of quantum states, in *Proceedings of the Forty-Eighth Annual ACM Symposium on Theory of Computing*, STOC ’16 (2016) p. 913–925.
- [159] S. Chen, B. Huang, J. Li, A. Liu, and M. Sellke, When does adaptivity help for quantum state learning?, in *2023 IEEE 64th Annual Symposium on Foundations of Computer Science (FOCS)* (2023) pp. 391–404.
- [160] H. A. Carteret, Noiseless quantum circuits for the Peres separability criterion, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 040502 (2005).
- [161] J. Cai and W. Song, Novel schemes for directly measuring entanglement of general states, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 190503 (2008).
- [162] J. Gray, L. Banchi, A. Bayat, and S. Bose, Machine-Learning-Assisted many-body entanglement measurement, *Phys. Rev. Lett.* **121**, 150503 (2018).

REFERENCES

- [163] A. Elben, R. Kueng, H.-Y. R. Huang, R. van Bijnen, C. Kokail, M. Dalmonte, P. Calabrese, B. Kraus, J. Preskill, P. Zoller, and B. Vermersch, Mixed-state entanglement from local randomized measurements, *Phys. Rev. Lett.* **125**, 200501 (2020).
- [164] Y. Zhou, P. Zeng, and Z. Liu, Single-copies estimation of entanglement negativity, *Phys. Rev. Lett.* **125**, 200502 (2020).
- [165] A. Neven, J. Carrasco, V. Vitale, C. Kokail, A. Elben, M. Dalmonte, P. Calabrese, P. Zoller, B. Vermersch, R. Kueng, and B. Kraus, Symmetry-resolved entanglement detection using partial transpose moments, *npj Quantum Inf.* **7**, 152 (2021).
- [166] X.-D. Yu, S. Imai, and O. Gühne, Optimal entanglement certification from moments of the partial transpose, *Phys. Rev. Lett.* **127**, 060504 (2021).
- [167] Z. Liu, Y. Tang, H. Dai, P. Liu, S. Chen, and X. Ma, Detecting entanglement in quantum many-body systems via permutation moments, *Phys. Rev. Lett.* **129**, 260501 (2022).
- [168] S. Chen, J. Cotler, H.-Y. Huang, and J. Li, Exponential separations between learning with and without quantum memory, in *2021 IEEE 62nd Annual Symposium on Foundations of Computer Science (FOCS)* (2022) pp. 574–585.
- [169] S. Chen, C. Oh, S. Zhou, H.-Y. Huang, and L. Jiang, Tight bounds on Pauli channel learning without entanglement, *Phys. Rev. Lett.* **132**, 180805 (2024).
- [170] H. Zhu, Multiqubit Clifford groups are unitary 3-designs, *Phys. Rev. A* **96**, 062336 (2017).
- [171] H. Reichenbach, *The direction of time*, Vol. 65 (Univ of California Press, 1991).
- [172] J. Pearl, *Causality* (Cambridge university press, Cambridge, England, 2009).
- [173] A. Balke and J. Pearl, Bounds on treatment effects from studies with imperfect compliance, *J. Am. Stat. Assoc.* **92**, 1171 (1997).
- [174] M. Proserpi, Y. Guo, M. Sperrin, J. S. Koopman, J. S. Min, X. He, S. Rich, M. Wang, I. E. Buchan, and J. Bian, Causal inference and counterfactual prediction in machine learning for actionable healthcare, *Nat. Mach. Intell.* **2**, 369 (2020).
- [175] J. Peters, D. Janzing, and B. Schölkopf, *Elements of causal inference: foundations and learning algorithms* (MIT press, 2017).
- [176] A. Feder, K. A. Keith, E. Manzoor, R. Pryzant, D. Sridhar, Z. Wood-Doughty, J. Eisenstein, J. Grimmer, R. Reichart, M. E. Roberts, *et al.*, Causal inference in natural language processing: Estimation, prediction, interpretation and beyond, *Trans. Assoc. Comput. Linguist.* **10**, 1138 (2022).
- [177] J. D. Angrist, G. W. Imbens, and D. B. Rubin, Identification of causal effects using instrumental variables, *J. Am. Stat. Assoc.* **91**, 444 (1996).
- [178] Č. Brukner, Quantum causality, *Nat. Phys.* **10**, 259 (2014).
- [179] J. Barrett, R. Lorenz, and O. Oreshkov, Quantum causal models, *arXiv:1906.10726* (2019).
- [180] F. Costa and S. Shrapnel, Quantum causal modelling, *New J. Phys.* **18**, 063032 (2016).

REFERENCES

- [181] J.-M. A. Allen, J. Barrett, D. C. Horsman, C. M. Lee, and R. W. Spekkens, Quantum common causes and quantum causal models, *Phys. Rev. X* **7**, 031021 (2017).
- [182] Y. Aharonov, S. Popescu, J. Tollaksen, and L. Vaidman, Multiple-time states and multiple-time measurements in quantum mechanics, *Phys. Rev. A* **79**, 052110 (2009).
- [183] X. Liu, D. Ebler, and O. Dahlsten, Thermodynamics of quantum switch information capacity activation, *Phys. Rev. Lett.* **129**, 230604 (2022).
- [184] A. J. Parzygnat and J. Fullwood, From time-reversal symmetry to quantum Bayes' rules, *PRX Quantum* **4**, 020334 (2023).
- [185] E. Wolfe, A. Pozas-Kerstjens, M. Grinberg, D. Rosset, A. Acín, and M. Navascués, Quantum inflation: A general approach to quantum causal compatibility, *Phys. Rev. X* **11**, 021043 (2021).
- [186] G. Bai, Y.-D. Wu, Y. Zhu, M. Hayashi, and G. Chiribella, Quantum causal unravelling, *npj Quantum Inf.* **8**, 69 (2022).
- [187] G. Chiribella and D. Ebler, Quantum speedup in the identification of cause–effect relations, *Nat. Commun.* **10**, 1 (2019).
- [188] R. Chaves, G. Carvacho, I. Agresti, V. Di Giulio, L. Aolita, S. Giacomini, and F. Sciarrino, Quantum violation of an instrumental test, *Nat. Phys.* **14**, 291 (2018).
- [189] I. Agresti, D. Poderini, B. Polacchi, N. Miklin, M. Gachechiladze, A. Suprano, E. Polino, G. Milani, G. Carvacho, R. Chaves, *et al.*, Experimental test of quantum causal influences, *Sci. Adv.* **8**, eabm1515 (2022).
- [190] R. V. Nery, M. M. Taddei, R. Chaves, and L. Aolita, Quantum steering beyond instrumental causal networks, *Phys. Rev. Lett.* **120**, 140408 (2018).
- [191] I. Agresti, D. Poderini, L. Guerini, M. Mancusi, G. Carvacho, L. Aolita, D. Cavalcanti, R. Chaves, and F. Sciarrino, Experimental device-independent certified randomness generation with an instrumental causal structure, *Commun. Phys.* **3**, 110 (2020).
- [192] R. Chaves, C. Majenz, and D. Gross, Information–theoretic implications of quantum causal structures, *Nat. Commun.* **6**, 5766 (2015).
- [193] T. Xin, L. Che, C. Xi, A. Singh, X. Nie, J. Li, Y. Dong, and D. Lu, Experimental quantum principal component analysis via parametrized quantum circuits, *Phys. Rev. Lett.* **126**, 110502 (2021).
- [194] J. Biamonte, P. Wittek, N. Pancotti, P. Rebentrost, N. Wiebe, and S. Lloyd, Quantum machine learning, *Nature* **549**, 195 (2017).
- [195] P. Rebentrost, M. Mohseni, and S. Lloyd, Quantum support vector machine for big data classification, *Phys. Rev. Lett.* **113**, 130503 (2014).
- [196] S. Lloyd, M. Mohseni, and P. Rebentrost, Quantum principal component analysis, *Nat. Phys.* **10**, 631 (2014).

REFERENCES

- [197] J. R. McClean, S. Boixo, V. N. Smelyanskiy, R. Babbush, and H. Neven, Barren plateaus in quantum neural network training landscapes, *Nat. Commun.* **9**, 4812 (2018).
- [198] J. Preskill, Quantum Computing in the NISQ era and beyond, *Quantum* **2**, 79 (2018).
- [199] V. Havlíček, A. D. Córcoles, K. Temme, A. W. Harrow, A. Kandala, J. M. Chow, and J. M. Gambetta, Supervised learning with quantum-enhanced feature spaces, *Nature* **567**, 209 (2019).
- [200] M. Benedetti, E. Lloyd, S. Sack, and M. Fiorentini, Parameterized quantum circuits as machine learning models, *Quantum Sci. Technol.* **4**, 043001 (2019).
- [201] M. Cerezo, A. Arrasmith, R. Babbush, S. C. Benjamin, S. Endo, K. Fujii, J. R. McClean, K. Mitarai, X. Yuan, L. Cincio, and P. J. Coles, Variational quantum algorithms, *Nat. Rev. Phys.* **3**, 625 (2021).
- [202] K. Bharti, A. Cervera-Liarta, T. H. Kyaw, T. Haug, S. Alperin-Lea, A. Anand, M. Degroote, H. Heimonen, J. S. Kottmann, T. Menke, W.-K. Mok, S. Sim, L.-C. Kwek, and A. Aspuru-Guzik, Noisy intermediate-scale quantum algorithms, *Rev. Mod. Phys.* **94**, 015004 (2022).
- [203] T. Xiao, X. Zhai, X. Wu, J. Fan, and G. Zeng, Practical advantage of quantum machine learning in ghost imaging, *Commun. Phys.* **6**, 171 (2023).
- [204] H. Xu, T. Xiao, J. Huang, M. He, J. Fan, and G. Zeng, Toward Heisenberg limit without critical slowing down via quantum reinforcement learning, *Phys. Rev. Lett.* **134**, 120803 (2025).
- [205] D. Lee, K. Baek, J. Huh, and D. K. Park, Variational quantum state discriminator for supervised machine learning, *Quantum Sci. Technol.* **9**, 015017 (2023).
- [206] J. Choi, T. Hur, D. K. Park, N.-Y. Shin, S.-K. Lee, H. Lee, and S. Han, Early-stage detection of cognitive impairment by hybrid quantum-classical algorithm using resting-state functional MRI time-series, *Knowledge-Based Syst.* **310**, 112922 (2025).
- [207] Z. Li, X. Liu, N. Xu, and J. Du, Experimental realization of a quantum support vector machine, *Phys. Rev. Lett.* **114**, 140504 (2015).
- [208] P. L. Bartlett, D. J. Foster, and M. J. Telgarsky, Spectrally-normalized margin bounds for neural networks, *Adv. Neural Inf. Process. Syst.* **30** (2017).
- [209] T. Hur, I. F. Araujo, and D. K. Park, Neural quantum embedding: Pushing the limits of quantum supervised learning, *Phys. Rev. A* **110**, 022411 (2024).
- [210] T. Hur and D. K. Park, Understanding generalization in quantum machine learning with margins, *arXiv:2411.06919* (2024).
- [211] D. Poulin, R. Blume-Kohout, R. Laflamme, and H. Ollivier, Exponential speedup with a single bit of quantum information: Measuring the average fidelity decay, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 177906 (2004).
- [212] P. W. Shor and S. P. Jordan, Estimating Jones polynomials is a complete problem for one clean qubit, *Quantum Info. Comput.* **8**, 681 (2008).

REFERENCES

- [213] D. K. Park, J.-K. K. Rhee, and S. Lee, Noise-tolerant parity learning with one quantum bit, *Phys. Rev. A* **97**, 032327 (2018).
- [214] B. Criger, G. Passante, D. Park, and R. Laflamme, Recent advances in nuclear magnetic resonance quantum information processing, *Phil. Trans. R. Soc. A* **370**, 4620 (2012).
- [215] J. Li, Z. Luo, T. Xin, H. Wang, D. Kribs, D. Lu, B. Zeng, and R. Laflamme, Experimental implementation of efficient quantum pseudorandomness on a 12-spin system, *Phys. Rev. Lett.* **123**, 030502 (2019).
- [216] Park, Kyungdeock, *Coherent control of nuclear and electron spins for quantum information processing*, Ph.D. thesis (2015).
- [217] D. Lu, A. Brodutch, J. Park, H. Katiyar, T. Jochym-O'Connor, and R. Laflamme, Nmr quantum information processing, in *Electron Spin Resonance (ESR) Based Quantum Computing*, edited by T. Takui, L. Berliner, and G. Hanson (2016) pp. 193–226.
- [218] C. Qiu, X. Nie, and D. Lu, Quantum simulations with nuclear magnetic resonance system, *Chin. Phys. B* **30**, 048201 (2021).
- [219] K. Siudzińska, S. Chakraborty, and D. Chruściński, Interpolating between positive and completely positive maps: A new hierarchy of entangled states, *Entropy* **23**, 625 (2021).
- [220] J. Bae and L.-C. Kwek, Quantum state discrimination and its applications, *J. Phys. A: Math. Theor.* **48**, 083001 (2015).
- [221] H. Liu, T. Hur, S. Zhang, L. Che, X. Long, X. Wang, K. Huang, Y.-a. Fan, Y. Zheng, Y. Feng, *et al.*, Neural quantum embedding via deterministic quantum computation with one qubit, *Physical Review Letters* **135**, 080603 (2025).
- [222] Y. LeCun, C. Cortes, and C. Burges, MNIST handwritten digit database, ATT Labs [Online]. Available: <http://yann.lecun.com/exdb/mnist> (2010).
- [223] J. Li, X. Yang, X. Peng, and C.-P. Sun, Hybrid quantum-classical approach to quantum optimal control, *Phys. Rev. Lett.* **118**, 150503 (2017).
- [224] D. Lu, K. Li, J. Li, H. Katiyar, A. J. Park, G. Feng, T. Xin, H. Li, G. Long, A. Brodutch, *et al.*, Enhancing quantum control by bootstrapping a quantum processor of 12 qubits, *npj Quantum Inf.* **3**, 45 (2017).
- [225] G. Feng, F. H. Cho, H. Katiyar, J. Li, D. Lu, J. Baugh, and R. Laflamme, Gradient-based closed-loop quantum optimal control in a solid-state two-qubit system, *Phys. Rev. A* **98**, 052341 (2018).
- [226] X. Lin, J. Fan, R. Ye, M. Zhou, Y. Song, D. Lu, and N. Xu, Online optimization for optical readout of a single electron spin in diamond, *Front. Phys.* **18**, 21301 (2023).
- [227] H. Xiao, K. Rasul, and R. Vollgraf, Fashion-MNIST: A novel image dataset for benchmarking machine learning algorithms, *arXiv:1708.07747* (2017).

APPENDIX A 补充内容

A.1 初态非满秩情形下 M 的提取方法

在第四章的因果推断框架中，当 PDM 的初态 $\rho_A = \text{Tr}_B R_{AB}$ 为满秩时，可通过正文中给出的积分公式直接从 PDM 中提取动力学信息。然而，当初态 ρ_A 为非满秩（rank-deficient）时，Jamiołkowski 矩阵 M_{AB} 不再唯一确定^[89;121]。为此，我们提出一种基于半定规划（semidefinite programming, SDP）的算法，旨在从 PDM 中提取使对应 Choi 矩阵 M_{AB}^{TB} 的负性最小的 Jamiołkowski 矩阵 M_{AB} 。

具体而言，给定 PDM 的闭合形式

$$R_{AB} = \frac{1}{2} (\rho_A \otimes \mathbb{I}_B) M_{AB} + \frac{1}{2} M_{AB} (\rho_A \otimes \mathbb{I}_B), \quad (\text{A-1})$$

我们构造如下半定规划问题：

$$\begin{aligned} & \text{minimize } \text{Tr } M_-^{TB} \\ & \text{subject to } \begin{cases} M = M^\dagger, \\ R = (\rho \otimes \mathbb{I})M + M(\rho \otimes \mathbb{I}), \\ M^{TB} = M_+^{TB} - M_-^{TB}, \\ \text{Tr}_B M = \mathbb{I}_B, \\ M_+^{TB} \geq 0, \quad M_-^{TB} \geq 0. \end{cases} \end{aligned} \quad (\text{A-2})$$

其中， M_+^{TB} 和 M_-^{TB} 分别为 Choi 矩阵 M^{TB} 的正部与负部分解。目标函数 $\text{Tr } M_-^{TB}$ 的最小化确保所得 Choi 矩阵的负性尽可能小，从而给出与实验数据最为相容的动力学描述。

上述 SDP 问题可在任何支持凸优化与偏转置运算的数值计算平台上求解。在本工作中，我们使用 Matlab 环境，并借助 CVX 工具包（用于凸优化）和 QETLAB 工具包（用于实现偏转置与偏迹等量子信息运算）来建立和求解该问题。

对应的 Matlab 函数 `causalinfer` 实现如下：

```

1  function N = causalinfer(R,d)
2  rho = kron(PartialTrace(R,2,[d,d]), eye(d));
3  cvx_begin sdp
4      variable Np(d*d,d*d) hermitian
5      variable Nn(d*d,d*d) hermitian
6      N = Np - Nn;
7      Nptp = PartialTranspose(Np,1,[d,d]);
8      Nntp = PartialTranspose(Nn,1,[d,d]);
9      minimize( trace(Nntp) )
10     0.5*(rho*N + N*rho) == R;
11     PartialTrace(N,2,[d,d]) == eye(d);
12     Nptp >= 0;
13     Nntp >= 0;
14  cvx_end
15  N = N + zeros(d*d);
16  end

```

Listing A-1 初态非满秩情形下从 PDM 提取 Jamiołkowski 矩阵的 SDP 求解代码

其中,输入参数 R 为实验重构得到的 PDM, d 为单个子系统的维度。调用 `causalinfer(R,d)` 即可获得 SDP 的最优解及对应的 Jamiołkowski 矩阵 M 。

ACKNOWLEDGEMENTS

时光飞逝，转眼之间，我已经在课题组度过了六年。回头看这段并不算短的岁月，实验室里熬过的夜、讨论中过的招、一次次修改过的文稿、一次次推倒又重来的方案，都已经沉淀成了博士阶段最珍贵的记忆。能够走到今天，绝非一人之力。我心中有太多需要感谢的人。首先，我要衷心感谢鲁大为老师。六年来，鲁老师不仅在学术上给予我悉心指导，更在为人处世、待人接物上给我很多影响。在我看来，鲁老师是一位真正很好的老师：他对每个学生都很关心，很有耐心，也始终保持着年轻的活力与热情，没有居高临下的距离感，也从不拘泥刻板。无论是在科研遇到困难的时候，还是在状态低落、思路混乱的时候，鲁老师总能给予我鼓励、包容和方向。能在科研阶段遇到这样的老师，是我的幸运。

同时，我还要特别感谢聂新芳师姐。虽名为师姐，但在我的博士阶段里，聂师姐更像是我的“半个导师”。从很多具体问题的讨论，到科研思路的梳理，再到日常中的帮助和照顾，她都给了我非常多支持。许多时候，正是因为有她的耐心指点和真诚鼓励，我才能一步步走下来。对这份帮助，我始终心怀感激。

感谢课题组的同学们，组里唯一的师妹冯玉芳，已经毕业的、常常和我在办公室谈天说地的席成；聪明靠谱的黄克毅；一起入学、一起努力走过这段岁月的王翔宇和车良宇；在碳化硅方向并肩前行的樊宇昂和郑宇轩，还有徐从宇、杜鹏、Carlos、朱炫然、马义元，以及已经毕业的龙新月师姐，是你们让这六年的时光有了更多温度与色彩。和大家一起共事、交流、合作的日子，构成了我博士生活中最鲜活的一部分。那些看似平常的聊天、吐槽、讨论和互相帮忙，很多年后回想起来，想必都会是很温暖的片段。

我也要特别感谢已经毕业的刘祥境师兄。他是我科研道路上的引路人之一，也是我重要的合作者。很多最初的启发、许多关键的帮助，我都一直记得。与此同时，也感谢刘振寰同学还有一路以来给予我帮助的其他合作者。科研从来不是孤独的单打独斗，一篇文章、一个结果、一次进步的背后，往往都凝聚着许多人的智慧、耐心与支持。

写到这里，我也很想感谢那个最初因为“喜欢”而选择物理的自己。人们热爱物理，也许并不总是因为要亲自成为伟大的科学家，而是因为仅仅是去聆听那些

关于宇宙、时间、光、物质与规律的故事，就已经足够令人满足。那些隐藏在纷繁现象背后却又异常简洁、优美的定律，总让人由衷感到震撼。曾经我在知乎上看到过一个问题：“28岁富士康打工，看完《奥本海默》突然想学理论物理，可行吗？”那条回答让我十分感动，也一直记到了今天。回答者没有一上来就挖苦讽刺，而是说这个想法非常好。然后他认真出谋划策，推荐提问者可以先从什么书看起。最后他说，“抛开功利心，埋头读自然科学，思想在宇宙间遨游，这种快乐超越了物欲，超脱了世俗，是一种很爽的感受。不一定要做出什么成就，只是知道了，就是一种享受。人活一世，就是为了来看看，客观地欣赏万事万物凑在一起呈现出来的巧妙绝伦。”我也想将这份感动分享给读到这里的人。因为对我来说，物理最初吸引我的，也正是这样一种超越功利、只是单纯想去理解世界的快乐。

最后，我要感谢我的父母和家人。是你们始终如一的包容、理解和支持，给了我安心前行的底气。无论顺境逆境，你们始终站在我身后，让我知道自己永远有所依靠。我也要感谢一直陪伴在我身边的好朋友们，感谢你们在我疲惫、迷茫、焦虑和开心的时候都在，让这段漫长的求学岁月不至于单调与孤独。

最后的最后，我最想感谢我的另一半。谢谢你一路以来的陪伴、理解与守护。我们一起走过了许多地方，也曾在无数个深夜分享彼此内心最真实的想法。于我而言，你不只是爱人，更是我一生的灵魂伴侣。能与你并肩走过人生，是我最大的幸运。更让我感到幸福的是，在博士旅程即将画上句号的时候，我也终于能与你携手走入人生新的阶段。

谨以此文，献给所有帮助过我、陪伴过我、相信过我的人。

RESUME AND ACADEMIC ACHIEVEMENTS

个人简历

1997 年 10 月 08 日出生于广东省深圳市。

2016 年 8 月在深圳大学物理与光电学院物理学（师范）专业，2020 年 7 月本科毕业并获得理学学士学位。

2020 年 9 月在南方科技大学物理系物理学专业，2023 年 7 月获得学术型硕士研究生学位。

2023 年 9 月在南方科技大学物理系，学习并攻读物理学博士学位。

获奖情况：

- 1、2025 年博士研究生国家奖学金。
- 2、2025 年南方科技大学比亚迪奖学金。
- 3、2024 优秀研究生（校级）。
- 4、南方科技大学理学院十佳毕业生。

在学期间完成的相关学术成果

(*: 同等贡献; †: 通讯作者)

学术论文

- [1] **H. F. Liu***, T. Hur*, S. T. Zhang*, L. Y. Che, X. Y. Long, X. Y. Wang, K. Y. Huang, Y.-A. Fan, Y. X. Zheng, Y. F. Feng, Y. Zhou, J. Ng, X. F. Nie, D. K. Park[†] and D. W. Lu[†], Neural quantum embedding via deterministic quantum computation with one qubit, **Phys. Rev. Lett.** **135**, 080603 (2025).
- [2] **H. F. Liu***, Z. H. Liu*, S. Chen, X. F. Nie[†], X. J. Liu[†], and D. W. Lu[†], Certifying quantum temporal correlation via randomized measurements: theory and experiment, **Phys. Rev. Lett.** **134**, 040201 (2025).
- [3] **H. F. Liu***, X. J. Liu*, Q. Chen, Y. X. Qiu, V. Vedral, X. F. Nie[†], O. Dahlsten[†], and D. W. Lu[†], Experimental demonstration of quantum causal inference via noninvasive measurements, arXiv:2411.06051 (2024).
- [4] **H. F. Liu***, X. J. Liu*, Q. Chen, Y. X. Qiu, V. Vedral, X. F. Nie[†], O. Dahlsten[†], and D. W. Lu[†], Quantum causal inference via scattering circuits in NMR, arXiv:2411.06052 (2024).

- [5] **H. F. Liu***, Z. Z. Han*, X. F. Nie[†], Z. H. Liu[†], and D. W. Lu[†], Realizing universal non-Markovian noise suppression, arXiv:2511.20304 (2025).
- [6] **H. F. Liu**, X. D. Yang[†], K. Tang, L. Y. Che, X. F. Nie, T. Xin, J. Li, and D. W. Lu[†], Practical quantum simulation of small-scale non-Hermitian dynamics, **Phys. Rev. A** **107**, 062608 (2023).
- [7] Z. D. Lin*, **H. F. Liu***, K. Tang*, Y. D. Liu*, L. Y. Che, X. Y. Long, X. Y. Wang, Y.-A. Fan, K. Y. Huang, X. D. Yang, T. Xin, X. F. Nie[†], and D. W. Lu[†], Hardware-efficient quantum principal component analysis for medical image recognition, **Front. Phys.** **19**, 51202 (2024).
- [8] Y. X. Zheng*, X. F. Nie[†], **H. F. Liu***, Y. T. Luo, D. W. Lu[†] and X. J. Liu[†], Experimental virtual quantum broadcasting, **Phys. Rev. A** **111**, L060402 (2025).
- [9] K. Y. Huan*, Q. Zhang*, X. J. Liu*, R. Q. Li, X. Y. Long, **H. F. Liu**, X. Y. Wang, Y.-A. Fan, Y. X. Zheng, Y. F. Feng, Y. Zhou, J. Ng, X. F. Nie, Z.-X. Man[†] and D. W. Lu[†], Reversing heat flow by coherence in a multipartite quantum system, **Phys. Rev. Lett.** **136**, 050403 (2026).
- [10] R. Liu, X. D. Yang[†], X. Lv, X. Y. Long, **H. F. Liu**, D. W. Lu[†], Y. Dong[†], and J. Li[†], Experimental realization of quantum Zeno dynamics for robust quantum metrology, **Phys. Rev. Lett.** **135**, 250805 (2025).
- [11] K. Y. Huang, C. Xi, X. Y. Long, **H. F. Liu**, Y.-A. Fan, X. Y. Wang, Y. X. Zheng, Y. F. Feng, X. F. Nie[†] and D. W. Lu[†], Experimental realization of self-contained quantum refrigeration, **Phys. Rev. Lett.** **132**, 210403 (2024).
- [12] C. Xi*, X. J. Liu*, **H. F. Liu**, K. Y. Huang, X. Y. Long, D. Ebler, X. F. Nie[†], O. Dahlsten[†], and D. W. Lu[†], Experimental validation of enhanced information capacity by quantum switch in accordance with thermodynamic laws, **Phys. Rev. Lett.** **133**, 040401 (2024).
- [13] X. F. Nie*, X. Zhu*, Y.-A. Fan, X. Long, **H. F. Liu**, K. Huang, C. Xi, L. Che, Y. Zheng, Y. Feng, X. Yang, and D. W. Lu[†], Self-consistent determination of single-impurity Anderson model using hybrid quantum-classical approach on a spin quantum simulator, **Phys. Rev. Lett.** **133**, 140602 (2024).
- [14] Y. F. Feng*, X. Y. Long[†], **H. F. Liu**, X. Y. Wang, K. Y. Huang, Y.-A. Fan, Y. X. Zheng, J. Ng, X. F. Nie[†] and D. W. Lu[†], Toward nuclear physics on a spin quantum simulator by detecting quantum phase transitions in the Agassi model, **Front. Phys.** **20**, 53201 (2025).
- [15] Y.-A. Fan*, X. Li*, S. J. Wei*, Y. S. Li, X. Y. Long, **H. F. Liu**, X. F. Nie, J. Ng[†] and D. W. Lu[†], Solving non-Hermitian physics for optical manipulation on a quantum computer, **Light: Sci. Appl.** **14**, 132 (2025).
- [16] Y. Q. Li, **H. F. Liu**, D. W. Lu[†], and C. L. Ren[†], Stable and high-precision 3D positioning via tunable composite-dimensional Hong-Ou-Mandel interference, **Phys. Rev. Lett.** **135**, 260804 (2025).