arXiv:2302.04822v1 [physics.comp-ph] 9 Feb 2023

采用绝热交换-相关核的温稠密物质线性响应含时密度泛函理论方法

Zhandos A. Moldabekov, [1, 2, *] Michele Pavanello, [3,4]
Maximilian P. B¨ohme, [1,2,5] Jan Vorberger, [2] 和 Tobias Dornheim[1,2]

[1] *Center for Advanced Systems Understanding (CASUS) D-02826 Görlitz Germany , , , ,*
[2] *Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf (HZDR) D-01328 Dresden Germany*
[3] *Department of Chemistry, Rutgers University, 73 Warren St., Newark, NJ 07102, USA*
[4] *Department of Physics, Rutgers University, 101 Warren St., Newark, NJ 07102, USA*
[5] *Technische Universität Dresden, D-01062 Dresden, Germany*

我们提出了一种新的线性响应含时密度泛函理论（LR-TDDFT）方法，用于在绝热近似下计算温稠密物质的动态密度响应函数。该方法可与Jacob阶梯中的任意可用交换-相关（XC）泛函结合使用，并适用于不同温度区间。所提出方法的主要创新在于，在扩展体系中保持Kohn-Sham（KS）响应函数与绝热交换-相关核之间自洽性的同时，能够超越绝热局域密度近似（ALDA）和广义局域密度近似（AGGA）。该方法的关键在于，将直接微扰方法得到的绝热交换-相关核，与采用Kohn-Sham轨道的标准线性响应含时密度泛函理论方法所得到的宏观动态科恩-沈响应相结合。我们以温稠密氢为例展示了该方法的应用，并对Kohn-Sham密度响应函数、随机相位近似（RPA）结果、总密度响应函数以及绝热交换-相关核进行了详细分析。分析采用了局域密度近似（LDA）、广义梯度近似（GGA）和元广义梯度近似（meta-GGA）层次的交换-关联效应近似。所提出的方法可直接应用于液态金属、温稠密物质和高密度等离子体等无序系统。

一、引言

温稠密物质（WDM）与诸多应用相关，例如惯性约束聚变（ICF）[1, 2], 、实验室天体物理学 [3, 4], 以及极端条件下的材料科学 [5–7]。温稠密物质可在实验中产生，例如通过激光加热和/或冲击压缩，在美国国家点火装置（NIF） [1, 2, 8], 、欧洲X射线自由电子激光（XFEL） [9], 以及SLAC国家加速器实验室的直线加速器相干光源（LCLS） [10]等设施中实现。在自然界中，温稠密物质存在于白矮星 [11, 12] 和巨行星 [13, 14], 的内部，以及中子星 [15]的外层。在各种可能的原子组成中，温稠密氢尤为重要。事实上，氢是宇宙中最丰富的元素，其同位素被用作惯性约束聚变中的热核燃料。近期，惯性约束聚变研究取得了突破性进展：研究人员检测到，聚变反应产生的净能量超过了启动聚变过程所消耗的能量。这使得了解温稠密氢的性质，以及开发可靠的温稠密物质研究方法 [16–18], ，具有普遍的重要意义。

在温稠密物质实验以及前述天体物理对象所达到的极端温度和密度下，电子呈现部分简并并具有强关联性。就温度和密度而言，温稠密物质处于固态物质与高密度等离子体之间。这一点也反映在用于温稠密物质研究的理论方法上 [18], ，其中一些方法将在本文中讨论。与固体物理学和等离子体物理学相比，温稠密物质是一个相对较新的领域，因此用于描述温稠密物质的理论方法仍处于积极发展的阶段。在现有方法中，第一性原理 方法，例如量子蒙特卡罗（QMC） [16, 19–21] 和热密度泛函理论（DFT） [18, 22–24] ，对于可靠描述实验结果以及为新的实验发展提供指导尤为重要。

线性响应理论（LRT）是描述多粒子系统的主要理论之一。尽管线性响应理论的基本原理具有普适性，但在固体物理学、温稠密物质研究和等离子体物理学中，其表述方式略有不同，关注的物理特征也各不相同。一方面，温稠密物质通常是无序的，不像固体那样具有对称性和明确的晶体结构。另一方面，强烈的电子-离子和电子-电子关联使得微观密度不均匀性无法忽略，而在等离子体中通常可以忽略这些不均匀性。此外，对于温稠密物质，获取波数与费米波数相当或更大的波数下的密度响应性质至关重要，因为 X 射线汤姆孙散射（XRTS）技术会探测这类波数 [25, 26], ；该技术是温稠密物质诊断方法的主要手段之一 [27–30]。在将为固体或等离子体开发的工具用于温稠密物质研究时，清楚理解这些方面至关重要。

这类工具的一个重要例子是线性响应含时密度泛函理论（LR-

* z.moldabekov@hzdr.de

TDDFT）方法。线性响应含时密度泛函理论可以用于计算各种电子光学性质和输运性质 [31]。基于线性响应含时密度泛函理论进行描述的关键量是密度响应函数。事实上，准确计算密度响应函数是暖密质理论的主要问题之一 [18, 32]。

与密度响应函数密切相关的一个量是交换-关联（XC）核，它可以定义为交换-关联势相对于密度的泛函导数 [33]。交换-关联核是利用线性响应含时密度泛函理论计算密度响应函数的关键要素之一。近期，Moldabekov 等 [34] 提出了一种方法，可在 KS-密度泛函理论中使用任意可用的交换-关联泛函计算静态（绝热）交换-关联核。该方法适用于平均而言均匀的无序系统，例如温稠密物质、致密等离子体和液态金属。该方法基于用静态谐波势对系统进行直接微扰 [18, 35–39]。比较微扰与未微扰情形下的密度差异，即可提取静态密度响应函数。随后，将该静态密度响应函数与参考非相互作用密度响应函数结合，以计算静态交换-关联核。静态交换-关联核在线性响应含时密度泛函理论中的主要用途是计算密度响应函数。然而，此前尚不清楚如何在线性响应含时密度泛函理论框架中使用直接微扰方法得到的静态交换-关联核。本文针对温稠密物质等无序系统，提出了一种一致的线性响应含时密度泛函理论方法，该方法基于通过直接微扰方法获得的绝热（静态）交换-相关核。

作为主要成果，我们提出了一套清晰的方案，将线性响应含时密度泛函理论与直接微扰法相结合，计算线性密度响应函数。在这一框架下，线性响应含时密度泛函理论用于计算宏观 Kohn-Sham 响应函数，并考虑离子诱导的密度非均匀性（局域场效应 [40, 41]）；直接微扰法则可用于求取任意交换-关联泛函的静态交换-关联核。结合这两项，我们可以计算温稠密物质的宏观线性密度响应函数。我们将这一联合流程用于研究温稠密氢的密度响应性质和交换-关联核。我们对密度响应函数、Kohn-Sham（KS）响应函数及其在随机相位近似（RPA）下的屏蔽形式，以及交换-关联（XC）核进行了详细的数值研究。为深入了解交换-关联效应的作用，我们采用了局域密度近似（LDA）、广义梯度近似（GGA）和元广义梯度近似层次上的交换-关联泛函。尽管我们主要关注温稠密物质应用，但所提出的流程也适用于任何平均而言均匀的无序系统。

本文结构如下：首先介绍线性响应含时密度泛函理论的理论背景、其在线性响应理论中的应用（适用于等离子体等均匀体系），以及第II节中的直接微扰方法II；在第 II 节末，我们基于直接微扰方法得到的静态交换-关联核，构建密度响应函数的绝热近似。参数和模拟细节见第III节，并在第IV节以温稠密氢为例，展示所开发方法的应用。最后，本文总结主要研究发现，并简要展望未来的应用。

II. 理论背景

目前，人们采用不同的表述和方法来计算并描述温稠密物质中电子的线性密度响应函数。首先是标准的线性响应含时密度泛函理论方法。该方法采用基于 Kohn-Sham（KS）轨道的 Kohn-Sham（KS）密度响应函数，以及交换-相关核 [42]。在这种情况下，离子对电子的影响通过离子诱导的密度非均匀性（局域场效应）同时纳入 KS响应函数和交换-相关核中。另一种常用方法最初为致密等离子体物理学而发展，其基础是理想 Lindhard响应函数和所谓的局域场修正 [43],，后者纳入了林德哈德函数中缺失的所有其他效应（不要与线性响应含时密度泛函理论中的局域场效应混淆）[32, 44–46]。这不仅是等离子体物理学中的标准方法，也常用于均匀电子液体的量子理论 [43, 47]。从计算角度来看，线性响应含时密度泛函理论的另一种替代方法是施加外场进行直接微扰，以测量响应函数；该函数将扰动场与其诱导的密度变化联系起来 [48–50]。这些用于描述动态密度响应函数的不同表述和方法已广泛应用于温稠密物质研究 [39, 51–54]。然而，在许多方面，它们之间的联系尚未得到清晰的阐述和理解。

本工作的主要目标是为温稠密物质建立一种一致的线性响应含时密度泛函理论方法，该方法基于文献 [34] 中介绍的直接微扰方法所得到的绝热（静态）交换-相关核。我们将首先讨论线性响应含时密度泛函理论中的动态介电函数，随后介绍高密度等离子体物理中所用的线性响应理论，以及求取静态交换-关联核的直接微扰方法。这样，我们便能清晰阐明这些方案之间的联系，并给出一种方案，用于在雅各布斯阶梯的任意一级上，采用绝热交换-关联核计算温稠密物质的宏观密度响应。

A. 基于线性响应含时密度泛函理论的动态介电函数

我们先简要总结后续讨论所需的线性响应含时密度泛函理论内容，以便进一步探讨后者与直接微扰方法之间的联系。

动量$\mathbf{k}$ 和能量 ω下的微观动态介电函数，可用微观密度响应函数表示为 [42]

$$\varepsilon^{-1}_{\mathbf{G},\mathbf{G}'}(\mathbf{k},\omega) = \delta_{\mathbf{G},\mathbf{G}'} + \frac{4\pi}{|\mathbf{k}+\mathbf{G}|^2}\chi_{\mathbf{G},\mathbf{G}'}(\mathbf{k},\omega), \quad (1)$$

其中$\mathbf{k}$ 是限制在第一布里渊区内的波矢，$\mathbf{G}$ 和$\mathbf{G}'$ 是倒格矢。

密度响应矩阵的傅里叶系数 $\chi_{\mathbf{G},\mathbf{G}'}(\mathbf{k}\ \omega)$ 通过 Dyson 型方程 [55–57]计算：

$$\chi_{\mathbf{G}\mathbf{G}'}(\mathbf{k},\omega) = \chi^0_{\mathbf{G}\mathbf{G}'}(\mathbf{k},\omega) + \sum_{\mathbf{G}_1\mathbf{G}_2}\chi^0_{\mathbf{G}\mathbf{G}_1}(\mathbf{k},\omega)\big[v_{\mathbf{G}_1}(\mathbf{k})\delta_{\mathbf{G}_1\mathbf{G}_2} + K^{\mathrm{xc}}_{\mathbf{G}_1\mathbf{G}_2}(\mathbf{k},\omega)\big]\chi_{\mathbf{G}_2\mathbf{G}'}(\mathbf{k},\omega), \quad (2)$$

其中 $\chi^{\ 0}{}_{\mathbf{G},\mathbf{G}'}(\mathbf{k}\ \omega)$ 是非相互作用密度响应函数，$v_{\mathbf{G}_1}(\mathbf{k}) = 4\pi/|\mathbf{k}+\mathbf{G}_1|^2$ 是库仑势，而 $K^{\mathrm{xc}}{}_{\mathbf{G}_1,\mathbf{G}_2}(\mathbf{k}\ \omega)$ 是交换-相关核。非相互作用密度响应函数$\chi^{\ 0}{}_{\mathbf{G},\mathbf{G}'}(\mathbf{k}\ \omega)$ 通过平衡态 [58]的 KS-密度泛函理论计算所得的 KS轨道及相应能量本征值计算得到。

式（2）中的交换-关联核有许多种近似方法，本文不作讨论（更多信息参见文献 [55, 59] ）。我们仅指出，交换-关联核定义为交换-关联势关于密度的泛函导数[42]。

本文考察的一种常用交换-关联核近似是绝热（静态）近似 $K^{\mathrm{xc}}{}_{\mathbf{G}_1,\mathbf{G}_2}(\mathbf{k}) = K^{\mathrm{xc}}{}_{\mathbf{G}_1,\mathbf{G}_2}(\mathbf{k}\ \omega = 0)$。对于采用布里渊区采样的扩展系统，目前尚无法通过交换-关联势的泛函导数，在绝热局域密度近似（ALDA）和广义梯度近似（AGGA）之外计算 $K^{\mathrm{xc}}{}_{\mathbf{G}_1,\mathbf{G}_2}(\mathbf{k})$ [55]。这里所指的是自洽计算，即交换-关联核与用于平衡态 KS-密度泛函理论模拟的交换-关联泛函完全相容。

系统对波矢为 $\mathbf{q} = \mathbf{k} + \mathbf{G}$ 的单色外部微扰（注意，$\mathbf{q}$ 不像 $\mathbf{k}$，不受第一布里渊区的限制）1所描述的响应，例如在 X 射线汤姆孙散射诊断中，可由微观动态介电函数的值给出，其中 $\mathbf{G} = \mathbf{G}'$ ($\mathbf{G} = \mathbf{G}' = 0$（若 $\mathbf{q}$ 位于第一布里渊区内） [57, 60]:

$$\varepsilon_M(\mathbf{q},\omega) = \frac{1}{1+\frac{4\pi}{|\mathbf{q}|^2}\chi_{\mathbf{G}\mathbf{G}}(\mathbf{k},\omega)}. \quad (3)$$

此外，按照线性响应时变密度泛函理论术语，我们将描述系统对外部宏观扰动响应的物理性质称为宏观性质；例如 $\varepsilon_M(\mathbf{q}\ \omega)$。

随机相位近似（RPA）可通过在方程（ $K^{\mathrm{xc}}{}_{\mathbf{G}_1,\mathbf{G}_2}(\mathbf{k}\ \omega) = 0$ 中令 2 ）：

$$\chi^{\mathrm{RPA}}_{\mathbf{G}\mathbf{G}'}(\mathbf{k},\omega) = \chi^0_{\mathbf{G}\mathbf{G}'}(\mathbf{k},\omega) + \sum_{\mathbf{G}_1}\chi^0_{\mathbf{G}\mathbf{G}_1}(\mathbf{k},\omega)\frac{4\pi}{|\mathbf{k}+\mathbf{G}_1|^2}\chi^{\mathrm{RPA}}_{\mathbf{G}_1\mathbf{G}'}(\mathbf{k},\omega), \quad (4)$$

因此，RPA 下的宏观介电函数为：

$$\varepsilon^{\mathrm{RPA}}_M(\mathbf{q},\omega) = \frac{1}{1+\frac{4\pi}{|\mathbf{q}|^2}\chi^{\mathrm{RPA}}_{\mathbf{G}\mathbf{G}}(\mathbf{k},\omega)}. \quad (5)$$

接下来，我们讨论线性响应理论的表述方式，该方式适用于温稠密物质和致密等离子体等均匀体系。

B. 等离子体物理学中的线性密度响应理论

在线性响应含时密度泛函理论中，离子被视为影响电子性质的外部场。相比之下，等离子体的线性响应理论通常会考虑离子和电子对外部微扰的响应 [61]。为了与线性响应含时密度泛函理论采用相同层次的描述，我们考虑离子固定时电子的响应。值得注意的是，当微扰作用时间远短于离子的响应时间时，这种处理是合理的，因为与电子相比，离子的惯性大得多 [62]。

均匀系统中电子的介电函数可用电子密度响应函数 $\chi(\mathbf{q}\ \omega)$ 表示，形式如下 [47]:

$$\varepsilon^{-1}(\mathbf{q},\omega) = 1 + v(q)\chi(\mathbf{q},\omega), \quad (6)$$

其中 $v(q) = 4\pi/q^2$。

在电子液体量子理论和致密等离子体物理学中，通常用理想响应函数和交换-关联核 [47, 61, 63] 来表示密度响应函数：

$$\chi(\mathbf{q},\omega) = \frac{\chi_0(\mathbf{q},\omega)}{1-[v(q)+K_{\mathrm{xc}}(\mathbf{q},\omega)]\,\chi_0(\mathbf{q},\omega)}, \quad (7)$$

其中 $\chi_0(\mathbf{q}\ \omega)$ 是参考非相互作用密度响应函数，而交换-关联核通常用所谓的局域场修正（LFC）来定义：

$$K_{\mathrm{xc}}(\mathbf{q},\omega) = -v(q)G(\mathbf{q},\omega)\ . \quad (8)$$

我们注意到，对于均匀电子气（UEG），式（7）中的交换-关联核与线性响应含时密度泛函理论中的交换-关联核相同。然而，一般而言，对于经过不同离子构型平均后可视为均匀的无序系统——例如

温稠密物质、稠密等离子体和液态金属——尚未有人明确阐明式（7）中的交换-关联核与线性响应含时密度泛函理论中的微观交换-关联核（例如式（2））之间的联系。

随机相位近似下的介电函数可通过令$K_{\rm xc}(\mathbf{q}\ \omega)\ =0$为式（7）中的量，并将所得的$\chi(\mathbf{q}\ \omega)$代入式（6）得到：

$$\varepsilon_{\rm RPA}(\mathbf{q},\omega)=1-v(q)\chi_0(\mathbf{q},\omega). \tag{9}$$

在等离子体物理学应用中，通常使用林德哈德函数（温度相关版本）作为 $\chi_0(\mathbf{q}\ \omega)$，并根据自由电子气模型 [44, 61] 近似 $G(\mathbf{q}\ \omega)$。

对于温稠密物质应用，通常会显式地将电子-离子相互作用对 $\varepsilon(\mathbf{q}\ \omega)$ 的修正纳入所谓的广义Mermin模型 [25, 44, 64–66]，其形式为电子-离子碰撞频率。需要指出的是，该模型同样基于温度相关的林德哈德函数和 $G(\mathbf{q}\ \omega)$。当系统的组成可划分为定义明确的物种（如自由电子、离子和中性原子）时，可使用 $\chi_0(\mathbf{q}\ \omega)$ 的林德哈德函数。等离子体通常符合这种情况，其中会使用诸如Saha方程的化学模型来计算自由电子密度 [67]。然而，在温稠密物质中，通常无法明确区分自由电子和束缚电子，因此，任何基于林德哈德函数（即自由电子气）的概念都需要引入有效自由电子密度（或有效电离度）。这通常被用作拟合参数，以描述实验XRTS数据 [25, 64–66]。我们进一步指出，有效自由电子密度也用于基于某种自由电子气模型计算 $G(\mathbf{q}\ \omega)$。相比之下，第II A节所述的线性响应含时密度泛函理论方法不需要有效自由电子密度。此外，在线性响应含时密度泛函理论中，电子-离子相互作用效应通过微观密度不均匀性和KS轨道隐式地纳入。因此，非常有必要改写式（7），不再使用林德哈德函数以及自由电子气的 $G(\mathbf{q}\ \omega)$（等价地，$K_{\rm xc}(\mathbf{q}\ \omega)$），而改用线性响应含时密度泛函理论中的某种 $\chi_0(\mathbf{q}\ \omega)$ 和 $K_{\rm xc}(\mathbf{q}\ \omega)$。在介绍如何在KS-密度泛函理论计算中利用谐波微扰计算静态交换-关联核和KS响应函数之后，我们将进行这一改写。

C. 直接扰动方法得到的静态 XC 核

直接微扰方法基于对受外部谐势 [48, 49, 58]扰动的系统进行 KS-DFT 模拟。相应的电子哈密顿量为 [18, 35, 36, 38]

$$\hat{H}_{\mathbf{q},A}=\hat{H}_e+2A\sum_{j=1}^{N}\cos\left(\mathbf{q}\cdot\hat{\mathbf{r}}_j\right)\ , \tag{10}$$

其中，H_e 是未扰动系统的哈密顿量。静态外部势由其波矢$\mathbf{q}$ 和振幅 A定义。关于时变外部势一般情形的讨论，参见文献 [18]。

通过模拟未受扰动的（$A=0$）和受扰动的（$A\neq0$）系统，可以求得单电子密度的变化：

$$\Delta n_e(\mathbf{r})_{\mathbf{q},A}=\langle n_e(\mathbf{r})\rangle_{\mathbf{q},A}-\langle n_e(\mathbf{r})\rangle_{A=0}\ . \tag{11}$$

在温稠密物质实验中，XRTS测量是在宏观物体上进行的。对于宏观无序系统，X射线探针从统计意义上“看到”的是大量原子位置构型的集合。因此，实际操作中，我们沿给定方向扰动系统，并计算沿所有其他方向的平均值$\langle\ldots\rangle$ 。根据系统温度和密度，可能还需要对不同的原子构型进一步取平均。需要指出的是，这并不意味着我们忽略了局域场效应（见第 II D 节）。对于这类无序系统，密度傅里叶分量对 $\Delta n_e(\mathbf{r})_{\mathbf{q},A}$ 在 $\mathbf{q}+\mathbf{G}$、$\mathbf{q}+2\mathbf{G}$ 等处的贡献可以忽略 [34]。从物理上说，这一点显而易见：对于无序系统（如熔融金属），$\mathbf{G}$ 并不表示布拉菲格子的傅里叶变换，而是由周期性边界条件（其中 $|\mathbf{G}|=2\pi/L$）引入，并导致一定的有限尺寸效应；我们将在第 III 节和第 IV 节讨论这一点。此外，如果扰动幅度 A 足够小，也可以忽略非线性响应项在 $2\mathbf{q}$、$3\mathbf{q}$ 等处导致的高次谐波激发 [39, 68, 69]。因此，根据关系式 [69]，静态极限下诱导密度变化由线性密度响应函数 $\chi(\mathbf{q})=\chi(\mathbf{q}\ \omega=0)$ 描述

$$\Delta n_e(\mathbf{r})_{\mathbf{q},A}=2A\cos\left(\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}\right)\chi(\mathbf{q})\ . \tag{12}$$

类似地，静态 KS响应函数描述电子密度对 KS势变化的响应：

$$\Delta n_e(\mathbf{r})_{\mathbf{q},A}=\chi_{\rm KS}(\mathbf{q})\Delta v_{\rm KS}(\mathbf{r})_{\mathbf{q},A}\ , \tag{13}$$

其中，$\Delta v_{\rm KS}(\mathbf{r})_{\mathbf{q},\ A}$ 表示外部微扰引起的 KS势变化：

$$\Delta v_{\rm KS}(\mathbf{r})_{\mathbf{q},A}=\langle v_{\rm KS}(\mathbf{r})\rangle_{\mathbf{q},A}-\langle v_{\rm KS}(\mathbf{r})\rangle_{A=0}\ . \tag{14}$$

因此，直接微扰方法能够获得均匀系统的宏观密度响应函数和 KS响应函数。我们再次强调，该方法适用于任何平均而言呈均匀态的无序系统；例如，对原子构型系综（快照）进行平均后得到的系统。

现在，我们可以设定 $\chi_0(\mathbf{q}\ \omega)\ =\ \chi_{\rm KS}(\mathbf{q}\ \omega)$，并对式（7）求逆，从而得到均匀系统的静态交换-关联核 [47]：

$$K_{\mathrm{xc}}(\mathbf{q}) = -\left\{v(q) + \left(\frac{1}{\chi(\mathbf{q})} - \frac{1}{\chi_{\mathrm{KS}}(\mathbf{q})}\right)\right\} = \frac{1}{\chi_{\mathrm{RPA}}(\mathbf{q})} - \frac{1}{\chi(\mathbf{q})}, \tag{15}$$

其中，$\chi_{\mathrm{RPA}}(\mathbf{q})$ 是 $\chi_{\mathrm{KS}}(\mathbf{q})$ 的屏蔽形式：

$$\chi_{\mathrm{RPA}}(\mathbf{q},\omega) = \frac{\chi_{\mathrm{KS}}(\mathbf{q},\omega)}{1 - v(q)\chi_{\mathrm{KS}}(\mathbf{q},\omega)}. \tag{16}$$

D. 线性响应含时密度泛函理论与直接微扰方法之间的联系

为获取宏观密度响应函数$\chi(\mathbf{q})$（根据式（12）定义），而无需施加外部谐波微扰，我们将式（3）中的宏观介电函数代入式（6），得到线性响应含时密度泛函理论的 $\chi(\mathbf{q})$：

$$\chi(\mathbf{q},\omega) = \frac{1}{v(q)}\left(\varepsilon_M^{-1}(\mathbf{q},\omega) - 1\right). \tag{17}$$

利用式（17），现在可以通过线性响应含时密度泛函理论计算宏观静态密度响应函数 $\chi(\mathbf{q}) = \chi(\mathbf{q}\ \omega = 0)$，并将其与直接微扰方法得到的 $\chi(\mathbf{q})$进行比较。在第IVA节，我们将展示数值结果，证实直接微扰方法通过式（ $\chi(\mathbf{q})$ 12）得到的结果等价于利用式（17）计算的线性响应含时密度泛函理论结果。

为获取宏观 KS 响应函数 $\chi_{\mathrm{KS}}(\mathbf{q}\ \omega)$（根据式（12）定义），而不施加外部谐势，我们在不使用交换-关联核的情况下进行线性响应含时密度泛函理论计算，并将随机相位近似下的宏观介电函数$\varepsilon_M^{\mathrm{RPA}}(\mathbf{q}\ \omega)$（式（5））代入式（9）：

$$\chi_{\mathrm{KS}}(\mathbf{q},\omega) = \frac{1}{v(q)}\left(1 - \varepsilon_M^{\mathrm{RPA}}(\mathbf{q},\omega)\right). \tag{18}$$

我们注意到，宏观KS响应函数$\chi_{\mathrm{KS}}(\mathbf{q}\ \omega)$由方程（18）引入，其求解涉及Dyson型方程（4）。在线性响应含时密度泛函理论的表述中，这意味着 $\chi_{\mathrm{KS}}(\mathbf{q}\ \omega)$相较于非相互作用密度响应函数 $\chi^0_{GG}(\mathbf{q}\ \omega)$，包含了更多关于离子诱导的密度非均匀性的信息。据我们所知，先前的研究尚未给出方程（18）所定义的宏观KS响应函数。在第IVA节中，我们利用方程（ $\chi_{\mathrm{KS}}(\mathbf{q})$计算 $\chi_{\mathrm{KS}}(\mathbf{q})$，并将其与方程（18）中的 $\chi_{\mathrm{KS}}(\mathbf{q})$进行比较，以表明直接微扰方法得到的宏观静态KS响应函数 $\chi_{\mathrm{KS}}(\mathbf{q})$与线性响应含时密度泛函理论结果一致。

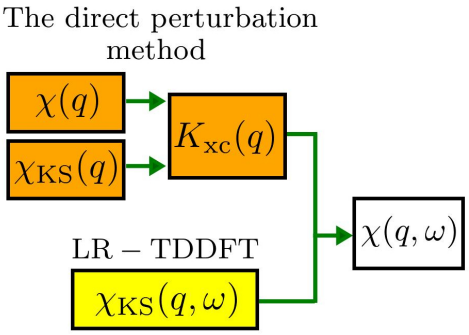


图1. 基于直接微扰方法的绝热（静态）交换-相关核（式（19））以及线性响应含时密度泛函理论中的宏观KS响应函数（式（15））计算宏观密度响应函数的方案（式（18）。所示的自洽计算方案不仅适用于绝热局域密度近似，也适用于Jacob阶梯上的任意交换-关联泛函。

E. 使用一致的静态交换-关联核计算宏观密度响应函数的线性响应时变密度泛函理论计算

线性响应含时密度泛函理论的工作流程需要来自收敛平衡态KS-密度泛函理论模拟的KS轨道。这些轨道与微观交换-相关核 $K^{\mathrm{xc}}{}_{\mathbf{G}_1,\mathbf{G}_2}(\mathbf{q}\ \omega)$一起代入Dyson型方程（2），以计算密度响应函数，其中微观交换-相关核是交换-相关势的一阶泛函导数。一致的线性响应含时密度泛函理论模拟要求微观交换-相关核与用于计算交换-相关势的交换-相关泛函完全兼容。然而，对于扩展体系的线性响应含时密度泛函理论（使用交换-相关势的一阶泛函导数来求得交换-相关核），目前存在这样的限制：一致的模拟只能使用绝热局域密度近似和广义梯度近似微观交换-相关核 [55]来完成。对于宏观密度响应函数和介电函数，我们可以通过将直接微扰方法得到的静态宏观交换-相关核 $K_{\mathrm{xc}}(\mathbf{q})$（方程（19））与由方程（ $\chi_{\mathrm{KS}}(\mathbf{q}\ \omega)$定义的动态宏观KS响应函数 $\chi_{\mathrm{KS}}(\mathbf{q}\ \omega)$相结合，来规避这一限制，适用于平均均匀体系（例如温稠密物质、致密等离子体和液态金属）。

我们对宏观密度响应函数的绝热（静态）近似为：

$$\chi(\mathbf{q},\omega) = \frac{\chi_{\mathrm{KS}}(\mathbf{q},\omega)}{1 - \left[v(q) + K_{\mathrm{xc}}(\mathbf{q})\right]\chi_{\mathrm{KS}}(\mathbf{q},\omega)}, \tag{19}$$

图 1示意说明了式（19）所表示的自洽计算方法。为了在绝热近似下得到宏观动态密度响应函数，该方法将式（19）所定义的直接微扰方法中的静态交换-关联核，与式（18）引入的线性响应含时密度泛函理论中的宏观KS响应函数结合起来。我们再次强调，式（18）中的 χ_{KS}（$\mathbf{q}\ \omega$）和式（15）中的

$K_{\mathrm{xc}}(\mathbf{q})$ 均不需要微观交换-相关核的信息 $K^{\mathrm{xc}}{}_{\mathbf{G}_1,\mathbf{G}_2}(\mathbf{q}\ \omega)$。通过这种方式，我们能够以完全自洽的方式，针对任何可用的交换-关联泛函，在绝热近似下计算宏观密度响应函数 $\chi(\mathbf{q}\ \omega)$。宏观动态介电函数可由式（6）得到。

重要的是，如果使用一致的绝热交换-关联核，那么根据式（$\varepsilon_M(\mathbf{q}\ \omega)$定义的标准线性响应含时密度泛函理论结果等价于我们采用绝热近似计算得到的宏观密度响应函数结果，见式（3）19）。我们在第IVA节以温稠密氢为例，展示了绝热局域密度近似下的这一点。

对于真实材料，式（19）所表示的绝热近似比标准线性响应含时密度泛函理论中的绝热局域密度近似或绝热广义梯度近似更强大，因为式（19）可以采用 DFT 的雅各布阶梯上的任意交换-关联泛函计算 [70, 71]。例如，Moldabekov等人 [34]使用直接微扰方法，采用各种局域密度近似、广义梯度近似和元广义梯度近似泛函，研究了均匀电子气和温稠密氢的静态密度响应函数及交换-关联核。此外，文献 [51, 52]还使用均匀电子气模型分析了温稠密物质条件下的不同杂化交换-关联泛函。这些先前的研究使用了 $\chi_0(q)$ 所示的参考静态密度响应函数，该函数来自交换-关联泛函为零的 KS-密度泛函理论计算。这样做是为了与现有的量子蒙特卡罗结果进行基准比较。式（19）的创新之处在于，它提供了一种一致的方法来计算 $\chi_0(\mathbf{q}\ \omega) = \chi_{\mathrm{KS}}(\mathbf{q}\ \omega)$和 $K_{\mathrm{xc}}(q)$，以便在绝热（静态）近似下应用。

对于温稠密物质和稠密等离子体的应用，式（19）无需引入有效自由电子密度（不同于基于林德哈德函数的方法），而且我们的静态交换-关联核现在具有材料特异性。这也消除了在式（8）中使用某种模型局域场修正的必要。

我们指出，对于均匀电子气（UEG），$\chi_{\mathrm{KS}}(\mathbf{q}\ \omega)$ 会简化为林德哈德函数，正如第 IVA 节所示。在这种情况下，量子蒙特卡罗模拟表明，对于弱至中等耦合强度，例如金属密度 [72] 下的情形，绝热（静态）近似具有很高的准确性。

III. 模拟参数

本文所呈现的所有数值结果均采用哈特里原子单位。电子总密度以密度参数 $r_s = (4\pi n/3)^{-1/3}$表示，该参数即平均粒子间距。值得注意的是，r_s 也表示电子之间的特征耦合参数 [19, 73, 74]。电子温度用简并参数 $\theta = T/T_F$表示，其数值以费米温度（能量）为单位。我们考察典型的温稠密物质实验条件 $r_s = 2$ 和 $r_s = 4$。对于温稠密氢，我们设定 $\theta = 1$。这使我们能够将 KS-密度泛函理论模拟得到的 $\chi(q)$与 B¨ohme 等人 [68]近期获得的精确路径积分量子蒙特卡罗结果进行比较。

为了检验所提出的方法在均匀电子气极限下对 $\chi_{\mathrm{KS}}(q)$ 的有效性，我们还采用 $\theta = 1$、0.5 和 0.01。

我们令 $\mathbf{q}$ 沿 z 轴方向，并据此省略矢量记号。对于直接微扰方法，微扰波数为 $q = j \times q_{\min}$，其中 $q_{\min} = 2\pi/L$ 和 j 为正整数。对于给定的离子位置快照，沿 x 和 y 轴对密度和 KS 势微扰取平均（因为 $\mathbf{q}$ 沿 z 轴方向）。主模拟盒的尺寸定义为 $n_0 L^3 = N$，其中 $n_0 = 3/(4\pi r_s^3)$ 和 N 分别表示主模拟盒中的电子总数。我们考虑 $N = 14$ 和 $N = 20$。在所考虑的参数下，$N = 14$ 和 $N = 20$ 处的有限尺寸效应可以忽略。参考文献 [68, 69, 75, 76] 中的路径积分量子蒙特卡罗模拟以及参考文献 [34, 51, 77, 78] 中的 KS-DFT 模拟均证明了这一点。

对于线性响应时变密度泛函理论计算，q 值必须是两个 k 点之差。例如，若k点网格为 $N_k \times N_k \times N_k$，则波数为$\mathbf{q} = (l/N_k,\ m/N_k,\ p/N_k)\, 2\pi/L$，其中$l$，$m$，$p$ 为正整数，且不是 N_k的倍数。由于我们将$\mathbf{q}$ 设在 z 轴方向，因此始终有$l = 0$ 和 $m = 0$。

直接微扰方法中的外场振幅必须足够小，以便密度微扰可以用线性响应理论描述。对于温稠密氢，我们设定 $A = 0.01$（单位为哈特里）。已有研究表明，该值处于线性响应理论适用范围内，见文献 [68]。按照文献[39], 中均匀电子气计算的方法，我们将 $A = 0.01$ 设为 $r_s = 2$，并将 $A = 0.002$ 设为 $r_s = 4$。

对于静态交换-关联核的 KS-密度泛函理论计算，我们使用 ABINIT 软件包 [79–84]，以及 Goedecker、Teter 和 Hutter [85]提出的赝势。对于局域密度近似泛函 [86],，我们交叉验证了使用 GPAW 代码 [87–90], 进行的 KS-密度泛函理论计算能够复现 ABINIT 的结果；GPAW 是投影缀加波方法的实空间实现。对于基于局域密度近似的线性响应时变密度泛函理论计算，我们使用 GPAW 代码计算密度响应函数和 KS响应函数 [91]。离子构型取自热 KS-密度泛函理论分子动力学模拟，具体方法见参考文献 [92]。

采用基于 KS-密度泛函理论的直接微扰方法，对温稠密氢进行了模拟；主模拟胞中分别包含 14 个（280 条能带）和 20 个（400 条能带）粒子。我们使用 $10 \times 10 \times 10$ k 点采样和 30 Ha 能量截断。对于在 $r_s = 2$ 和 $q < 2q_F$ 处计算静态密度响应函数的线性响应时变密度泛函理论计算，平衡态计算采用主胞中含 14 个电子、280 条能带和 500 eV 能量截断的设置。对于 $q > 2q_F$，我们采用了平衡态计算，主胞中含 14 个

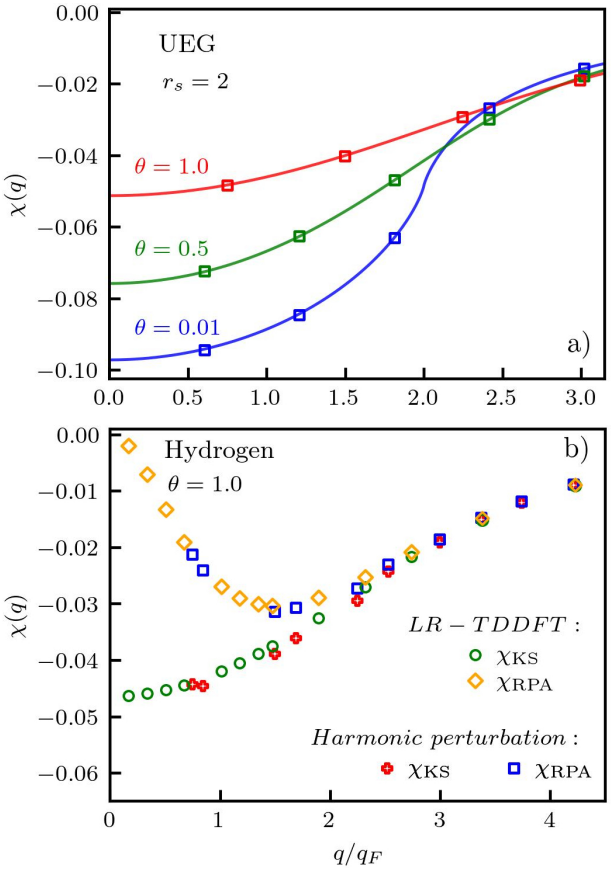


图 2. a) 符号表示使用局域密度近似交换-相关泛函，通过KS-DFT模拟计算得到的均匀电子气 KS响应函数，其中 $r_s = 2$ 对应不同的约化温度 θ。实线表示使用林德哈德函数计算得到的相应结果。b) 对于 $r_s = 2$ 和$\theta = 1$ 处的温稠密氢，使用线性响应含时密度泛函理论（绿色和橙色符号）以及直接微扰法（红色和蓝色符号）计算得到的 KS响应函数及相应的随机相位近似值。

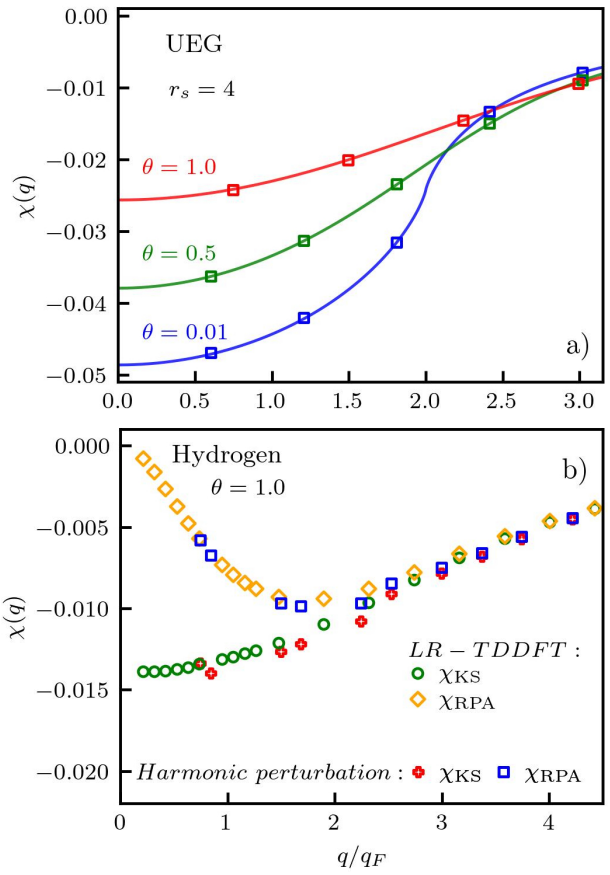


图 3. a）符号表示采用局域密度近似交换-关联泛函，通过均匀电子气的 KS-密度泛函理论模拟计算得到的 $r_s = 4$ 处、不同约化温度 θ 下的 KS响应函数。实线表示使用林德哈德函数计算得到的相应结果。b）采用线性响应含时密度泛函理论（绿色和橙色符号）以及直接微扰法（红色和蓝色符号）计算得到的 $r_s = 4$ 和 $\theta = 1$ 处温稠密氢的 KS响应函数及其对应的随机相位近似值。

电子，使用 $4 \times 4 \times 4$ k 点和 550 eV 能量截断。基于平衡态的波函数进行线性响应时变密度泛函理论计算时，将介电函数的截断设为 100 eV，展宽参数设为 $\eta = 0.001$。

均匀电子气在 $\theta = 0.01$ 和 $\theta = 0.5$ 处的静态密度响应函数计算采用主胞中的 $N = 38$ 个粒子（包含 44 条能带）、$10 \times 10 \times 10$ k 点采样以及 30 Ha 的能量截断。 $\theta = 1$ 的数据则采用主胞中的 $N = 20$ 个电子（包含 400 条能带）、$10 \times 10 \times 10$ k 点采样以及 30 Ha 的能量截断获得。

IV. 模拟结果

A. 线性响应含时密度泛函理论与基于直接微扰的方法的等价性

为了检验使用式（13）计算得到的宏观KS响应函数是否正确，我们首先考虑均匀电子气 [19] ，对于这种体系，宏观KS响应函数必须等同于林德哈德函数。我们在图 $r_s = 2$ 中展示了2a）以及图 $r_s = 4$ 中的3a）所示结果确实如此，其中 θ 涵盖了基态和温稠密物质状态。由图2a）和3a）可见，对于均匀电子气，式（13）给出的宏观KS响应函数在热力学极限下完美再现了林德哈德函数。为获得图中所示数据，我们使用了Perdew和Wang的局域密度近似泛函 [93]。因此，即使13）中的KS-DFT计算采用了非零交换-关联泛函，该式仍能给出正确的非相互作用（理想）响应函数。

KS-密度泛函理论计算采用非零交换-关联泛函。

其次，在图2b)和图3b)中，我们证明，在 $\theta = 1$下，使用直接微扰方法（式(13)）计算得到的温稠密氢宏观静态KS响应函数，与通过式(18)使用标准线性响应含时密度泛函理论方法得到的结果等价。图2b)和图3b)分别展示了 $r_s = 2$和 $r_s = 4$在 $\theta = 1$下的结果。此外，我们还展示了随机相位近似下的结果，该结果是在式(7)中使用$\chi_{\rm KS}(q)$并取 $\omega = 0$计算得到的。从图2b)和图3b)可以看出，使用式(13)计算得到的 $\chi_{\rm KS}(q)$与使用式(18)获得的 $\chi_{\rm KS}(q)$一致。

接下来，我们在图4中展示，使用局域密度近似交换-相关泛函，通过直接微扰方法按照式(13)计算得到的密度响应函数 $\chi(q)$，与采用绝热局域密度近似核、并使用局域密度近似生成的平衡态波函数进行线性响应含时密度泛函理论计算所得的 $\chi(q)$一致。图4a)展示了 $r_s = 2$ 的数据，图4b)则展示了$r_s = 4$的结果。此外，在图4中，我们将 $\chi(q)$的KS-密度泛函理论结果与近期精确的路径积分量子蒙特卡罗（PIMC）结果 [68]进行了比较。从图4a)可以看出，在 $r_s = 2$下，KS-密度泛函理论结果与PIMC数据非常接近。文献 [68], 指出，在 $\theta = 1$ 和 $r_s = 2$下，温稠密氢中的电子表现出类似自由电子的行为，表明电子-离子耦合较弱。相比之下，在$r_s = 4$ 和 $\theta = 1$下，电子-离子耦合较强，该体系可有效地描述为部分电离。因此，在图4b)中可以看到，随着密度从 $r_s = 2$ 降至 $r_s = 4$，在 $2q_F$ 附近，基于局域密度近似的KS-密度泛函理论数据的质量相较于精确的PIMC数据显著变差。随着密度降低，基于局域密度近似的描述质量下降，是因为电子在离子周围的局域化程度增强 [94], ，从而在KS-密度泛函理论中产生自相互作用误差 [95]。电子与离子间更强的耦合还会导致密度响应振幅减小，这可通过比较图4a)和图4b)中的 $\chi(q)$值看出。图5通过电子密度的等值面，展示了温稠密氢中 $r_s = 4$ 时电子在离子周围的局域化程度，相较于 $r_s = 2$ 的情况更强。

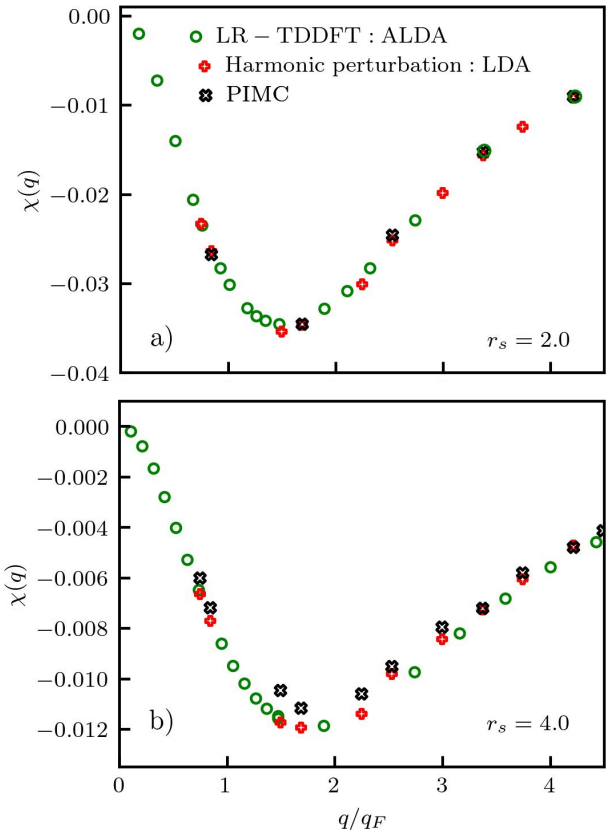


图4. 温稠密氢在 a) $r_s = 2$ 和 b) $r_s = 4$ 条件下、 $\theta = 1$处的密度响应函数。将采用绝热局域密度近似核的线性响应含时密度泛函理论以及采用局域密度近似泛函的基于谐波微扰的方法计算所得结果，与文献 [68]中的精确 PIMC数据进行比较。

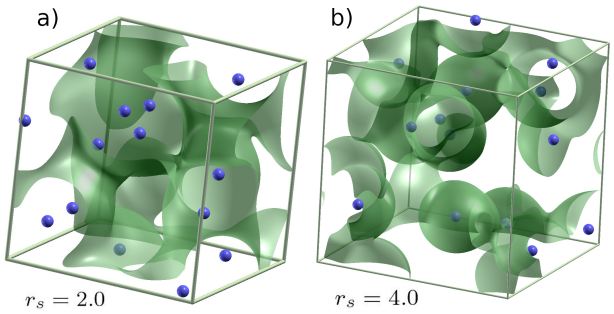


图5. 在固定的 $\theta = 1$ 下，随着密度从 a) $r_s = 2$ 降低至 b) $r_s = 4$ ，电子在质子周围的局域化程度增强。图中使用由密度泛函理论分子动力学计算得到的电子密度等值面进行展示。此图使用 XCrySDen [96, 97]制作。

我们考虑的第三个量是温稠密氢的宏观动态介电函数 $\varepsilon_M(q,\omega)$。我们使用标准的含时密度泛函理论线性响应方法，采用绝热局域密度近似核和基于局域密度近似的 Kohn-Sham轨道，计算 $\varepsilon_M(q,\omega)$。此外，我们按照图1所示的方案，将式（19）中的 $\chi(q,\omega)$ 代入式（6），计算 $\varepsilon_M(q,\omega)$；其中， $\chi_{\rm KS}(q,\omega)$ 使用式（18）计算，而局域密度近似交换-关联核则通过直接微扰方法、利用式（15）获得。图6展示了采用这两种不同方法计算得到的 $\varepsilon_M(q,\omega)$ 的数据对比，其中给出了 $\varepsilon_M(q,\omega)$ 在 $q \simeq 0.873q_F$和 $q \simeq 1.434q_F$ 处的实部和虚部。此外，图6还给出了随机相位近似结果，与使用零交换-关联核计算。从图6中可以看出，基于绝热局域密度近似的线性响应含时密度泛函理论数据对于 $\varepsilon_M(q,\omega)$ 与根据式（ $\chi(q,\omega)$由式（19）得到的结果6）非常吻合。

因此，以暖致密氢为例，我们利用局域密度近似泛函证明了

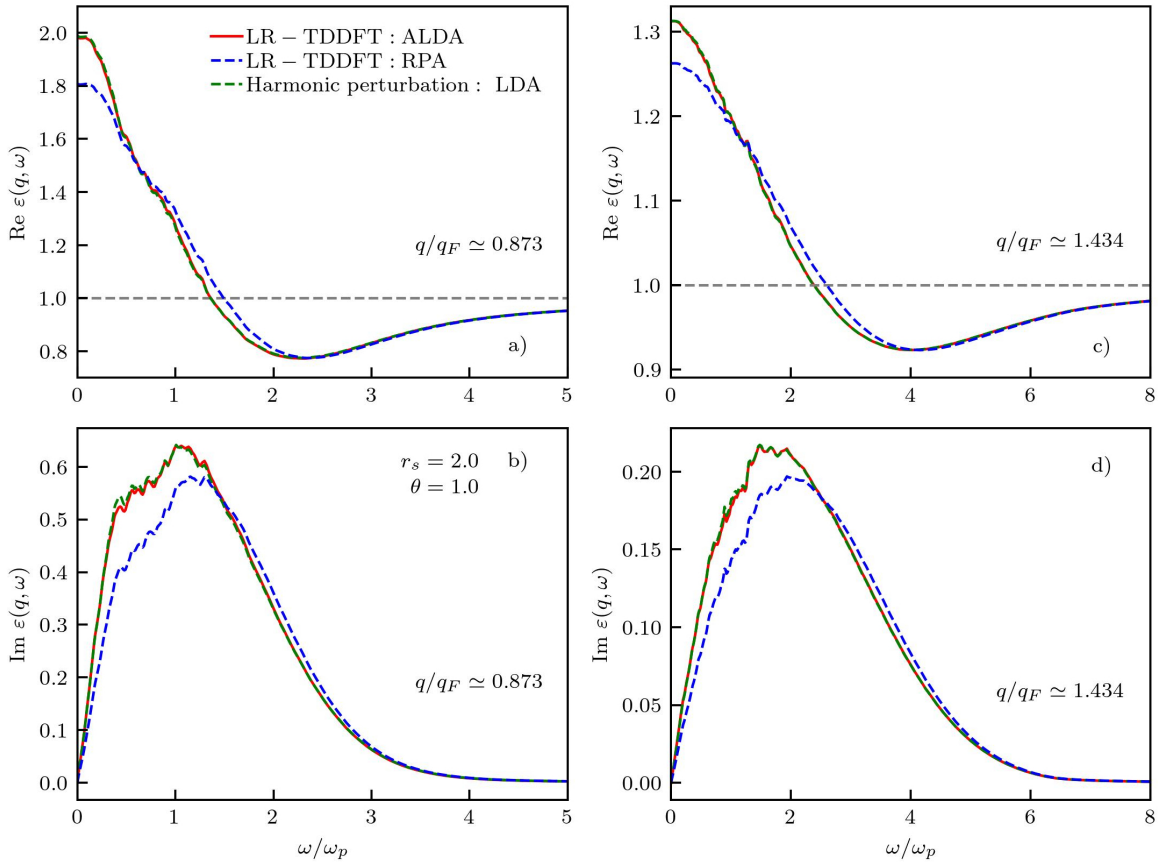


图 6. 展示采用 LDA 泛函（绿色虚线）时，使用 ALDA 核（红色实线）的 LR-TDDFT 结果与宏观交换-相关核和宏观 KS 响应函数方案（如图 1 所述）等价性的示例。结果针对温稠密氢，在 $r_s = 2$ 和 $\theta = 1$条件下给出。a) $q/q_F \simeq 0.873$处动态介电函数的实部；b) 动态介电函数的虚部。c) $q/q_F \simeq 1.434$处动态介电函数的实部；d) 动态介电函数的虚部。为便于比较，同时给出了 RPA 结果（蓝色虚线）。

我们从式（19）出发的方法对于宏观χ（q，ω）而言，等价于采用绝热交换-相关核近似的标准线性响应含时密度泛函理论。我们再次强调，本文提出的新方法的优势在于，无须显式计算二阶泛函导数，即可使用任何现有交换-关联泛函的静态交换-关联核。例如，Moldabekov等人 [34] 采用直接微扰方法，提出了适用于局域密度近似、广义梯度近似和元广义梯度近似级别泛函，以及各种杂化泛函的静态交换-关联核[51, 52]。此外，式（19）所示方法中，绝热交换-相关核 K_{XC}（q）与用于生成 KS响应函数的交换-关联泛函χ_{KS}（q，ω）完全一致（由式（18）定义）。

B. 金属密度下温稠密氢的静态交换-关联核

在文献 [34]，中，基于 PIMC 数据对温稠密氢的密度响应函数进行的比较分析

在 $r_s = 2$ 和 $r_s = 4$ 条件下使用PBE [98], PBEsol [99], AM05 [100], 及SCAN [101] 泛函对氢的研究表明，与基于基态局域密度近似 [93] 的计算相比，这些交换-关联泛函并未改善对温稠密氢的描述。此外，研究还表明，为温稠密物质条件开发的有限温局域密度近似泛函 [102] 并未改善描述质量，与基态局域密度近似相比，结果甚至略差。在文献 [34], 中提到的泛函里，元广义梯度近似层级的SCAN泛函在Jacob阶梯上的位置高于局域密度近似和广义梯度近似泛函，并且在基态应用中的准确度高于局域密度近似和PBE。因此，当热能与费米能相当时，SCAN的表现竟不如基态局域密度近似和PBE，这令人意外。一个自然的问题是：其他元广义梯度近似泛函在温稠密物质状态下是否也有同样的缺陷？因此，在本研究中，除基态局域密度近似和PBE外，我们还将另外两种元广义梯度近似交换-关联势纳入分析。我们考察了由以下研究者提出的交换-关联势

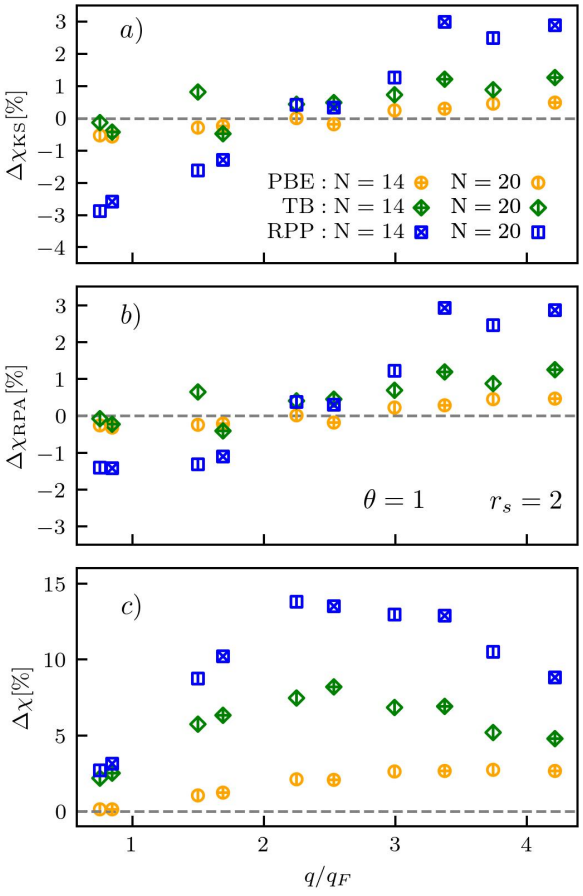


图 7. 使用广义梯度近似级别的 PBE 泛函、元广义梯度近似级别的 TB 和 RPP 近似，对温稠密氢在 $r_s = 2$ 和 $\theta = 1$ 条件下进行模拟所得的 a) KS响应函数、b) RPA近似层面的屏蔽响应，以及 c) 总密度响应函数相对于局域密度近似结果的相对偏差。

Tran和Blaha [103]（TB）以及由R¨as¨anen、Pittalis和Proetto（RPP） [104]提出的势。这些势是通过修正Becke–Johnson（BJ）交换势（对精确Hartree–Fock交换进行近似）并加入Perdew和Wang的局域密度近似关联项[105] 而引入的[93]。TB近似对多种固体都能给出高质量结果，并与实验结果吻合良好。对于电子密度恒定的情况，该近似可还原为基态局域密度近似。RPP近似旨在对任意单电子系统都严格成立，并在密度恒定的极限下退化为局域密度近似层级的描述。例如，研究证明，RPP近似对外电场中的氢链具有很高的准确度[104]。

我们首先讨论金属密度下温稠密氢的结果 $r_s = 2$。我们考察静态 KS响应函数 $\chi_{\mathrm{KS}}(q)$、随机相位近似中的静态密度响 应 $\chi_{\mathrm{RPA}}(q)$以及静态总密度响应函数 $\chi(q$。在图 7中，我们分析相对偏

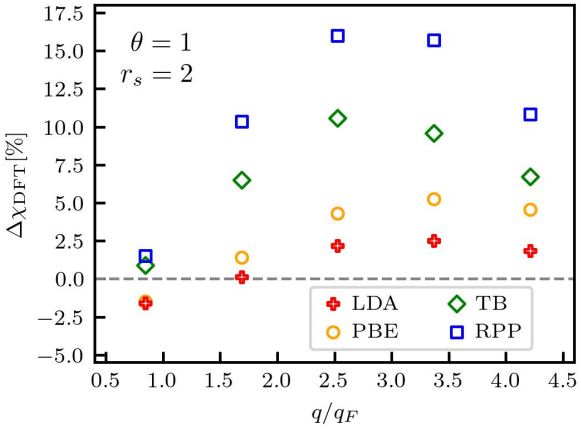


图 8. 在 $r_s = 2$ 和 $\theta = 1$ 条件下，温稠密氢的静态密度响应函数的 KS-密度泛函理论结果与精确路径积分蒙特卡罗数据之间的偏差。

差 $\chi_{\mathrm{KS}}(q)$、 $\chi_{\mathrm{RPA}}(q)$ 和 $\chi(q)$ 相对于 $r_s = 2$ 和 $\theta = 1$ 的局域密度近似数据的偏差。结果给出了主胞中含 14 个和 20 个粒子的情况。相对于局域密度近似数据的相对偏差计算如下：

$$\Delta\chi_{\mathrm{KS}}(q)[\%] = \frac{\chi_{\mathrm{KS}}(q) - \chi_{\mathrm{KS}}^{\mathrm{LDA}}(q)}{\chi_{\mathrm{KS}}^{\mathrm{LDA}}(q)} \times 100\%, \qquad (20)$$

其中， $\chi_{\mathrm{KS}}^{\mathrm{LDA}}(q)$ 是使用局域密度近似计算得到的静态 KS 响应函数。

采用类似的表达式，可以计算 $\chi_{\mathrm{RPA}}(q)$ 和 $\chi(q)$ 相对于相应的基于局域密度近似的结果 $\chi_{\mathrm{RPA}}^{\mathrm{LDA}}(q)$ 和 $\chi^{\mathrm{LDA}}(q)$ 的相对偏差：

$$\Delta\chi_{\mathrm{RPA}}(q)[\%] = \frac{\chi_{\mathrm{RPA}}(q) - \chi_{\mathrm{RPA}}^{\mathrm{LDA}}(q)}{\chi_{\mathrm{RPA}}^{\mathrm{LDA}}(q)} \times 100\%, \qquad (21)$$

and

$$\Delta\chi(q)[\%] = \frac{\chi(q) - \chi^{\mathrm{LDA}}(q)}{\chi^{\mathrm{LDA}}(q)} \times 100\%. \qquad (22)$$

图 7a) 显示，基于 PBE 和 TB 得到的 $\chi_{\mathrm{KS}}(q)$ 数据与 $\chi_{\mathrm{KS}}^{\mathrm{LDA}}(q)$ 非常吻合，绝对值相对偏差小于 2%。基于 RPP 得到的 $\chi_{\mathrm{KS}}(q)$ 结果与 $\chi_{\mathrm{KS}}^{\mathrm{LDA}}(q)$ 的差异略大，介于 3% 和 -3% 之间。正如图 7b) 所示，由于屏蔽作用，这些差异在 $q < 2q_F$ 处进一步减小；图中给出了 $\Delta\chi_{\mathrm{RPA}}(q)$ 的结果。在 $\chi_{\mathrm{RPA}}(q)$ 中，使用式 (7) 考虑了屏蔽作用，但忽略了交换-关联核。总体而言，采用所考虑的不同交换-关联势计算得到的 $\chi_{\mathrm{KS}}(q)$ 和 $\chi_{\mathrm{RPA}}(q)$ 结果彼此接近。事实上，在 $r_s = 2$ 和 $\theta = 1$ 处， $\chi_{\mathrm{KS}}(q)$ 的值也与基于理想电子气模型得到的林德哈德函数接近（见图 2）。这与

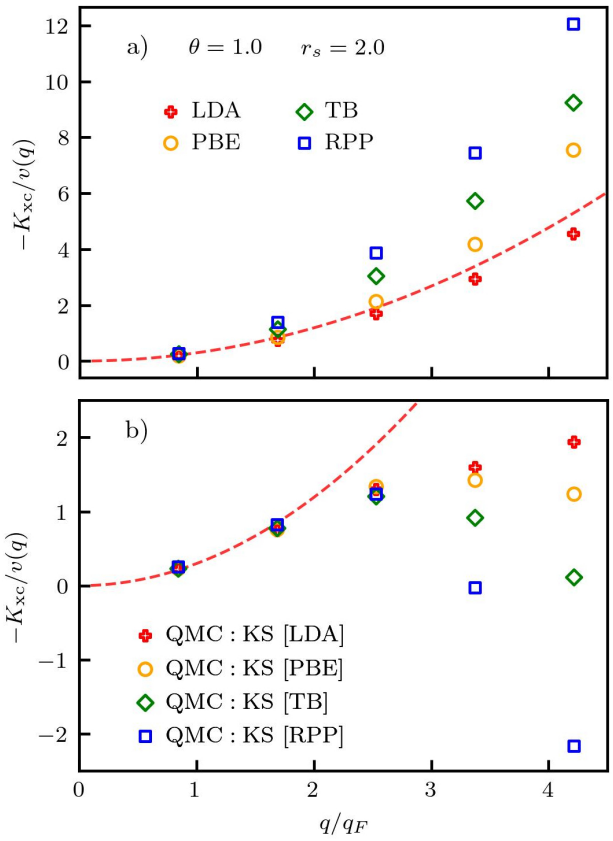


图 9。a）采用不同交换-关联泛函的 KS-密度泛函理论模拟得到的完全一致的静态交换-关联核。b）利用 PIMC数据以及 KS-密度泛函理论模拟中的 KS响应函数提取的静态交换-关联核。展示谐波微扰技术与线性响应时变密度泛函理论计算所得 KS响应函数的等价性。结果适用于 $r_s = 2$ 和 $\theta = 1$处的温稠密氢。

先前讨论的观察结果一致：在 $r_s = 2$ 和 $\theta = 1$ 处，电子高度离域。

实际密度响应的结果 χ（q）温稠密氢（参见公式（11））在外场作用下的结果如图 7c）所示。从图 7c）可以看出，使用 TB 和 RPP 近似计算的 χ（q）与基于局域密度近似的数据在$q > q_F$处存在显著差异。对于基于 PBE 的数据，在$q > 2q_F$处也存在同样的情况。这与 χ_{KS}（q）和 χ_{RPA}（q）的行为形成对比；对于这两者，所考虑的交换-关联势给出的结果几乎相同。图 7 还显示，使用 14 个和 20 个粒子计算的结果表现出非常相似的行为。这意味着，在主胞中使用 14 个粒子计算的 $r_s = 2$ 和 $\theta = 1$ 不受有限尺寸效应影响。这进一步印证了文献 [34, 68]中给出的先前结果。

在图 8中，我们通过与参考文献 [68] 中针对主胞内 14 个粒子的精确路径积分蒙特卡罗数据进行比较，分析所考虑近似方法的质量。KS-密度泛函理论数据相对于路径积分蒙特卡罗结果的相对偏差定义为计算得出

$$\Delta\chi_{\mathrm{DFT}}(q)[\%] = \frac{\chi(q) - \chi^{\mathrm{PIMC}}(q)}{\chi^{\mathrm{PIMC}}(q)} \times 100\%, \qquad (23)$$

其中， $\chi^{\mathrm{PIMC}}(q)$ 是采用直接微扰方法 [68] 进行路径积分蒙特卡罗模拟得到的密度响应函数。

从图 8可以清楚地看出，与 PBE、TB 和 RPP 相比，基态局域密度近似对 $\chi(q)$ 给出了更准确的数据。

在图 9中，我们给出了静态交换-关联核的相应结果。在图 9a) 中，我们展示了根据式 (15) 从 KS-密度泛函理论自洽地计算得到的静态交换-关联核。在图 9b) 中，我们展示了在式 ($\chi(q)$ 中使用路径积分蒙特卡罗得到的精确结果所计算出的静态交换-关联核。对于这两种情况，$\chi_{\mathrm{KS}}(q)$ 均根据式 (13) 通过 KS-DFT 模拟获得。图 9 中的红色虚线表示根据压缩率求和规则，式 ($G(q)$ 中局域场修正的二次依赖关系（即长波近似），见式 (8)。[34]。

从图 9a) 可以看出，在较小波数下，PBE、TB 和 RPP 得到的交换-关联核结果收敛于基于局域密度近似的结果 $q < 2q_F$，并随着波数增加而偏离 $q > 2q_F$。在所考察的波数范围内，基于局域密度近似的数据与二次依赖关系十分吻合。在图 9b) 中也可以看到，在 $q < 2q_F$，基于路径积分蒙特卡罗得到的交换-关联核同样如此。我们发现，在 $q < 2q_F$处使用局域密度近似、PBE、TB 和 RPP 得到的交换-关联核 $\chi_{\mathrm{KS}}(q)$ 与长波长近似完全吻合，即呈现二次依赖关系。然而，随着波数增加，这些交换-关联核在 $q > 2q_F$处明显偏离二次依赖关系，且数值更低。此外，比较图 9a) 和图 9b) 中 PBE、TB 和 RPP 结果相对于红色虚线的位置，可以看到，在图 9a) 和图 9b) 中，相应的交换-关联核数值偏离二次依赖关系的方向各不相同。总的来说，通过比较图 9a) 和图 9b) 中的结果，我们得出结论：在 $q < 2q_F$处，局域密度近似、PBE、TB 和 RPP 对交换-关联核的描述准确。在 $q > 2q_F$处，PBE、TB 和 RPP 不仅无法定量描述交换-关联核，也无法定性描述。

另一个值得探讨的问题是，能否设计出一种通用交换-关联核，将其与 $\chi_{\mathrm{KS}}(q)$结合用于线性响应含时密度泛函理论，从而在广泛的参数范围（温度、密度和波数）内精确再现密度响应性质。我们对静态密度响应函数和交换-关联核的分析表明，对于真实材料而言，不存在这样的通用交换-关联核。原因之一可能是 $\chi_{\mathrm{KS}}(q)$取决于所用的交换-关联势近似。我们观察到，在 $r_s = 2$ 处这一影响较小，而在 $r_s = 4$处影响较大（如第IVC节所示），但这种情况始终存在。换句话说，交换-关联效应同时包含在这两者中

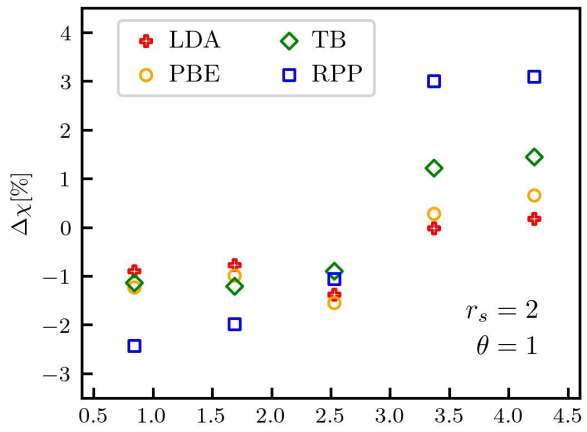


图10. 由于将从PIMC数据中提取的KS响应函数和交换-关联核，与不含交换-关联效应的理想参考函数不一致地组合，导致密度响应函数出现误差。结果对应于 $r_s = 2$ 和 $\theta = 1$下的温稠密氢。

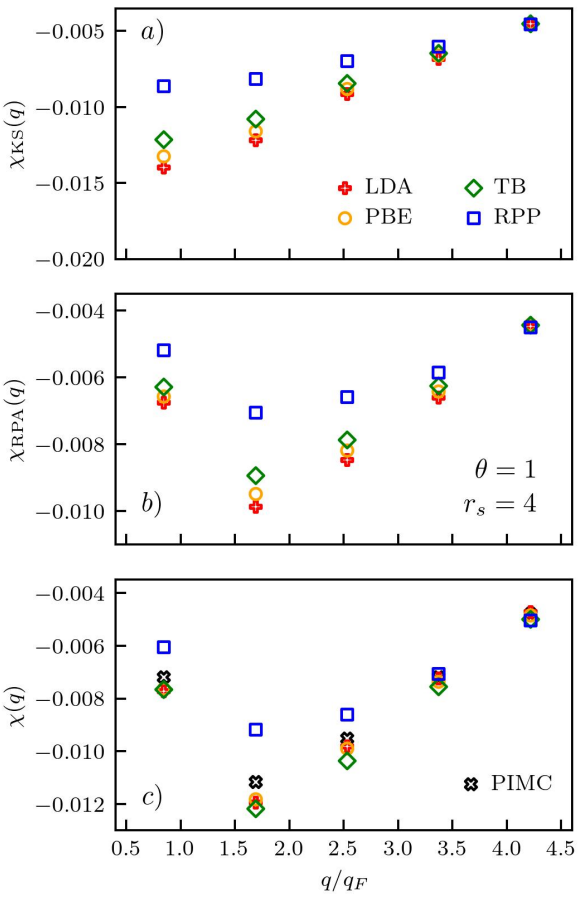


图11. 在 $r_s = 4$ 和 $\theta = 1$下的温稠密氢中，采用局域密度近似、PBE和元广义梯度近似级别的TB与RPP近似进行模拟所得的a）KS响应函数，b）随机相位近似层次上的屏蔽响应，以及c）总密度响应函数。

$\chi_{KS}(q)$和 $K_{xc}(q)$中。为减轻这一影响，我们将交换-关联泛函设为零，计算了$\chi_{KS}(q)$。我们将相应的KS响应函数记为 $\chi_{KS}^{NXC}(q)$（其中NXC表示“空交换-关联”）。需要指出的是，在这种情况下，离子外场中存在的是非相互作用电子。随后，我们在方程（19）中将 $\chi_{KS}^{NXC}(q)$与 $\chi(q)$的精确PIMC数据结合，用以计算 $K_{xc}(q)$。接着，将计算得到的交换-关联核与使用非零交换-关联泛函（局域密度近似、PBE、TB和RPP）计算的 $\chi_{KS}(q)$结合，根据方程（19）求得密度响应函数 $\chi(q)$。从图10可以看出，用这种方法计算的 $\chi(q)$与精确PIMC数据之间的偏差为百分之几，但并非为零。因此，它无法再现 $\chi(q)$的精确PIMC结果。不过，我们注意到，图10中 $\chi(q)$的误差明显小于图8所示的偏差。这表明，在 $r_s = 2$ 和 $\theta = 1$条件下， $\chi_{KS}^{NXC}(q)$是利用 $\chi(q)$的精确数据计算交换-关联核时一个良好的通用参考函数。我们将这一发现归因于：在 $r_s = 2$ 和 $\theta = 1$条件下，温稠密氢几乎完全电离，其电子性质与自由电子气相似。事实上，我们将在第 IV C 节表明，在 $r_s = 4$ 条件下，离子周围强烈的电子局域化会显著降低基于$\chi_{KS}^{NXC}(q)$的方法的效果。

C. 强关联温稠密氢的静态交换-关联核

现在我们考虑参数为 $r_s = 4$ 和$\theta = 1$ 的温稠密氢。在这些参数下，与 $r_s = 2$ 和 $\theta = 1$ 的情况相比，电子-电子耦合以及电子-离子耦合更强。图 $\chi_{KS}(q)$、$\chi_{RPA}(q)$和 $\chi(q$的结果展示在图 11 中（主胞中有14个粒子）。从图 11a)可以看出，在 $\chi_{KS}(q)$处，使用局域密度近似、PBE、TB和RPP计算得到的数值存在显著差异$q < 3q_F$。对于 $\chi_{RPA}(q)$，由于屏蔽作用，这些差异有所减小，如图 11b)所示。总密度响应函数 $\chi(q)$的结果展示在图 11c)中，并与精确的路径积分蒙特卡罗数据进行了比较。从图 11c)可以看出，基于局域密度近似和PBE的数据与精确的路径积分蒙特卡罗数据质量相近。基于TB的数据略逊于局域密度近似和PBE。使用RPP近似计算得到的结果与路径积分蒙特卡罗数据差异最大。总体而言，所展示的KS-密度泛函理论结果与路径积分蒙特卡罗数据的偏差在 $1.5q_F < q < 2q$附近最大。

我们进一步使用 $\Delta\chi_{DFT}$ （由公式（23）定义）量化 KS-DFT 数据与路径积分蒙特卡罗结果之间的差异。相对差异 $\Delta\chi_{DFT}$的结果见图 12。从图 12可以看出，基于局域密度近似和 PBE 的数据质量相近，在 $q \simeq 0.845q_F$处的最大偏差约为 7%。

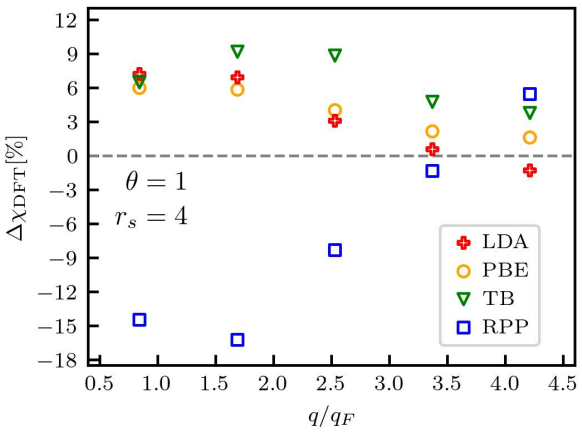


图1.12. 在 $r_s = 4$ 和 $\theta = 1$ 条件下，温稠密氢静态密度响应函数的 KS-密度泛函理论结果相对于精确 PIMC数据的偏差。

随着波数增大，基于局域密度近似和 PBE 的数据质量有所提高，在 $q \gtrsim 2.5q_F$ 处的相对差异仅为百分之几。与局域密度近似和 PBE 相比，使用 TB 和 RPP 近似计算得到的结果明显较差，在所有考察的波数范围内都完全不可靠。

现在，我们更详细地考察交换-关联势所采用的近似对 $\chi_{\mathrm{KS}}(q)$ 和 $\chi_{\mathrm{RPA}}(q)$ 的影响。图13a）和图13b）分别展示了使用 PBE、TB 和 RPP 计算得到的 $\chi_{\mathrm{KS}}(q)$ 和 $\chi_{\mathrm{RPA}}(q)$ 相对于基于局域密度近似的数据的相对偏差。计算相对偏差时，我们使用了式（20）和式（21）。为完整起见，图13展示了主胞中分别含有20个和14个粒子的计算结果。请注意，为了更清楚地展示结果，图13中 RPP 数据点的数值缩小了4倍。从图13可以看出，在 $q < 2.5q_F$ 处，PBE 与基于局域密度近似的 $\chi_{\mathrm{KS}}(q)$ 结果相差约5%。随着波数增大至 $q > 2.5q_F$，这一差异单调减小。图13b）中 $\chi_{\mathrm{RPA}}(q)$ 也呈现类似的行为，但由于屏蔽作用，差异幅度显著较小。对于 $\chi_{\mathrm{KS}}(q)$ 和 $\chi_{\mathrm{RPA}}(q)$，基于 TB 和 RPP 的结果仅在波数较大时 $q > 3q_F$ 才与基于局域密度近似的数据一致，而在 $q < 3q_F$ 处则与基于局域密度近似的结果有显著差异。

在图13c）中，我们给出了使用 PBE、TB 和 RPP近似得到的总 χ（q）与基于 LDA 的结果（使用公式（22）计算）相比的相对偏差。首先值得注意的是，χ（q）使用 TB 计算得到的结果在 $q < 2.5q_F$（差异为 $\Delta\chi$（q）$\lesssim 2.5$ %）处与基于 LDA 的结果吻合良好。这与图13a）中所讨论的 $\Delta\chi_{\mathrm{KS}}$（q）的相对差异形成对比。此外，基于 TB 的结果的 $\Delta\chi$（q）随着波数的增加而增大，而 $\Delta\chi_{\mathrm{KS}}$（q）则减小。

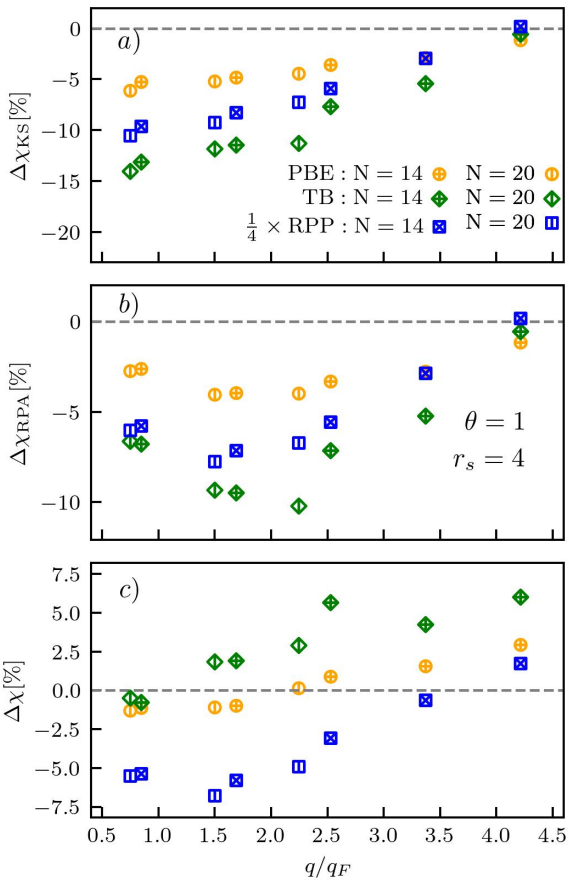


图13. 对于$r_s = 4$ 和 $\theta = 1$条件下的温稠密氢，采用广义梯度近似层级的PBE泛函、元广义梯度近似层级的TB以及RPP近似进行模拟所得的：a) KS响应函数，b) 随机相位近似层级的屏蔽响应，以及c) 总密度响应函数相对于局域密度近似结果的相对偏差。

这清楚地表明，$\chi_{\mathrm{KS}}(q)$——作为一个辅助量——不应在与物理系统的实际性质进行比较时用于评估特定交换-关联泛函的质量。基于 PBE 的 $\Delta\chi(q)$ 数据与基于 LDA 的结果（$\Delta\chi(q) \lesssim 2.5\%$）吻合良好。总体而言，基于 PBE 的 $\chi(q)$ 与基于 LDA 的 $\chi(q)$ 之间的一致性优于 $\chi_{\mathrm{KS}}(q)$ 和 $\chi_{\mathrm{RPA}}(q)$ 的情况。从图13c）可以看出，RPP近似无法描述温稠密氢在 $r_s = 4$和 $\theta = 1$ 处的密度响应函数，其中 $\Delta\chi(q)$ 达到约 28%。这些结论对于主胞中含有 $N = 14$ 和$N = 20$ 个粒子的两组数据均成立。

在图14中，我们展示了 $r_s = 4$ 和 $\theta = 1$条件下静态交换-关联核的结果。在图14a)中，我们给出了通过KS-密度泛函理论自洽计算得到的静态交换-关联核。在图14b)中，我们给出了利用 $\chi(q)$的PIMC数据计算得到的静态交换-关联核。图14 中的红色虚线表示与长波近似相对应的局域场修正 $G(q)$的二次依赖关系。

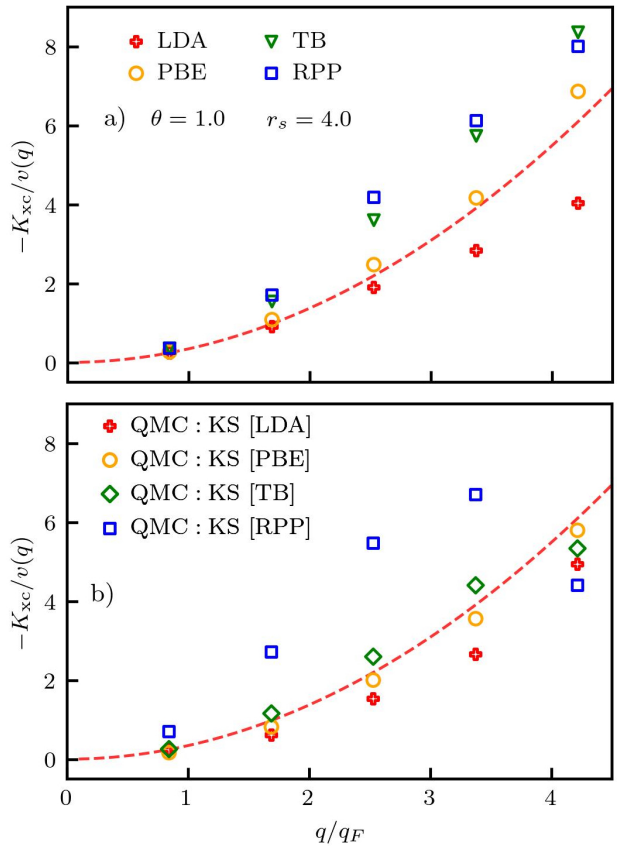


图14. a) 使用不同交换-关联泛函进行KS-密度泛函理论模拟得到的完全一致的静态交换-关联核。b) 利用路径积分蒙特卡罗数据和KS-密度泛函理论模拟中的KS响应函数提取的静态交换-关联核。展示谐波微扰技术与线性响应时变密度泛函理论计算所得KS响应函数的等价性。结果对应于 $r_s = 4$ 和 $\theta = 1$下的温稠密氢。

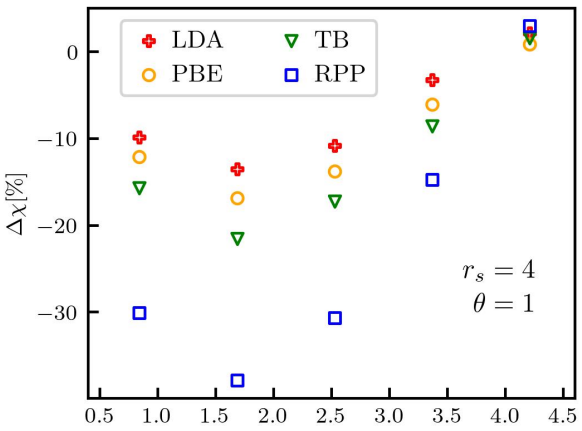


图15. 由于将KS响应函数与从路径积分蒙特卡罗数据中提取的交换-关联核不一致地组合，并使用不含交换-关联效应的理想参考函数，导致密度响应函数出现不准确。结果对应于 $r_s = 4$ 和 $\theta = 1$下的温稠密氢。

从图14a)可以看出，在 $q < 4q_F$条件下，基于PBE的交换-关联核可由二次曲线很好地描述。在$q \lesssim 2.5q_F$条件下，基于局域密度近似的交换-关联核也有同样的情况。在 $q > 2q_F$条件下，基于TB和RPP的交换-关联核数值显著高于基于PBE和局域密度近似的数据。在 $q < q_F$条件下，所有考察的交换-关联核彼此吻合良好。

在图14b)中，我们展示了利用路径积分蒙特卡罗数据计算得到的交换-关联核，适用于 $\chi(q)$ 。基于PBE的 $\chi_{\rm KS}(q)$得到的路径积分蒙特卡罗交换-关联核，其数值接近KS-密度泛函理论中基于PBE的交换-关联核。通过比较图14a)和图14b)中PBE数据相对于红色虚线的位置，可以看出这一点。对于基于LDA的数据，情况也同样如此。从图14b)可以看出，在 $q > 2q_F$处，使用基于TB的 $\chi_{\rm KS}(q)$计算得到的路径积分蒙特卡罗交换-关联核，与使用基于LDA和PBE的$\chi_{\rm KS}(q)$数据计算得到的结果相比存在显著差异。使用基于TB的 $\chi_{\rm KS}(q)$计算得到的路径积分蒙特卡罗交换-关联核，在 $q < 2q_F$处与基于PBE的数据吻合良好。

现在我们来考察使用针对 $\chi(q)$的PIMC数据并设定 $\chi_{\rm KS}(q) = \chi_{\rm KS}^{\rm NXC}(q)$后计算得到的交换-关联核的性能。与 $r_s = 2$的情形相同，我们将所得静态交换-关联核代入方程（19），计算$\chi(q)$。将得到的 $\chi(q)$与 $\chi(q)$的精确PIMC数据进行比较。相应结果如图15所示。将图15中的相对偏差（误差）与图12进行比较，可以清楚地看到，使用 $\chi_{\rm KS}^{\rm NXC}(q)$作为参考函数，从针对 $\chi(q)$的PIMC数据中提取交换-关联核，会导致密度响应函数的误差显著增大，甚至超过纯粹基于KS-密度泛函理论的交换-关联核。显然，电子在质子周围的强烈局域化，使 $\chi_{\rm KS}^{\rm NXC}(q)$无法作为良好的参考函数。

D. 一致的KS响应函数对静态交换-关联核的重要性

本文的主要目标是展示如何计算宏观KS响应函数，以便将其与 $\chi(q)$结合，用于计算静态交换-关联核；同时，还可在绝热近似下，根据式（19）一致地计算 $\chi(q,\omega)$。在波矢为 q = k +G 的情况下，在线性响应含时密度泛函理论中引入宏观量的标准方法是令 G = G′ [42]（若 q 位于第一布里渊区，则 G = 0）。众所周知，这种做法对介电函数是有效的；我们也在此通过直接微扰方法独立验证了这一点。然而，在非相互作用密度响应函数 $\chi_M^0(q) = \chi^{\,0}$ G,G(k ω)中令 G = G′ ，并不能得到正确的宏观KS响应函数。我们的一个关键发现是 $\chi_{\rm KS}(q,\omega)$ $\neq \chi_M^0(q)$，其中 $\chi_{\rm KS}(q,\omega)$由式（18）定义，或等价地由式（13）定义。我们利用式（13）证明了式（18）给出了正确的宏观KS响应函数

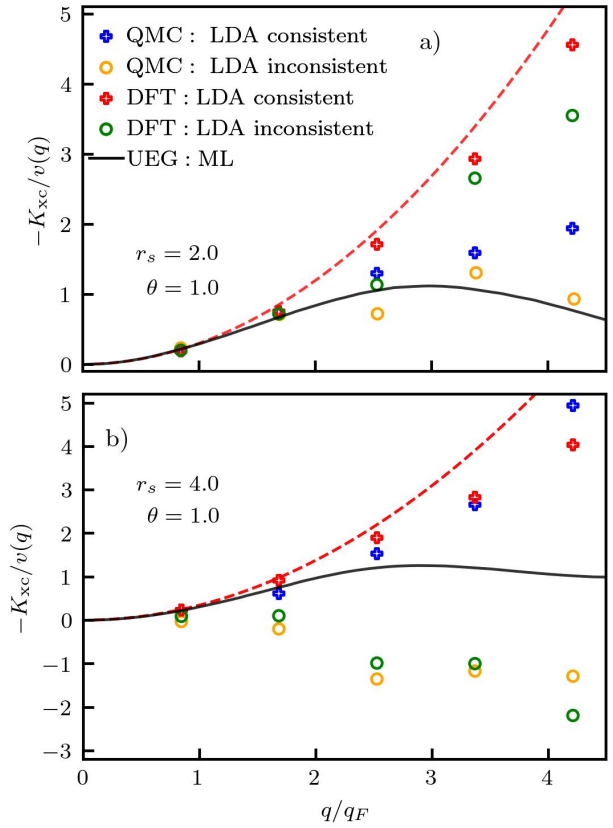


图16. 使用一致和不一致的KS响应函数计算得到的温稠密氢的交换-关联核，分别位于 a) $r_s = 2$和 b) $r_s = 4$，其中 $\theta = 1$。我们还展示了基于文献 [75]的神经网络表示得到的精确均匀电子气结果（黑色实线）。

这一结论是在直接微扰方法框架下得出的。据我们所知，这是首次为无序系统定义恰当的宏观KS响应函数。现在，我们可以展示不一致的 $\chi_M^0(q)$对从 $\chi(q)$中提取交换-关联核所产生的影响。

在图1中，我们比较了使用 $\chi_{\rm KS}(q)$（一致的宏观KS响应函数）和$\chi_M^0(q)$（不一致的宏观KS响应函数），从 $\chi(q)$的路径积分蒙特卡罗和KS-密度泛函理论数据中提取的静态交换-关联核。图1中的KS-密度泛函理论数据采用了局域密度近似泛函。从图1a）可以看出，在 $r_s = 2$ 和$\theta = 1$处，基于 $\chi_{\rm KS}(q)$ 和 $\chi_M^0(q)$ 的数据在 $q < 2q_F$ 时彼此吻合，而在 $q > 2q_F$ 时则明显不同。在 $r_s = 4$ 和 $\theta = 1$处，从图1b）可以看出，基于 $\chi_{\rm KS}(q)$ 和 $\chi_M^0(q)$ 得到的交换-关联核结果不仅在定量上不同，在定性上也不同。事实上，基于 $\chi_{\rm KS}(q)$ 得到的交换-关联核始终为正，而使用 $\chi_M^0(q)$ 计算的交换-关联核则存在负值。参考文献 [68] 将这种定性上的分歧解释为绝热局域密度近似失效。在这里我们表明，问题实际上并非绝热局域密度近似失效，而是因为在方程（15）中将 $\chi_M^0(q) = \chi^0$G,G(k ω)用作宏观KS响应函数。

V. 结论与展望

近年来，随着研究重点转向无序系统，Moldabekov 等人 [34] 提出了一种基于直接微扰的方法，可利用任何可用的交换-关联泛函计算静态交换-关联核。本文展示了如何在$\chi(q,\omega)$中，利用这一静态交换-关联核，在绝热近似（由方程（19）和图1）表示）下进行动态密度响应函数的线性响应时变密度泛函理论计算。关键在于采用方程（18）所引入的恰当且一致的宏观KS响应函数。再次强调，本文提出的针对 $\chi(q,\omega)$的绝热近似，在用于计算交换-关联核的交换-关联泛函与用于KS响应函数的交换-关联泛函之间完全一致。我们已证明，KS响应函数与交换-关联核的不一致组合会导致定量上、甚至定性上都错误的结果。此外，根据所进行的分析，我们得出结论：一种适用于不同参数的通用静态交换-关联核极不可能存在。相反，必须使用态和材料特定的静态交换-关联核，该核可通过直接微扰方法计算。

此外，我们详细研究了对交换-关联势所作近似对温稠密氢的密度响应函数和交换-关联核的影响。我们展示了：a) 所提出方案在与参考KS响应函数自洽的静态交换-关联核中的应用；b) 这种自洽性在描述静态密度响应函数中的作用；c) 利用温稠密氢的精确PIMC数据对静态密度响应函数进行分析；以及 d) 交换-关联泛函的变化对宏观KS响应函数和交换-关联核的作用。

我们发现，在 $\theta = 1$ 条件下，TR 和 RPP 元广义梯度近似层级的近似表现不如基态局域密度近似和 PBE 泛函。结合此前关于元广义梯度近似层级的 SCAN 泛函在温稠密物质条件下效果不佳的发现 [34], , TP 和 RPP 对部分简并电子存在的问题表明，以局域密度近似为基础构建交换-关联泛函的标准方案并不能更好地描述温稠密物质。事实上，即使在局域密度近似层级，将温度依赖显式纳入交换-关联泛函，也会降低温稠密物质条件下 KS-DFT 结果的质量 [34]。因此，显然，温稠密物质状态下的交换-关联泛函开发需要采用新颖的创新方法。例如，最近有研究表明，如果选择混合系数以重现均匀电子气的交换-关联核，那么将精确 Hartree–Fock交换与 PBE交换混合的 PBE0 型混合泛函，可以在温稠密物质参数下良好地描述均匀电子气 [51, 52]。现在，利用本文提出的一致方法，这项针对 PBE0 型混合泛函的分析可以拓展到温稠密氢等真实材料。

本文提出的一致绝热近似的一个重要潜在应用，是 $\chi(q,\ \omega)$ 对温稠密物质 XRTS测量的分析与建模 [106, 107]。这是可行的，因为已知 $\chi(q,\ \omega)$ 后，便可通过涨落耗散定理直接得到电子的动态结构因子 $S_{ee}(\mathbf{q}\ \omega)$ [47]。此外，已知 $\chi(q,\ \omega)$ 等价于已知动态介电函数 $\varepsilon(q,\ \omega)$，后者又可用于计算电导率 [32]和阻止本领等输运性质 [108]。

最后，我们指出，构建量子流体动力学 [47, 109–111], 和等离激元学 [112–116] 的有效势 [117], , 以及计算高能量密度等离子体 [118–120]的能量损失特性，都需要一致的静态交换-关联核。

致谢

本研究由先进系统理解中心（CASUS）资助。该中心的经费来自德国联邦教育与研究部（BMBF）以及萨克森州政府根据萨克森州议会批准的州预算拨付的资金。我们衷心感谢通过项目编号 shp00026 获得的北德高性能计算联合会（HLRN）计算资源，以及德累斯顿工业大学信息服务与高性能计算中心（ZIH）的 Bull 集群资源。

[1] A. B. Zylstra, O. A. Hurricane, D. A. Callahan, A. L. Kritcher, J. E. Ralph, H. F. Robey, J. S. Ross, C. V. Young, K. L. Baker, D. T. Casey, T. D¨oppner, L. Di- vol, M. Hohenberger, S. Le Pape, A. Pak, P. K. Pa- tel, R. Tommasini, S. J. Ali, P. A. Amendt, L. J. Atherton, B. Bachmann, D. Bailey, L. R. Benedetti, L. Berzak Hopkins, R. Betti, S. D. Bhandarkar, J. Bi- ener, R. M. Bionta, N. W. Birge, E. J. Bond, D. K. Bradley, T. Braun, T. M. Briggs, M. W. Bruhn, P. M. Celliers, B. Chang, T. Chapman, H. Chen, C. Choate, A. R. Christopherson, D. S. Clark, J. W. Crippen, E. L. Dewald, T. R. Dittrich, M. J. Edwards, W. A. Farmer, J. E. Field, D. Fittinghoff, J. Frenje, J. Gaffney, M. Gatu Johnson, S. H. Glenzer, G. P. Grim, S. Haan, K. D. Hahn, G. N. Hall, B. A. Hammel, J. Harte, E. Har- touni, J. E. Heebner, V. J. Hernandez, H. Herrmann, M. C. Herrmann, D. E. Hinkel, D. D. Ho, J. P. Holder, W. W. Hsing, H. Huang, K. D. Humbird, N. Izumi, L. C. Jarrott, J. Jeet, O. Jones, G. D. Kerbel, S. M. Kerr, S. F. Khan, J. Kilkenny, Y. Kim, H. Geppert Klein- rath, V. Geppert Kleinrath, C. Kong, J. M. Koning, J. J. Kroll, M. K. G. Kruse, B. Kustowski, O. L. Lan- den, S. Langer, D. Larson, N. C. Lemos, J. D. Lindl, T. Ma, M. J. MacDonald, B. J. MacGowan, A. J. Mackinnon, S. A. MacLaren, A. G. MacPhee, M. M. Mari- nak, D. A. Mariscal, E. V. Marley, L. Masse, K. Meaney, N. B. Meezan, P. A. Michel, M. Millot, J. L. Milovich, J. D. Moody, A. S. Moore, J. W. Morton, T. Murphy, K. Newman, J.-M. G. Di Nicola, A. Nikroo, R. Nora, M. V. Patel, L. J. Pelz, J. L. Peterson, Y. Ping, B. B. Pollock, M. Ratledge, N. G. Rice, H. Rinderknecht, M. Rosen, M. S. Rubery, J. D. Salmonson, J. Sater, S. Schiaffino, D. J. Schlossberg, M. B. Schneider, C. R. Schroeder, H. A. Scott, S. M. Sepke, K. Sequoia, M. W. Sherlock, S. Shin, V. A. Smalyuk, B. K. Spears, P. T. Springer, M. Stadermann, S. Stoupin, D. J. Strozzi, L. J. Suter, C. A. Thomas, R. P. J. Town, E. R. Tubman, C. Trosseille, P. L. Volegov, C. R. Weber, K. Widmann, C. Wild, C. H. Wilde, B. M. Van Wonterghem, D. T. Woods, B. N. Woodworth, M. Yamaguchi, S. T. Yang, and G. B. Zimmerman, “在惯性约束聚变中实现燃烧等离子体,” 《自然》 **601**, 542–548（2022年）。

[2] R. Betti 和 O. A. Hurricane，“激光惯性约束聚变”，《自然·物理学》12，435–448（2016年）。[3] Andrea L. Kritcher、Damian C. Swift、Tilo D¨oppner、Benjamin Bachmann、Lorin X. Benedict、Gilbert W. Collins、Jonathan L. DuBois、Fred Elsner、Gilles Fontaine、Jim A. Gaffney、Sebastien Hamel、Amy Laz- icki、Walter R. Johnson、Natalie Kostinski、Dominik Kraus、Michael J. MacDonald、Brian Maddox、Madi- son E. Martin、Paul Neumayer、Abbas Nikroo、Joseph Nilsen、Bruce A. Remington、Didier Saumon、Phillip A. Sterne、Wendi Sweet、Alfredo A. Correa、Heather D. Whitley、Roger W. Falcone 和 Siegfried H. Glenzer，“对白矮星碳包层状态方程的测量”，《自然》584，51–54（2020年）。[4] D. Kraus、J. Vorberger、A. Pak、N. J. Hartley、L. B. Fletcher、S. Frydrych、E. Galtier、E. J. Gamboa、D. O. Gericke、S. H. Glenzer、E. Granados、M. J. MacDonald、A. J. MacKinnon、E. E. McBride、I. Nam、P. Neumayer、M. Roth、A. M. Saunders、A. K. Schuster、P. Sun、T. van Driel、T. D¨oppner 和 R. W. Falcone，“行星内部条件下激光压缩烃类中金刚石的形成”，《自然·天文学》1，606–611（2017年）。[5] A. Lazicki、D. McGonegle、J. R. Rygg、D. G. Braun、D. C. Swift、M. G. Gorman、R. F. Smith、P. G. Heigh- way、A. Higginbotham、M. J. Suggit、D. E. Fratanduono、F. Coppari、C. E. Wehrenberg、R. G. Kraus、D. Erskine、J. V. Bernier、J. M. McNaney、R. E. Rudd、G. W. Collins、J. H. Eggert 和 J. S. Wark，“斜坡压缩至2太帕的金刚石亚稳性”，《自然》589，532–535（2021年）。[6] D. Kraus、A. Ravasio、M. Gauthier、D. O. Gericke、J. Vorberger、S. Frydrych、J. Helfrich、L. B. Fletcher、G. Schaumann、B. Nagler、B. Barbrel、B. Bachmann、E. J. Gamboa、S. G¨ode、E. Granados、G. Gregori、H. J. Lee、P. Neumayer、W. Schumaker、T. D¨oppner、R. W. Falcone、S. H. Glenzer 和 M. Roth，“石墨经冲击压缩后在纳秒尺度形成金刚石和蓝丝黛尔石”，《自然·通讯》7，10970（2016年）。[7]Anja Katharina Schuster、Katja Voigt、Benjamin Klemmed、Nicholas J Hartley、Julian B L¨utgert，min

zhang、Carsten B¨ahtz、Albrecht Benad、Christian Brabetz、Thomas Cowan、Tilo Doeppner、Denise J Erb、Alexander Eychmueller、Stefan Facsko、Roger Fal- cone、Luke B Fletcher、Simon Frydrych、Georg C Ganzenm¨uller、Dirk O Gericke、Siegfried H Glen- zer、Joerg Grenzer、Uwe Helbig、Stefan Hiermaier、Ren´e H¨ubner、Alejandro Laso Garcia、Hae Ja Lee、Michael J MacDonald、Emma McBride、Paul Neu- mayer、Arthur Pak、Alexander Pelka、Irene Prencipe、Alexey Prosvetov、Alexander Rack、Alessandra Ravasio、Ronald Redmer、Dirk Reemts、Melanie R¨odel、Markus Schoelmerich、Dennis Schumacher、Marilena Tomut、Sally J Turner、Alison M Saunders、Peihao Sun、Jan Vorberger、Alex Zettl 和 Dominik Kraus，“激光冲击加载石墨和烃靶材后释放云团的回收：寻找金刚石”，《物理学杂志D：应用物理》（2022年）。[8] S. X. Hu、B. Militzer、V. N. Goncharov 和 S. Skupsky，“用于惯性约束聚变的氘第一性原理状态方程表”，《物理评论B》84，224109（2011年）。[9] Thomas Tschentscher、Christian Bressler、Jan Gr¨unert、Anders Madsen、Adrian P. Mancuso、Michael Meyer、Andreas Scherz、Harald Sinn 和 Ulf Zastrau，“欧洲XFEL的光子束传输与科学仪器”，《应用科学》7，592（2017年）。[10] Zhiyu He、Melanie R¨odel、Julian L¨utgert、Armin Berg- ermann、Mandy Bethkenhagen、Deniza Chekrygina、Thomas E. Cowan、Adrien Descamps、Martin French、Eric Galtier、Arianna E. Gleason、Griffin D. Glenn、Siegfried H. Glenzer、Yuichi Inubushi、Nicholas J. Hart- ley、Jean-Alexis Hernandez、Benjamin Heuser、Oliver S. Humphries、Nobuki Kamimura、Kento Katagiri、Dim- itri Khaghani、Hae Ja Lee、Emma E. McBride、Ko- hei Miyanishi、Bob Nagler、Benjamin Ofori-Okai、Nori- masa Ozaki、Silvia Pandolfi、Chongbing Qu、Divyanshu Ranjan、Ronald Redmer、Christopher Schoenwaelder、Anja K. Schuster、Michael G. Stevenson、Keiichi Sueda、Tadashi Togashi、Tommaso Vinci、Katja Voigt、Jan Vorberger、Makina Yabashi、Toshinori Yabuuchi、Lisa M. V. Zinta、Alessandra Ravasio 和 Dominik Kraus，“通过小角X射线散射和X射线衍射记录的冲击压缩C-H-O样品中的金刚石形成动力学”，《科学进展》8，eabo0617（2022年）。[11] G. Chabrier、P. Brassard、G. Fontaine 和 D. Saumon，“具有氢大气的冷白矮星冷却序列和颜色-星等图”，Astrophys. J. 543，216–226（2000年）。[12] D. Saumon、W. B. Hubbard、G. Chabrier 和 H. M. van Horn，“氢的分子-金属转变在木星、土星和褐矮星演化中的作用”，Astrophys. J 391，827–831（1992年）。[13] A. K. Schuster、N. J. Hartley、J. Vorberger、T. D¨oppner、T. van Driel、R. W. Falcone、L. B. Fletcher、S. Frydrych、E. Galtier、E. J. Gamboa、D. O. Gericke、S. H. Glenzer、E. Granados、M. J. MacDonald、A. J. MacKinnon、E. E. McBride、I. Nam、P. Neumayer、A. Pak、I. Prencipe、K. Voigt、A. M. Saunders、P. Sun 和 D. Kraus，“测量烃类在与冰巨行星内部相当条件下的金刚石成核速率”，《物理评论B》101，054301（2020年）。[14] R. F. Smith、J. H. Eggert、R. Jeanloz、T. S. Duffy、D. G. Braun、J. R. Patterson、R. E. Rudd、J. Biener、A. E. Lazicki、A. V. Hamza、J. Wang、T. Braun、L. X. Benedict、P. M. Celliers 和 G. W. Collins，“将金刚石斜坡压缩至五太帕”，《自然》511，330 333 2014–（）。[15] J. Daligault 和 S. Gupta，“高密度多组分等离子体中的电子-离子散射：在吸积星外壳层中的应用”，《天体物理学杂志》703，994–1011（2009）。[16] F. Graziani、M. P. Desjarlais、R. Redmer 和 S. B. Trickey（编），*Frontiers and Challenges in Warm Dense Matter* 2014 （施普林格，国际出版，）。[17] M. Bonitz、T. Dornheim、Zh. A. Moldabekov、S. Zhang、P. Hamann、H. K¨ahlert、A. Filinov、K. Ramakrishna 和 J. Vorberger，“温稠密物质的第一性原理模拟”，《等离子体物理学》27，042710（2020）。[18] Tobias Dornheim、Zhandos A. Moldabekov、Kushal Ra-makrishna、Panagiotis Tolias、Andrew D. Baczewski、Dominik Kraus、Thomas R. Preston、David A. Chap-man、Maximilian P. B¨ohme、Tilo D¨oppner、Frank Graziani、Michael Bonitz、Attila Cangi 和 Jan Vor-berger，“温稠密物质的电子密度响应”，（2022）。[19] T. Dornheim、S. Groth 和 M. Bonitz，“ 温稠密物质条件下的均匀电子气 ”，《物理报告》744，1–86（2018）。[20] T. Dornheim，“路径积分蒙特卡罗模拟中的费米子符号问题：量子点、超冷原子和温稠密物质”，《物理评论E》100，023307 2019（）。[21] K. P. Driver 和 B. Militzer，“温稠密物质的全电子路径积分蒙特卡罗模拟：水和碳等离子体的应用”，《物理评论快报》108，115502（2012）。[22] Aurora Pribram-Jones、Stefano Pittalis、E. K. U. Gross 和 Kieron Burke，“语境中的热密度泛函理论”，载于 *Frontiers and Challenges in Warm Dense Matter* ，Frank Graziani、Michael P. Desjarlais、Ronald Redmer 和 Samuel B. Trickey 编（施普林格国际出版，Cham，2014），第25–60页。[23] V. V. Karasiev、L. Calderin 和 S. B. Trickey，“有限温度交换关联对温稠密物质计算的重要性”，《物理评论E》93，063207 2016（）。[24]Kushal Ramakrishna、Tobias Dornheim 和 Jan Vorberger，“有限温度交换关联效应对氢的影响”，《物理评论B》101，195129 2020（）。[25] S. H. Glenzer 和 R. Redmer，“高能量密度等离子体中的X射线汤姆孙散射”，《现代物理评论》81，1625（2009）。[26] J. S heffield、D. Froula、S.H. Glenzer 和 N.C. Luh-mann, *Plasma Scattering of Electromagnetic Radiation: Theory and Measurement Techniques*（爱思唯尔科学出版社，2010）。[27] G. Gregori、S. H. Glenzer、W. Rozmus、R. W. Lee 和 O. L. Landen，“作为致密物质探针的X射线散射理论模型”，《物理评论E》67，026412（2003）。[28] D. Kraus、B. Bachmann、B. Barbrel、R. W. Falcone、L. B. Fletcher、S. Frydrych、E. J. Gamboa、M. Gauthier、D. O. Gericke、S. H. Glenzer、S. G¨ode、E. Granados、N. J. Hartley、J. Helfrich、H. J. Lee、B. Nagler、A. Rava-sio、W. Schumaker、J. Vorberger 和 T. D¨oppner，“利用高精度、光谱分辨的X射线散射表征高密度碳等离子体中的电离势降低”，等离子体物理与受控聚变

61，014015（2019年）。
[29] Tobias Dornheim、Maximilian B¨ohme、Dominik Kraus、Tilo D¨oppner、Thomas R. Preston、Zhandos A. Mold- abekov 和 Jan Vorberger，“极端条件物质的精确温度诊断”，《自然·通讯》13，7911（2022年）。[30] Tobias Dornheim、Maximilian B¨ohme、Dave Chapman、Dominik Kraus、Tilo D¨oppner、Thomas R. Preston、Zhandos A. Moldabekov 和 Jan Vorberger，“X射线汤姆孙散射数据的温度分析”（2022年），10.48550/ARXIV.2212.10510。[31] M.A.L. Marques、N.T. Maitra、F.M.S. Nogueira、E.K.U. Gross 和 A. Rubio，*Fundamentals of Time-Dependent Density Functional Theory*，《物理学讲义》（施普林格·柏林·海德堡，2012年）。[32] Paul Hamann、Tobias Dornheim、Jan Vorberger、Zhandos A. Moldabekov 和 Michael Bonitz，“基于*abinitio* 路径积分蒙特卡罗模拟的暖密致电子气动态性质”，《物理评论B》102，125150（2020年）。[33] E. K. U. Gross 和 Walter Kohn，“频率依赖线性响应的局域密度泛函理论”，《物理评论快报》55，2850–2852（1985年）。[34]Zhandos Moldabekov、Maximilian B¨ohme、Jan Vor- berger、David Blaschke 和 Tobias Dornheim，“无需泛函导数、跨越雅各布天梯的第一性原理静态交换-关联核”，《化学理论与计算杂志》（2023年），10.1021/acs.jctc.2c01180。[35] S. Moroni、D. M. Ceperley 和 G. Senatore，“量子蒙特卡罗计算得到的静态响应”，《物理评论快报》69，1837（1992年）。[36] S. Moroni、D. M. Ceperley 和 G. Senatore，“电子气的静态响应与局域场因子”，《物理评论快报》75，689（1995年）。[37] C. Bowen、G. Sugiyama 和 B. J. Alder，“电子气的静态介电响应”，《物理评论B》50，14838，1994年。[38] Tobias Dornheim、Jan Vorberger 和 Michael Bonitz，“暖密致物质中的非线性电子密度响应”，《物理评论快报》125，085001（2020年）。[39] Zhandos Moldabekov、Jan Vorberger 和 Tobias Dorn- heim，“密度泛函理论视角下跨温度区间关联电子的非线性响应”，《化学理论与计算杂志》18，2900–2912（2022年）。[40] Nathan Wiser，“计入局域场效应的介电常数”，《物理评论》129，62–69（1963年）。[41] Stephen L. Adler，“真实固体介电常数的量子理论”，《物理评论》126，413–420（1962年）。[42] Carsten A. Ullrich，*Time-Dependent Density-Functional Theory: Concepts and Applications*（牛津大学出版社，2011年）。[43] A. A. Kugler，“电子气局域场修正理论”，《统计物理学杂志》12，35（1975年）。[44] Carsten Fortmann、August Wierling 和 Gerd R¨opke，“局域场修正对碰撞主导的双组分等离子体中汤姆孙散射的影响”，《物理评论E》81，026405（2010年）。[45] H. Reinholz、R. Redmer、G. R¨opke 和 A. Wier- ling，“双组分等离子体动态局域场因子和动态电导率的长波长极限”，《物理评论E》62，5648–5666（2000年）。
[46] Paul Hamann、Jan Vorberger、Tobias Dornheim、Zhan- dos A. Moldabekov 和 Michael Bonitz，“温稠密电子气等离激元色散与阻尼的第一性原理结果”，《等离子体物理学进展》60，e202000147（2020年）。[47] G. Giuliani 和 G. Vignale，*Quantum Theory of theElectron Liquid*（剑桥大学出版社，Cam- bridge，2008）。[48] K. Kunc 和 E. Tosatti，“半导体中逆介电矩阵的‘直接’计算”，《物理评论B》29，7045–7047（1984）。[49] Andrzej Fleszar 和 Raffaele Resta，“半导体中的介电矩阵：一种直接方法”，《物理评论B》31，5305–5310（1985）。[50]Arto Sakko、Angel Rubio、Mikko Hakala 和 Keijo H¨am¨al¨ainen，“用于计算分子非弹性X射线散射谱的含时密度泛函方法”，《化学物理学杂志》133，174111（2010年）。[51] Zhandos Moldabekov、Mani Lokamani、Jan Vorberger、Attila Cangi 和 Tobias Dornheim，“评估杂化交换-关联泛函对温稠密电子密度响应的准确性”，《化学物理学杂志》（2023年），10.1063/5.0135729。[52]Zhandos A. Moldabekov、Mani Lokamani、Jan Vor- berger、Attila Cangi 和 Tobias Dornheim，“通过分析交换-关联核确定杂化交换-关联泛函的非经验混合系数”，《物理化学快报》14，1326–1333（2023年）。[53] A. D. Baczewski、L. Shulenburger、M. P. Desjarlais、S. B. Hansen 和 R. J. Magyar，“无需Chihara分解的温稠密物质X射线汤姆孙散射”，《物理评论快报》116，115004（2016年）。[54]Kushal Ramakrishna、Mani Lokamani、Andrew Baczewski、Jan Vorberger 和 Attila Cangi，“基于微观欧姆定律的地球内核铁电导率”，arXiv预印本 arXiv:2203.06025（2022年）。[55] Young-Moo Byun、Jiuyu Sun 和 Carsten A Ullrich，“周期性固体的含时密度泛函理论：激子交换-关联核评估”，Electronic Structure 2，023002（2020年）。[56] Gianni Adragna、Rodolfo Del Sole 和 Andrea Marini，“扩展体系中交换-关联核的第一性原理计算”，《物理评论B》68，165108（2003年）。[57] Richard M. Martin、Lucia Reining 和 David M. Ceperley，*Interacting Electrons: Theory and Computational Approaches* 2016（剑桥大学出版社，）。[58] Mark S. Hybertsen 和 Steven G. Louie，“基于密度泛函方法的第一性原理静态介电矩阵。I. 半导体和绝缘体的公式与应用”，《物理评论B》35，5585–5601（1987年）。[59]Giovanni Onida、Lucia Reining 和 Angel Ru- bio，“电子激发：密度泛函方法与多体格林函数方法”，Rev. Mod. Phys. 74，601–659（2002年）。[60] I. G. Gurtubay、J. M. Pitarke、Wei Ku、A. G. Eguiluz、B. C. Larson、J. Tischler、P. Zschack 和 K. D. Finkelstein，“过渡金属中的电子-空穴与等离激元激发：第一性原理计算和非弹性X射线散射测量”，《物理评论B》72，125117 2005（）。

[61]市丸节夫、三竹伸一、田中茂典和严新中，“致密高温等离子体中粒子间关联理论。I. 一般形式体系”，Phys. Rev. A 32，1768–1774（1985年）。[62] P. Hollebon、O. Ciricosta、M. P. Desjarlais、C. Cacho、C. Spindloe、E. Springate、I. C. E. Turcu、J. S. Wark 和 S. M. Vinko，“铝中自由-自由不透明度的第一性原理模拟与测量”，《物理评论E》100，043207（2019年）。[63] S. Ichimaru，“强耦合等离子体：高密度经典等离子体与简并电子液体”，Rev. Mod. Phys 54，1017（1982）。[64] P. Sperling、E. J. Gamboa、H. J. Lee、H. K. Chung、E. Galtier、Y. Omarbakiyeva、H. Reinholz、G. R¨opke、U. Zastrau、J. Hastings、L. B. Fletcher 和 S. H. Glenzer，“自由电子X射线激光器对等容加热温稠密物质中碰撞阻尼等离激元的测量”，《物理评论快报》115，115001（2015年）。[65] B. B. L. Witte、L. B. Fletcher、E. Galtier、E. Gamboa、H. J. Lee、U. Zastrau、R. Redmer、S. H. Glenzer 和 P. Sperling，“通过非线性等离激元阻尼观测揭示温稠密物质呈现非Drude电导率”，《物理评论快报》118，225001（2017年）。[66] KU Plage mann、P Sperling、R Thiele、MP Desjarlais、C Fortmann、T D¨oppner、HJ Lee、Siegfried H Glen- zer 和 R Redmer，“暖稠密铍中的动态结构因子”，New Journal of Physics 14，055020（2012年）。[67]D. Kre mp、M. Schlanges 和 T. Bornath，*Quantum Statistics of Nonideal Plasmas*，《施普林格原子、光学与等离子体物理丛书》（施普林格，2005年）。[68] Maximilian B¨ohme、Zhandos A. Moldabekov、Jan Vor- berger 和 Tobias Dornheim，“暖稠密氢的静态电子密度响应：第一性原理路径积分蒙特卡罗模拟”，《物理评论快报》129，066402 2022（）。[69] Tobias Dornheim、Maximilian B¨ohme、Zhandos A. Moldabekov、Jan Vorberger 和 Michael Bonitz，“超越线性响应理论的温稠密电子气密度响应：谐波激发”，Phys. Rev. Research 3，033231（2021年）。[70] John P. Perdew 和 Karla Schmidt，“密度泛函近似的Jacob阶梯：交换-关联能”，AIP 会议论文集577，1 20 2001–（）。[71] Jianmin Tao、Jo hn P. Perdew、Viktor N. Staroverov 和 Gustavo E. Scuseria，“攀登密度泛函阶梯：为分子和固体设计的非经验Meta广义梯度近似”，Physical Review Letters 91，146401（2003年）。[72] T. Dornheim、S. Groth、J. Vorberger 和 M. Bonitz，“关联电子动态结构因子的第一性原理路径积分蒙特卡罗结果：从电子液体到温稠密物质”，《物理评论快报》121，255001（2018年）。[73] Zh.A. Moldabekov、S. Groth、T. Dornheim、H. K¨ahlert、M. Bonitz 和 T. S. Ramazanov，“致密量子等离子体中强耦合离子的结构特征”，《物理评论E》98，023207（2018年）。[74] Zhandos Moldabekov、Patrick Ludwig、Michael Bonitz 和 Tlekkabul Ramazanov，“温稠密物质中的离子势：流动简并电子导致的尾迹效应”，《物理评论E》91，023102（2015年）。

[75] T. Dornheim、J. Vorberger、S. Groth、N. Hoffmann、Zh.A. Moldabekov 和 M. Bonitz，“暖密致电子气的静态局域场修正：一项第一性原理路径积分蒙特卡罗研究及机器学习表征”，《化学物理杂志》151，194104（2019年）。[76]Tobias Dornheim、Zhandos A Moldabekov、Jan Vorberger 和 Simon Groth，“高能量密度区域中均匀电子气的第一性原理路径积分蒙特卡罗模拟”，《等离子体物理与受控聚变》62，075003（2020年）。[77] Zhandos Moldabekov、Tobias Dornheim、Maximilian B¨ ohme、Jan Vorberger 和 Attila Cangi，“暖密致电子气中电子扰动的相关性”，《化学物理学杂志》155，124116（2021年）。[78] Zhandos A. Moldabekov、Tobias Dornheim 和 At- tila Cangi，“非均匀暖密致电子气中的热激发信号”，《科学报告》12，1093（2022年）。[79]Xavier Gonze、Bernard Amadon、Gabriel Antonius、Fr´ed´eric Arnardi、Lucas Baguet、Jean-Michel Beuken、Jordan Bieder、Fran¸cois Bottin、Johann Bouchet、Eric Bousquet、Nils Brouwer、Fabien Bruneval、Guillaume Brunin、Th´eo Cavignac、Jean-Baptiste Charraud、Wei Chen、Michel Cˆot´e、Stefaan Cottenier、Jules De- nier、Gr´egory Geneste、Philippe Ghosez、Matteo Gi- antomassi、Yannick Gillet、Olivier Gingras、Donald R. Hamann、Geoffroy Hautier、Xu He、Nicole Helbig、Na- talie Holzwarth、Yongchao Jia、Fran¸cois Jollet、William Lafargue-Dit-Hauret、Kurt Lejaeghere、Miguel A. L. Marques、Alexandre Martin、Cyril Martins、Henrique P. C. Miranda、Francesco Naccarato、Kristin Pers- son、Guido Petretto、Valentin Planes、Yann Pouil- lon、Sergei Prokhorenko、Fabio Ricci、Gian-Marco Rig- nanese、Aldo H. Romero、Michael Marcus Schmitt、Marc Torrent、Michiel J. van Setten、Benoit Van Tro- eye、Matthieu J. Verstraete、Gilles Z´erah 和 Josef W. Zwanziger，“abinit项目：影响、环境与近期进展”，《计算物理通讯》248，107042（2020年）。[80] Aldo H. Romero、Douglas C. Allan、Bernard Amadon、Gabriel Antonius、Thomas Applencourt、Lucas Baguet、Jordan Bieder、Fran¸cois Bottin、Johann Bouchet、Eric Bousquet、Fabien Bruneval、Guillaume Brunin、Damien Caliste、Michel Cˆot´e、Jules Denier、Cyrus Dreyer、Philippe Ghosez、Matteo Giantomassi、Yannick Gillet、Olivier Gingras、Donald R. Hamann、Geoffroy Hautier、Fran¸cois Jollet、G´erald Jomard、Alexandre Martin、Henrique P. C. Miranda、Francesco Naccarato、Guido Petretto、Nicholas A. Pike、Valentin Planes、Sergei Prokhorenko、Tonatiuh Rangel、Fabio Ricci、Gian- Marco Rignanese、Miquel Royo、Massimiliano Stengel、Marc Torrent、Michiel J. van Setten、Benoit Van Tro- eye、Matthieu J. Verstraete、Julia Wiktor、Josef W. Zwanziger 和 Xavier Gonze，“Abinit：概述及精选功能介绍”，《化学物理杂志》152，124102（2020年）。[81] X. Gonze、F. Jollet、F. Abreu Araujo、D. Adams、B. Amadon、T. Applencourt、C. Audouze、J.-M. Beuken、J. Bieder、A. Bokhanchuk、E. Bousquet、F. Bruneval、D. Caliste、M. Cˆot´e、F. Dahm、F. Da Pieve、M. Delaveau、M. Di Gennaro、B. Dorado、C. Es- pejo、G. Geneste、L. Genovese、A. Gerossier、M. Gi-

antomassi、Y. Gillet、D.R. Hamann、L. He、G. J omard、J. Laflamme Janssen、S. Le Roux、A. Levitt、A. Lher- bier、F. Liu、I. Luka˘cevi´c、A. Martin、C. Martins、M.J.T. Oliveira、S. Ponc´e、Y. Pouillon、T. Rangel、G.-M. Rig- nanese、A.H. Romero、B. Rousseau、O. Rubel、A.A. Shukri、M. Stankovski、M. Torrent、M.J. Van Setten、B. Van Troeye、M.J. Verstraete、D. Waroquiers、J. Wik- tor、B. Xu、A. Zhou 和 J.W. Zwanziger，“ABINIT软件包的最新进展”，《计算物理通讯》205，106–131（2016年）。[82] X. Gonze、B. Amadon、P.-M. Anglade、J.-M. Beuken、F. Bottin、P. Boulanger、F. Bruneval、D. Caliste、R. Caracas、M. Cˆot´e、T. Deutsch、L. Genovese、Ph. Ghosez、M. Giantomassi、S. Goedecker、D.R. Hamann、P. Hermet、F. Jollet、G. Jomard、S. Leroux、M. Mancini、S. Mazevet、M.J.T. Oliveira、G. Onida、Y. Pouillon、T. Rangel、G.-M. Rignanese、D. Sangalli、R. Shaltaf、M. Torrent、M.J. Verstraete、G. Zerah 和 J.W. Zwanziger，“ABINIT：用于材料和纳米系统性质的第一性原理方法”，《计算物理通讯》180，2582–2615（2009年）。[83] X. Gonze、G.-M. Rignanese、M. Verstraete、J.-M. Beuken、Y. Pouillon、R. Caracas、F. Jollet、M. Torrent、G. Zerah、M. Mikami、Ph. Ghosez、M. Veithen、J.-Y. Raty、V. Olevano、F. Bruneval、L. Reining、R. Godby、G. Onida 和 D.R. Hamann D.C. Allan，“ABINIT软件包简介”，Zeitschrift f¨ur Kristallographie - Crystalline Materials 220，558–562（2005年）。[84] X. Gonze、J.-M. Beuken、R. Caracas、F. Detraux、M. Fuchs、G.-M. Rignanese、L. Sindic、M. Verstraete、G. Zerah、F. Jollet、M. Torrent、A. Roy、M. Mikami、Ph. Ghosez、J.-Y. Raty 和 D.C. Allan，“材料性质的第一性原理计算：ABINIT软件项目”，《计算材料科学》25，478 492 2002–（）。[85] S. Goedecker、M. Teter 和 J. Hutter，“可分离双空间高斯赝势”，《物理评论B》54，1703–1710（1996年）。[86] John P. Perdew 和 Yue Wang，“电子气关联能的准确、简洁解析表示”，《物理评论B》45，13244–13249（1992年）。[87] J. J. Mortensen、L. B. Hansen 和 K. W. Jacobsen，“投影缀加波方法的实空间网格实现”，《物理评论B》71，035109（2005年）。[88]J Enkovaara、C Rostgaard、J J Mortensen、J Chen、M Du-lak、L Ferrighi、J Gavnholt、C Glinsvad、V Haikola、H A Hansen、H H Kristoffersen、M Kuisma、A H Larsen、L Lehtovaara、M Ljungberg、O Lopez- Acevedo、P G Moses、J Ojanen、T Olsen、V Petzold、N A Romero、J Stausholm-Møller、M Strange、G A Tritsaris、M Vanin、M Walter、B Hammer、H H¨akkinen、G K H Madsen、R M Nieminen、J K Nørskov、M Puska、T T Rantala、J Schiøtz、K S Thygesen 和 K W Jacob- sen，“使用GPAW进行电子结构计算：投影缀加波方法的实空间实现”，《物理学杂志：凝聚态》22，253202（2010年）。[89]Ask Hjorth Larsen、Jens Jørgen Mortensen、Jakob Blomqvist、Ivano E Castelli、Rune Christensen、Marcin Du-lak、Jesper Friis、Michael N Groves、Bjørk Hammer、Cory Hargus、Eric D Hermes、Paul C Jennings、Pe- ter Bjerre Jensen、James Kermode、John R Kitchin、Es- ben Leonhard Kolsbjerg、Joseph Kubal、Kristen Kaas- bjerg、Steen Lysgaard、J´on Bergmann Maronsson、Tris- tan Maxson、Thomas Olsen、Lars Pastewka、Andrew Pe- terson、Carsten Rostgaard、Jakob Schiøtz、Ole Sch¨utt、Mikkel Strange、Kristian S Thygesen、Tejs Vegge、Lasse Vilhelmsen、Michael Walter、Zhenhua Zeng 和 Karsten W Jacobsen，《原子模拟环境——用于原子研究的 Python 库》，《凝聚态物质物理学杂志》29，273002（2017）。[90] S. R. Bahn 和 K. W. Jacobsen，《面向旧版电子结构代码的面向对象脚本接口》，《科学与工程计算》4，56–66（2002）。[91] Jun Yan、J ens. J. Mortensen、Karsten W. Jacobsen 和 Kristian S. Thygesen，《投影缀加波方法中的线性密度响应函数：在固体、表面和界面中的应用》，《物理评论B》83，245122 2011( )。[92] Lenz Fiedler、Zhandos A. Moldabekov、Xuecheng Shao、Kaili Jiang、Tobias Dornheim、Michele Pavanello 和 Attila Cangi，《利用无轨道密度泛函理论加速第一性原理分子动力学中的平衡化》，《物理评论研究》4，043033（2022）。[93] John P. Perdew 和 Yue Wang，《电子气关联能的精确简洁解析表示》，《物理评论B》45，13244–13249（1992）。[94] Maximilian B¨ohme、Zhandos A. Moldabekov、Jan Vor- berger 和 Tobias Dornheim，《温稠密物质条件下氢快照的从头算路径积分蒙特卡罗模拟》，《物理评论E》107，015206（2023）。[95] Aron J. Cohen、Paula Mori-S´anchez 和 Weitao Yang，《对密度泛函理论当前局限性的见解》，《科学》321，792–794（2008）。[96] Anton Kokalj，《XCrySDen——一种用于显示晶体结构和电子密度的新程序》，《分子图形与建模杂志》17，176–179（1999）。[97] Anton Kokalj，《计算机图形学和图形用户界面作为原子尺度物质模拟工具》，《计算材料科学》28，155–168（2003），软件开发用于过程与材料设计研讨会论文集。[98] John P. Perdew、Kieron Burke 和 Matthias Ernz- erhof，《广义梯度近似：简明形式》，《物理评论快报》77，3865–3868（1996）。[99] John P. Perdew、Adrienn Ruzsinszky、G´abor I. Csonka、Oleg A. Vydrov、Gustavo E. Scuseria、Lucian A. Con- stantin、Xiaolan Zhou 和 Kieron Burke，《恢复固体和表面交换的密度梯度展开》，《物理评论快报》100，136406（2008）。[100] R. Armiento 和 A. E. Mattsson，《旨在将表面效应纳入自洽密度泛函理论的泛函》，《物理评论B》72，085108（2005）。[101] Jianwei Sun、Adrienn Ruzsinszky 和 John P. Perdew，《强约束且适当归一化的半局域密度泛函》，《物理评论快报》115，036402（2015）。[102] S. Groth、T. Dornheim、T. Sjostrom、F. D. Malone、W. M. C. Foulkes 和 M. Bonitz，《温稠密物质条件下均匀电子气的第一性原理交换-相关自由能》，《物理评论快报》119，135001 2017( )。

[103]Fabien Tran 和 Peter Blaha，《利用半局域交换-相关势精确计算半导体和绝缘体的带隙》，《物理评论快报》102，226401 2009( )。[104] E. R¨as¨anen、S. Pittalis 和 C. R. Proetto，《Becke–Johnson交换势的普适修正》，《化学物理学杂志》132，044112（2010）。[105] Axel D. Becke 和 Erin R. Johnson，《一种简单的有效交换势》，《化学物理学杂志》124，221101（2006）。[106] T. R. Preston、K. Appel、E. Brambrink、B. Chen、L. B. Fletcher、C. Fortmann-Grote、S. H. Glenzer、E. Grana- dos、S. G¨ ode、Z. Konˆopkov´a、H. J. Lee、H. Marquardt、E. E. McBride、B. Nagler、M. Nakatsutsumi、P. Sper- ling、B. B. L. Witte 和 U. Zastrau，《利用X射线自由电子激光器测量约1毫巴物质中等离激元激发的动量依赖性》，《应用物理快报》114，014101（2019）。[107]S H Glenzer、L B Fletcher、E Galtier、B Nagler、R Alonso-Mori、B Barbrel、S B Brown、D A Chap- man、Z Chen、C B Curry、F Fiuza、E Gamboa、M Gau- thier、D O Gericke、A Gleason、S Goede、E Granados、P Heimann、J Kim、D Kraus、M J MacDonald、A J Mackinnon、R Mishra、A Ravasio、C Roedel、P Sperling、W Schumaker、Y Y Tsui、J Vorberger、U Zastrau、A Fry、W E White、J B Hasting 和 H J Lee，《直线加速器相干光源上的极端条件物质实验》，《物理学杂志B：原子、分子与光学》49，092001（2016），出版方：IOP Publishing。[108] Zh. A. Moldabekov、T. Dornheim、M. Bonitz 和 T. S. Ramazanov，《温稠密物质和非理想致密等离子体条件下自由电子气中的离子能量损失特性与摩擦》，《物理评论E》101，053203（2020）。[109] Tobias Dornheim、Panagiotis Tolias、Zhandos A. Mold- abekov、Attila Cangi 和 Jan Vorberger，《从第一性原理路径积分蒙特卡罗模拟获得有效电子力和有效势》，《化学物理学杂志》156，244113（2022）。[110] G. Senatore、S. Moroni 和 D. M. Ceperley，《液态金属中的局域场因子与有效势》，J。《非晶态固体》205–207，851–854（1996）。[111] Zh.A. Moldabekov，H. K¨ahlert，T. Dornheim，S. Groth，M. Bonitz 和 T. S. Ramazanov，《致密量子等离子体中强耦合离子的动态结构因子》，《物理评论E》99，053203（2019年）。[112] A. Diaw 和 M.S. Murillo，《基于动态密度泛函理论的黏性量子流体动力学模型》，《科学报告》7，15352（2017）。[113] Zh. A. Moldabekov，M. Bonitz 和 T. S. Ramazanov，《等离子体量子流体动力学的理论基础》，《等离子体物理学》25，031903（2018）。[114] Z. A. Moldabekov，T. Dornheim，G. Gregori，F. Graziani，M. Bonitz 和 A. Cangi，《从第一性原理出发，迈向关联多费米子系统的量子流体理论》，《SciPost物理》12，062（2022年）。[115] F. Graziani，Z. Moldabekov，B. Olson 和 M. Bonitz，《温稠密物质中的冲击物理：量子流体动力学视角》，《等离子体物理学进展》62，e202100170（2022年）。[116] Zh.A. Moldabekov，M. Bonitz 和 T.S. Ramazanov，《有限温度下二维和一维电子气的梯度修正与玻姆势》，《等离子体物理学进展》57，499–505（2017年）。[117] Fabio Della Sala，《等离激元学的无轨道方法：线性响应》，《化学物理学杂志》157，104101 2022( )。[118] Ross J. Cortez 和 J ason T. Cassibry，《用于靶点火研究的氘氚锂等离子体阻止本领》，《核聚变》58，026009（2017）。[119] M. K. Issanova，S. K. Kodanova，T. S. Ramazanov，N. Kh. Bastykova，Zh. A. Moldabekov 和 C.-V. Meis- ter，《致密等离子体中的经典散射与阻止本领：衍射和动态屏蔽的影响》，《激光与粒子束》34，457–466（2016年）。[120] Y. H. Ding，A. J. White，S. X. Hu，O. Certik 和 L. A. Collins，《利用含时无轨道密度泛函理论对温稠密物质阻止本领进行的第一性原理研究》，《物理评论快报》121，145001（2018）。