

# 基于 X 射线荧光光谱的温稠密物质 电子结构密度效应研究\*

张志宇<sup>1)</sup> 赵阳<sup>1)</sup> 青波<sup>1)</sup> 张继彦<sup>1)</sup> 马建毅<sup>2)</sup> 林成亮<sup>3)</sup> 杨国洪<sup>1)</sup>  
韦敏习<sup>1)</sup> 熊刚<sup>1)</sup> 吕敏<sup>1)</sup> 黄成武<sup>1)</sup> 朱托<sup>1)</sup> 宋天明<sup>1)</sup> 赵妍<sup>1)</sup>  
张玉雪<sup>1)</sup> 张璐<sup>1)</sup> 李丽灵<sup>1)</sup> 杜华冰<sup>1)</sup> 车兴森<sup>1)</sup>  
黎宇坤<sup>1)</sup> 詹夏宇<sup>1)</sup> 杨家敏<sup>1)†</sup>

1) (中国工程物理研究院激光聚变研究中心, 绵阳 621900)

2) (四川大学原子与分子物理研究所, 成都 610065)

3) (北京应用物理与计算数学研究所, 北京 100088)

(2023 年 7 月 26 日收到; 2023 年 8 月 23 日收到修改稿)

受密度及温度等环境效应影响, 温稠密物质的电子结构显著变化, 其理论描述非常复杂, 精密实验数据亦非常缺乏. 本文通过发展主动探测的 X 射线荧光光谱方法, 从实验上定量研究了密度效应对温稠密物质电子结构的影响, 有助于深入理解温稠密物质的电子结构变化, 并为相关理论模型提供实验验证. 在万焦耳激光装置上, 设计特殊构型黑腔加载约 2 倍固体密度、2 eV 的 Ti 样品. 利用激光辐照 V 产生的热发射线泵浦 Ti 的荧光, 并采用高效高分辨的晶体谱仪诊断样品的 X 射线荧光光谱. 实验结果显示, 2 倍固体密度 Ti 样品荧光谱线  $K_{\beta}$  与  $K_{\alpha}$  的能量差 ( $\Delta E_{K_{\beta}-K_{\alpha}}$ ) 相对于冷样品红移约 2 eV. 理论上采用两种方法进行计算并与实验结果比较, 其中有限温度相对论密度泛函方法高估了密度效应对谱线移动的影响, 而“two-step Hartree-Fock-Slater”方法低估了密度效应的影响.

**关键词:** 温稠密物质, 电子结构, 密度效应, X 射线荧光光谱

**PACS:** 52.27.Gr, 36.20.Kd, 52.70.La, 78.70.En

**DOI:** 10.7498/aps.72.20231215

## 1 引言

温稠密物质 (warm dense matter, WDM) 是介于凝聚态物质和高温等离子体之间的一种过渡态物理体系, 温度在 1—100 eV、密度达到 0.1—10 倍固体密度, 具有强耦合和部分简并特性, 广泛存在于自然天体中, 亦是惯性约束聚变等极端物理过程所必须经历的重要物质状态<sup>[1,2]</sup>. 举例来说, 在激光间接驱动惯性约束聚变<sup>[3]</sup>中, 壳层、燃料都会被

压缩到温热稠密状态, 材料在温稠密状态下的不透明度、状态方程等对内爆性能影响很大<sup>[4-7]</sup>.

相较于孤立原子, 经历加热和压缩的稠密物质, 受环境中自由电子和离子的屏蔽, 其电子波函数发生严重畸变, 出现能级展宽、移动以及压致电离等. 电子结构的变化会改变稠密物质中的辐射与流体物理性质, 影响辐射能的输运和交换、材料的辐射不透明度以及电离平衡等. 鉴于稠密物质微观电子结构的复杂性, 理想等离子体和凝聚态物质模型都不能对其进行准确描述, 而基于第一性原理的

\* 国家自然科学基金 (批准号: 12004351, 11734013) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: yjm70018@sina.cn

理论研究也非常复杂<sup>[8-13]</sup>. 即便是对温度较高的热稠密物质 (几百 eV), 束缚电子几乎被完全电离, 理论方面仍不能完全描述其电子结构行为: Ciricosta 等<sup>[14]</sup> 在 LCLS (linac coherent light source) 装置上的实验结果与 EK (Ecker-Kröll) 电离势降低模型结果符合较好, 但与 SP (Steeart-Pyatt) 电离势降低模型结果符合不好; Hoarty 等<sup>[15]</sup> 在 Orion 装置上的实验结果则刚好相反, 与 SP 电离势降低模型结果符合较好, 但与 EK 电离势降低模型结果符合不好. 对于温度相对较低的温稠密物质 (1—100 eV), 原子核周围还有较多的束缚电子, 相互作用体系及理论描述更加复杂.

随着高功率强激光等技术的发展, 温稠密物质实验研究也逐步开展起来. 在温稠密物质产生方面, 基于强激光的等容加热或冲击加载是开展温稠密物质实验研究的主要加载手段之一<sup>[16-20]</sup>. X 射线光谱是研究温稠密物质电子结构改变及辐射光谱特征的重要手段, 主要包括两种途径: 吸收光谱法和发射光谱法. 自 Bradley 等<sup>[21]</sup> 的研究开始, 利用 X 射线吸收边光谱诊断温稠密物质 K 吸收边的展宽和移动已经开展不少研究<sup>[22-26]</sup>, 观测到温稠密物质 K 吸收边随状态的变化, 且实验结果与理论结果的差异随密度升高而变大. 通过考虑核电子的影响, Mazevet 等<sup>[9,24]</sup> 已经能够在较低密度范围内 ( $Al, < 5 \text{ g/cm}^3$ ) 获得与实验结果符合较好的理论结果, 但是在更高密度情况下, 理论结果与实验结果差距较大. 张坤等<sup>[11]</sup> 通过更好地考虑 K 壳层及 L 壳层电子, 可以在更高密度范围内与实验结果符合. 以上利用吸收边光谱所获得的结果主要研究了温稠密物质吸收边随状态改变而发生的变化, 但是对束缚电子能级结构的变化无法直接研究.

通过束缚-束缚跃迁发射的 keV 能区 X 射线光谱, 可用于研究束缚电子能级结构<sup>[27]</sup>. 但是由于温稠密物质的温度较低, 仅通过电子碰撞激发机制很难产生足够的内壳层空穴, 因此实验中难以测量到 keV 能区的束缚-束缚跃迁 X 射线发射光谱. 为此, 不妨通过外加 X 光泵浦源移除 K 壳层电子并产生空穴, 外壳层电子有一定概率通过跃迁填补空穴并发射荧光, 借助 X 射线荧光光谱可研究温稠密物质的束缚电子能级结构. 不过, 即使利用外源泵浦, 能够产生的发射谱线强度仍然较弱, 因此开展温稠密物质 X 射线荧光光谱实验研究需要克服弱信号测量的问题. 鉴于对实验加载能力与诊断条

件要求非常苛刻, 温稠密物质的荧光光谱实验研究开展得比较少. Hansen 等<sup>[28,29]</sup> 在 Sandia 的 Z 装置利用内爆加载和泵浦的方式获得了掺杂在 Be 壳层中 Fe 的  $K_\alpha$ ,  $K_\beta$  荧光谱线并观测到谱线的红移, 但实验是将 Fe 掺杂在 Be 中, 其环境主要是低原子序数的 Be 离子及电子. Jiang 等<sup>[30]</sup> 利用激光直接驱动斜波压缩产生了约 2 倍固体密度、温度小于 1 eV 的 Co, 利用超热电子泵浦 Co 的荧光, 诊断到其  $K_\beta$  谱线约 2.6 eV 的红移, 与密度泛函方法计算结果一致, 但与不同碰撞辐射模型 (考虑 SP 和 EK 电离势降低) 的理论模拟差异随压缩度增加逐渐增大, 因此开展更多材料及状态下实验与理论的对比研究需求非常迫切.

本文介绍了基于激光间接驱动开展的荧光光谱实验, 获得了压缩状态 Ti 样品的 X 射线荧光光谱并观测到谱线随状态的变化, 研究了密度效应对温稠密物质电子结构的影响, 通过与计算结果的比较校验了两种理论方法.

## 2 实验方法及排布

实验在万焦耳激光装置上开展, 包括荧光光谱测量和样品处辐射源测量两部分内容, 实验示意图如图 1 所示. 如图 1(a) 所示, 在荧光光谱测量实验中, 4 路激光 ( $4 \times 800 \text{ J}$ , 1 ns, 3 倍频) 从上注入口 ( $\Phi 800 \mu\text{m}$ ) 注入用于加载的半腔 (哑铃型黑腔, 材料为 Au) 转换为 X 射线, 激光的焦平面在上注入口位置, 光斑大小为  $\Phi 500 \mu\text{m}$ . 基于特殊的黑腔构型设计, 放置于半腔尾部的 CH 包裹 Ti 样品 (CH/Ti/CH) 不会受到激光打靶点的散射激光以及高能 X 射线的影响, 样品处的辐射场更接近 Planck 辐射场, 会在样品中形成辐射冲击加载产生大于固体密度且温度较低的样品. 4 路激光 ( $4 \times 240 \text{ J}$ , 300 ps, 3 倍频) 从下注入口 ( $\Phi 800 \mu\text{m}$ ) 注入到 V 腔, 产生 V 的  $\text{He}_\alpha$  (5.21 keV) 以及  $\text{Ly}_\alpha$  (5.44 keV) 等特征 X 射线作为泵浦源, 激光的焦平面在下注入口位置, 光斑大小为  $\Phi 500 \mu\text{m}$ . 泵浦源会泵浦 Ti 样品的 K 壳层电子 (电离能约为 4.97 keV), 有一定概率是外壳层 (L, M) 电子通过跃迁填补 K 壳层空穴并发射荧光 ( $K_\alpha$ ,  $K_\beta$ ). Ti 样品荧光光谱的测量是采用晶体谱仪实现的, Ti 样品发射的光谱通过晶体时, 由于布拉格衍射效应, 不同能量的 X 射线会在不同的角度反射从而被色

散, 因此记录设备上的一维空间分辨会转换为谱分辨. 本次实验采用的晶体为 TAM 平面晶体, 其  $2d$  值为  $0.878 \text{ nm}$ . 由于泵浦效率以及荧光发射效率的影响, 荧光信号是一个弱信号, 为了提升信号强度, 实验中采用灵敏度更高的真空 X 光 CCD 作为晶体谱仪的记录设备, 解决了其在真空靶室中使用时的电磁屏蔽问题. 实验中通过调控加载激光与泵浦激光的延时 (各路激光之间的同步或延时精度好于  $30 \text{ ps}$ ), 获得了不同状态 Ti 样品的荧光光谱.

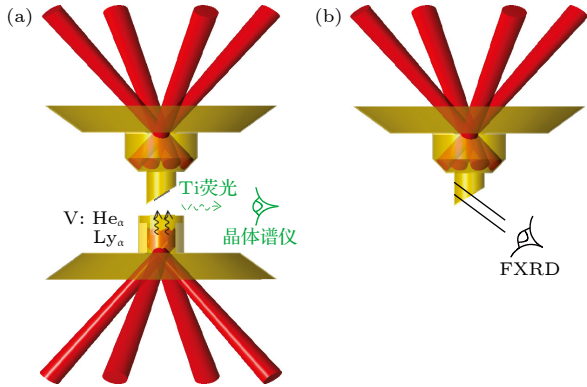


图 1 温稠密 Ti 的荧光光谱实验示意图 (a) 荧光光谱测量; (b) 样品处辐射源测量

Fig. 1. Schematic of the X-ray fluorescence spectrum experiment of warm dense Ti: (a) Measurement of the fluorescence spectrum; (b) measurement of the incident flux of the sample.

为了更好地开展样品状态的模拟及分析, 需要知道样品处加载辐射源的分布. 但是, 实验中无法直接诊断该加载源, 因此采用间接测量的方式. Lindl<sup>[2]</sup> 提出可以通过测量 Au 的再发射辐射温度  $T_R$  来反推入射到 Au 上的辐射温度  $T_I$ :

$$T_I \approx T_R + 0.08 \frac{T_R^{0.3}}{\tau^{0.38}}, \quad (1)$$

其中,  $T$  和  $\tau$  的单位分别为  $100 \text{ eV}$  和  $\text{ns}$ .

如图 1(b) 所示, 在辐射源测量实验中, 4 路激光 ( $4 \times 800 \text{ J}$ ,  $1 \text{ ns}$ , 3 倍频) 从上注入口注入半腔, 半腔尾部无样品, 采用平响应 X 射线衍射仪 (XRD) 从半腔尾部的诊断孔诊断腔壁的再发射辐射流, 进而给出诊断孔 (样品) 处的辐射源. 图 2(a) 给出了实验中诊断到的辐射温度分布  $T_R$  以及利用 Lindl 的方法给出的入射到该区域的辐射温度分布  $T_I$ , 入射辐射温度的峰值约为  $90 \text{ eV}$ . 由于该位置与样品位置很接近, 样品处的入射辐射温度与该结果比较接近. 进而, 利用辐射流体程序 MULTI-1D<sup>[31]</sup> 可以模拟该辐射源加载下 Ti 中心样品的状态演化

过程, 结果如图 2(b) 所示, 冲击到达 Ti 样品的时刻约为  $1.5 \text{ ns}$ , 压缩状态维持约  $400 \text{ ps}$ , 其密度为  $7.2\text{—}9.2 \text{ g/cm}^3$ , 温度在  $1.6\text{—}2.4 \text{ eV}$ .

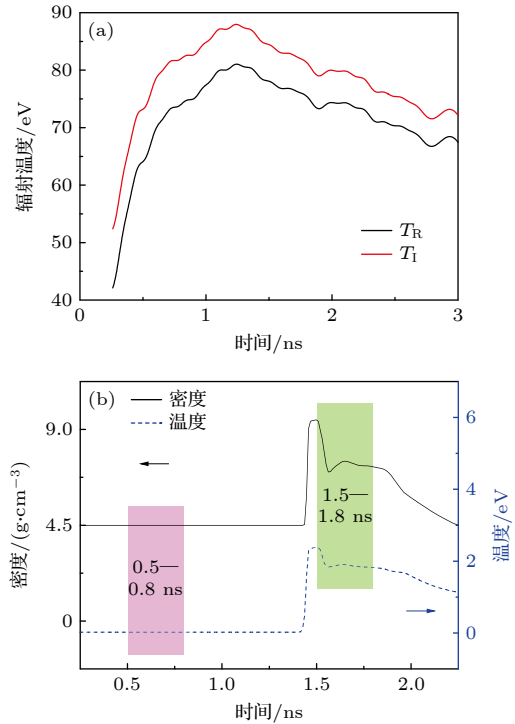


图 2 (a) 样品处再发射流及入流; (b) Ti 样品的密度温度演化过程模拟结果

Fig. 2. (a) Reemission flux and incident flux of gold at the hohlraum center; (b) the simulated density and temperature evolution of Ti sample.

### 3 实验结果及讨论

综合考虑样品压缩状态维持时间和信号强度, 实验中设置泵浦激光的脉宽为  $300 \text{ ps}$ , 通过调控泵浦激光相对加载激光的延时, 获得了不同加载时间 ( $0.5\text{—}0.8 \text{ ns}$ ,  $1.5\text{—}1.8 \text{ ns}$ ) 样品的荧光发射光谱, 如图 3(a) 所示. 为了确认诊断到的光谱是 Ti 样品的荧光光谱, 实验中还开展了本底测量, 将图 1(a) 中的样品去除并保持 4 路加载激光和 4 路泵浦激光注入, 晶体谱仪所诊断的图像中无任何信号, 因此可以确认图 3(a) 中的信号为 Ti 的  $K_\alpha$  以及  $K_\beta$  荧光谱线. 对于诊断窗口为  $0.5\text{—}0.8 \text{ ns}$  的实验结果, 从图 2(b) 可以看出, 此时样品尚未被加载, 谱仪诊断到的是冷样品的荧光光谱. 对于诊断窗口为  $1.5\text{—}1.8 \text{ ns}$  的实验结果, 根据图 2(b) 中样品的状态演化过程, 谱仪诊断到的是压缩样品 ( $7.2\text{—}9.2 \text{ g/cm}^3$ ,  $1.6\text{—}2.4 \text{ eV}$ ) 的荧光光谱.



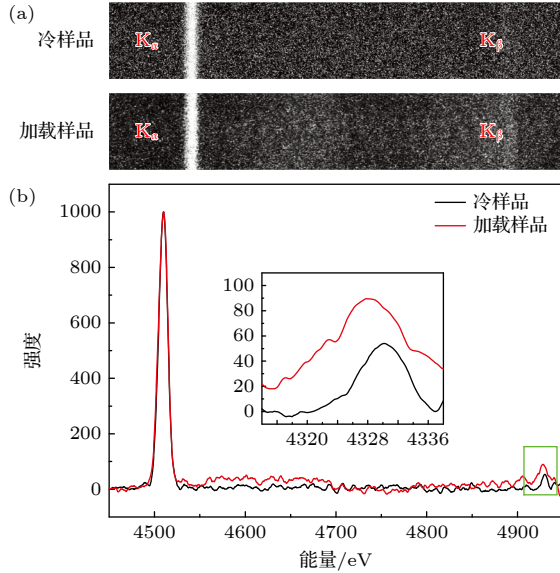


图 3 不同状态 Ti 样品的荧光光谱 (a) 原始图像; (b) 解谱结果

Fig. 3. The X-ray fluorescence spectrum of Ti samples with different state: (a) Original images; (b) spectral results.

冷 Ti 样品的  $K_\alpha$  和  $K_\beta$  的能量已知, 结合布拉格衍射公式, 即可对冷 Ti 样品的荧光光谱图像解谱. 对于压缩样品, 由于内壳层电子受环境效应影响较小, 相对于  $K_\beta$  谱线,  $K_\alpha$  谱线的变化很小, 解谱时设定 Ti 的  $K_\alpha$  谱线不变, 结合整套晶体谱仪在实验期间处于完全静止状态, 即可解谱. 解谱结果如图 3(b) 所示, Ti 的  $K_\alpha$  荧光谱线的计数强度约为 1000, 其  $K_\beta$  荧光谱线的计数强度约为 100, 二者的强度相差约一个数量级, 与理论中二者的荧光效率一致. 在设定 Ti 的  $K_\alpha$  荧光谱线没有变化的前提下, 压缩状态下 Ti 的  $K_\beta$  荧光谱线红移约 2 eV, 即加载样品的  $K_\beta$  和  $K_\alpha$  的能量差 ( $\Delta E_{K_\beta-K_\alpha}$ ) 相对于冷样品的  $\Delta E_{K_\beta-K_\alpha}$  变小约 2 eV. 这个变化不是发次间的谱仪位置和样品位置的扰动引起的, 晶体谱仪的记录设备为真空 X 光 CCD, 整个谱仪的位置在不同发次中不会变化; 样品在不同发次中的位置可能发生变化, 但是样品上下移动时  $K_\alpha$  和  $K_\beta$  在记录介质上记录是平移, 能量差几乎无变化, 样品前后移动时,  $\Delta E_{K_\beta-K_\alpha}$  会发生变化但变化量很小, 以放置样品时的最大偏差 50  $\mu\text{m}$  为例,  $\Delta E_{K_\beta-K_\alpha}$  的变化约为 0.05 eV, 远小于 2 eV. 因此诊断到的荧光谱线的移动是因为加载状态下温稠密物质的电子结构发生变化导致的, 其变化趋势与文献 [30] 结果一致.

为了进一步研究密度效应对荧光光谱的影响,

采用了两种理论方法开展温稠密 Ti 样品 K 壳层荧光谱线的计算.

第一种方法是有限温度相对论密度泛函方法 (FTRDFT), 是在 Beijing Density Functional 程序包 [32] 的基础上发展的有限温度相对论算法, 计算时采用 BP86 泛函和 Triple-Zeta Slater 数值基.

对于有限温度密度泛函方法的算法实现, 其单粒子运动方程为

$$\left\{ -\frac{1}{2m} \nabla^2 + V_{\text{eff}}(\mathbf{r}, T) - \mu \right\} \psi_i = \varepsilon_i \psi_i, \quad (2)$$

其中,

$$n(\mathbf{r}, T) = \sum_i |\psi_i(\mathbf{r})|^2 f(\varepsilon_i - \mu), \quad (3)$$

$$V_{\text{eff}}(\mathbf{r}, T) = \nu(\mathbf{r}) + \int \frac{n(\mathbf{r}', T)}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} d\mathbf{r}' + \frac{\delta \Omega_{xc}[n]}{\delta n'(\mathbf{r}, T)}, \quad (4)$$

$$f(\varepsilon_i - \mu) = [\exp \beta(\varepsilon_i - \mu) + 1]^{-1}. \quad (5)$$

这里,  $m$  为电子质量,  $n$  为电子密度,  $\mathbf{r}$  为位置坐标,  $\psi$  为轨道波函数,  $\nu(\mathbf{r})$  为核电势,  $\Omega$  为交换相关泛函,  $\beta = 1/(kT)$ ,  $\varepsilon$  为轨道能量,  $\mu$  为化学势.

在相对论情况下, 动能算符采用四分量相对论形式. 计算时采用  $\text{Ti}_{15}$  团簇, 中心原子被两层 Ti 原子包围, 构成压力环境, 然后考察中心原子的光谱变化行为.

第二种方法是“two-step Hartree-Fock-Slater” (TSHFS) 理论模型 [33,34].

TSHFS 理论模型的第 1 步是求解基于平均原子模型的 Hartree-Fock-Slater 方程以获取平均组态中电子的轨道能量. 对于给定的量子态  $|al\rangle$ , 其波函数  $u_{al}(r)$  满足如下形式的径向薛定谔方程:

$$\left[ -\frac{1}{2} \frac{d^2}{dr^2} + \frac{l(l+1)}{2r^2} + V(r) \right] u_{al}(r) = \varepsilon_{al} u_{al}(r), \quad (6)$$

其中势能的形式由 Hartree-Fock-Slater 势能给出, 其特点是在 Wigner-Seitz 球外的势能为常数. 这里  $l$  是角量子数,  $V$  是相互作用势能,  $\varepsilon$  是对应量子态  $|al\rangle$  的能量. 在求得不同  $l$  分波的波函数和轨道能量后就可以据此构造不同组态的占据概率, 进而可以得到价态为  $Q$  的离子丰度.

同一价态不同组态之间跃迁的能量则由第 2 步给出, 仍然是一个求解 Hartree-Fock-Slater 方程的过程. 第 2 步与第 1 步的差别在于, 此时束缚轨道上的电子占据数不再是平均原子中的分数占据, 而是整数占据 (占据为 1, 未占据则为 0), 更符合

合真实的物理体系. 针对给定组态计算出其束缚轨道能量后, 不同谱线的跃迁能量就可以定义为相应轨道之差.

两种方法计算的不同状态 Ti 样品荧光谱线  $\Delta E_{K\beta-K\alpha}$  相对于冷样品的变化如图 4 所示, 在计算的状态区间内 ( $4.5\text{--}13.5\text{ g/cm}^3$ ,  $0.03\text{--}5\text{ eV}$ ), Ti 的  $\Delta E_{K\beta-K\alpha}$  会随着密度的增加而变小, 但随温度的变化不大, 而且两种方法的计算结果存在差异. 图 4 同样给出了实验测量的加载样品荧光谱线  $\Delta E_{K\beta-K\alpha}$  相对于冷样品的变化. 实验结果与理论结果的比较表明, 虽然理论方法可以再现光谱红移的定性特征, 但 FTRDFT 高估了密度效应对  $K\beta$  谱线移动的影响, 而 TSHFS 低估了密度效应的影响.

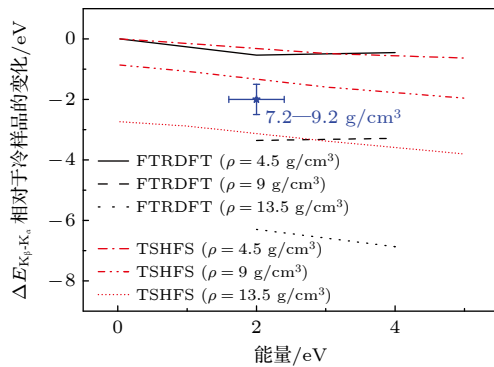


图 4 不同状态 Ti 样品  $\Delta E_{K\beta-K\alpha}$  相对于冷样品的变化  
Fig. 4. Changes of  $\Delta E_{K\beta-K\alpha}$  of Ti with different density and temperature relative to cold samples.

## 4 结 论

通过发展基于激光间接驱动的温稠密物质 X 射线荧光光谱实验方法, 研究了密度效应对温稠密物质束缚能级电子结构的影响. 基于特殊构型黑腔加载产生最高约 2 倍固体密度、2 eV 的温稠密物质, 采用 TAM 晶体谱仪配真空 X 光 CCD 获得冷样品以及压缩样品的荧光光谱, 观测到荧光谱线  $\Delta E_{K\beta-K\alpha}$  在压缩状态下相对于冷样品有约 2 eV 的红移. 通过与理论结果的比较表明, FTRDFT 高估了密度效应对  $K\beta$  谱线移动的影响, 而 TSHFS 低估了密度效应的影响. 后续需继续精密化 X 射线荧光光谱实验研究方法并获得更多状态下 Ti 样品的荧光光谱, 在更宽的状态区间内校验温稠密物质理论研究方法.

## 参考文献

- [1] Saumon D, Chabrier G 1991 *Phys. Rev. A* **44** 5122
- [2] Lindl J D 1995 *Phys. Plasmas* **2** 3933
- [3] Lindl J D, Amendt P, Berger R L, Glendinning S G, Glenzer S H, Haan S W, Kauffman R L, Landen O L, Suter L J 2004 *Phys. Plasmas* **11** 340
- [4] Hu S X, Militzer B, Goncharov V N, Skupsky S 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 235003
- [5] Hu S X, Collins L A, Goncharov V N, Boehly T R, Epstein R, McCrory R L, Skupsky S 2014 *Phys. Rev. E* **90** 033111
- [6] Hu S X, Collins L A, Goncharov V N, Kress J D, McCrory R L, Skupsky S 2015 *Phys. Rev. E* **92** 043104
- [7] Hu S X, Collins L A, Goncharov V N, Kress J D, McCrory R L, Skupsky S 2016 *Phys. Plasmas* **23** 042704
- [8] Surh M P, Barbee T W, Yang L H 2001 *Phys. Rev. Lett.* **86** 5958
- [9] Mazevet S, Zerah G 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 155001
- [10] Jin Y, Zhang P, Li Y J, Hou Y, Zeng J L, Yuan J M 2021 *Acta Phys. Sin.* **70** 073102 (in Chinese) [金阳, 张平, 李永军, 侯永, 曾交龙, 袁建民 2021 物理学报 **70** 073102]
- [11] Zhang S, Zhao S J, Kang W, Zhang P, He X T 2016 *Phys. Rev. B* **93** 115114
- [12] Dai J Y, Hou Y, Yuan J M 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 245001
- [13] Wang C, He X T, Zhang P 2011 *Phys. Rev. Lett.* **106** 145002
- [14] Ciricosta O, Vinko S M, Chung H K, Cho B I, Brown C R, Burian T, Chalupsky J, Engelhorn K, Falcone R W, Graves C, Hajkova V, Higginbotham A, Juha L, Krzywinski J, Lee H J, Messerschmidt M, Murphy C D, Ping Y, Rackstraw D S, Scherz A, Schlotter W, Toleikis S, Turner J J, Vysin L, Wang T, Wu B, Zastrau U, Zhu D, Lee R W, Heimann P, Nagler B, Wark J S 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 065002
- [15] Hoarty D J, Allan P, James S F, Brown C R D, Hobbs L M R, Hill M P, Harris J W O, Morton J, Brookes M G, Shepherd R, Dunn J, Chen H, Marley E V, Beiersdorfer P, Chung H K, Lee R W, Brown G, Emig J 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 265003
- [16] Mančić A, Lévy A, Harmand M, Nakatsutsumi M, Antici P, Audebert P, Combis P, Fourmaux S, Mazevet S, Peyrusse O, Recoules V, Renaudin P, Robiche J, Dorchie F, Fuchs J 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 035002
- [17] Park H, Remington B A, Braun D, Celliers P, Collins G W, Eggert J, Giraldez E, Pape S L, Lorenz T, Maddox B, Hamza A, Ho D, Hicks D, Patel P, Pollaine S, Prisbrey S, Smith R, Swift D, Wallace R 2008 *J. Phys.: Conf. Ser.* **112** 042024
- [18] Lee H J, Neumayer P, Castor J, Döppner T, Falcone R W, Fortmann C, Hammel B A, Kritcher A L, Landen O L, Lee R W, Meyerhofer D D, Munro D H, Redmer R, Regan S P, Weber S, Glenzer S H 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 115001
- [19] Benuzzi-Mounaix A, Mazevet S, Ravasio A, Vinci T, Denoeud A, Koenig M, Amadou N, Brambrink E, Festa F, Levy A, Harmand M, Brygoo S, Huser G, Recoules V, Bouchet J, Morard G, Guyot F, Resseguier T, Myanishi K, Ozaki N, Dorchie F, Gaudin J, Leguay P M, Peyrusse O, Henry O, Raffestin D, Pape S, Smith R, Musella R 2014 *Phys. Scr.* **T161** 014060
- [20] Zhang Z Y, Zhao Y, Zhang J Y, Hu Z M, Jing L F, Qing B, Xiong G, Lv M, Du H B, Yang Y M, Zhan X Y, Yu R Z, Mei Y, Yang J M 2019 *Phys. Plasmas* **26** 072704
- [21] Bradley D K, Kilkeny J, Rose S J, Hares J D 1987 *Phys. Rev. Lett.* **59** 2995
- [22] DaSilva L, Ng A, Godwal B K, Chiu G, Cottet F, Richardson M C, Jaanimagi P A, Lee Y T 1989 *Phys. Rev. Lett.* **62** 1623

- [23] Yaakobi B, Boehly T R, Sangster T C, Meyerhofer D D, Remington B A, Allen P G, Pollaine S M, Lorenzana H E, Lorenz K T, Hawreliak J A 2008 *Phys. Plasmas* **15** 062703
- [24] Benuzzi-Mounaix A, Dorchies F, Recoules V, Festa F, Peyrusse O, Levy A, Ravasio A, Hall T, Koenig M, Amadou N, Brambrink E, Mazevet S 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 165006
- [25] Zhao Y, Yang J M, Zhang J Y, Yang G H, Wei M X, Xiong G, Song T M, Zhang Z Y, Bao L H, Deng B, Li Y K, He X A, Li C G, Mei Y, Yu R Z, Jiang S E, Liu S Y, Ding Y K, Zhang B H 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 155003
- [26] Zhao Y, Zhang Z Y, Qing B, Yang J M, Zhang J Y, Wei M X, Yang G H, Song T M, Xiong G, Lv M, Hu Z M, Deng B, Hu X, Zhang W H, Shang W L, Hou L F, Du H B, Zhan X Y, Yu R Z 2017 *EPL* **117** 65001
- [27] Eidmann K, Andiel U, Pisani F, Hakel P, Mancini R C, Junkel-Vives G C, Abdallah J, Witte K 2003 *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **81** 133
- [28] Hansen S B, Harding E C, Knapp P F, Gomez M R, Nagayama T, Bailey J E 2017 *High Energy Density Physics* **24** 39
- [29] Hansen S B, Harding E C, Knapp P F, Gomez M R, Nagayama T, Bailey J E 2018 *Phys. Plasmas* **25** 056301
- [30] Jiang S, Lazicki A E, Hansen S B, Sterne P A, Grabowski P, Shepherd R, Scott H A 2020 *Phys. Rev. E* **101** 023204
- [31] Ramis R, Schmalz R, Meyer-Ter-Vehn J 1988 *Comput. Phys. Comm.* **49** 475
- [32] Liu W J, Wang F, Li L M 2003 *J. Theor. Comput. Chem.* **2** 257
- [33] Son S K, Thiele R, Jurek Z, Ziaja B, Santra R 2014 *Phys. Rev. X* **4** 031004
- [34] Lin C L 2019 *Phys. Plasmas* **26** 122707

# Density effect on electronic structure of warm dense matter based on X-ray fluorescence spectroscopy<sup>\*</sup>

Zhang Zhi-Yu<sup>1)</sup> Zhao Yang<sup>1)</sup> Qing Bo<sup>1)</sup> Zhang Ji-Yan<sup>1)</sup> Ma Jian-Yi<sup>2)</sup>  
 Lin Cheng-Liang<sup>3)</sup> Yang Guo-Hong<sup>1)</sup> Wei Min-Xi<sup>1)</sup> Xiong Gang<sup>1)</sup>  
 Lü Min<sup>1)</sup> Huang Cheng-Wu<sup>1)</sup> Zhu Tuo<sup>1)</sup> Song Tian-Ming<sup>1)</sup> Zhao Yan<sup>1)</sup>  
 Zhang Yu-Xue<sup>1)</sup> Zhang Lu<sup>1)</sup> Li Li-Ling<sup>1)</sup> Du Hua-Bing<sup>1)</sup>  
 Che Xing-Sen<sup>1)</sup> Li Yu-Kun<sup>1)</sup> Zhan Xia-Yu<sup>1)</sup> Yang Jia-Min<sup>1)†</sup>

1) (*Laser Fusion Research Center, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, China*)

2) (*Institute of Atomic and Molecular Physics, Sichuan University, Chengdu 610065, China*)

3) (*Institute of Applied Physics and Computational Mathematics, Beijing 100088, China*)

( Received 26 July 2023; revised manuscript received 23 August 2023 )

## Abstract

Warm dense matter (WDM), a kind of transition state of matter between cold condensed matter and high temperature plasma, is one of the main research objects of high energy density physics (HEDP). Compared with the structure of isolated atom, the electron structure of WDM will change significantly because of the influences of density and temperature effect. As WDM is always strongly coupled and partly degenerate, accurate theoretical description is very complicated and the accurate experimental research is also very challenging. In this paper, the density effect on the warm dense matter electron structure based on the X-ray fluorescence spectroscopy is studied. The warm dense titanium with density larger than solid density is produced experimentally based on a specially designed hohlraum. Then, the titanium is pumped to emit fluorescence by using the characteristic line spectrum emitted by the laser irradiating the pump material (Vanadium). The X-ray fluorescence spectra of titanium with different states are diagnosed by changing the delay time between the pump laser and drive laser. The experimental fluorescence spectrum indicates that the difference in energy between  $K_{\beta}$  and  $K_{\alpha}$  ( $\Delta E_{K_{\beta}-K_{\alpha}}$ ) of the compressed titanium (7.2–9.2 g/cm<sup>3</sup>, 1.6–2.4 eV) is about 2 eV smaller than that of cold titanium. Two theoretical methods, i.e. finite-temperature relativistic density functional theory (FTRDFT) and two-step Hartree-Fock-Slater (TSHFS), are used to calculate the fluorescence spectrum of warm dense titanium. The calculated results indicate that the energy difference ( $\Delta E_{K_{\beta}-K_{\alpha}}$ ) decreases with the increase of density but changes slowly with the increase of temperature during the calculated state (4.5–13.5 g/cm<sup>3</sup>, 0.03–5 eV). The FTRDFT overestimates the density effect on the line shift, while TSHFS underestimates the density effect. The future work will focus on optimizing the experimental method of X-ray fluorescence spectroscopy, obtaining X-ray fluorescence spectrum of titanium with more states, and then testing the theoretical method for warm dense matter.

**Keywords:** warm dense matter, electron structure, density effect, X-ray fluorescence spectroscopy

**PACS:** 52.27.Gr, 36.20.Kd, 52.70.La, 78.70.En

**DOI:** 10.7498/aps.72.20231215

<sup>\*</sup> Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 12004351, 11734013).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: [yjm70018@sina.cn](mailto:yjm70018@sina.cn)

## 基于X射线荧光光谱的温稠密物质电子结构密度效应研究

张志宇 赵阳 青波 张继彦 马建毅 林成亮 杨国洪 韦敏习 熊刚 吕敏 黄成武 朱托 宋天明 赵妍 张玉雪  
张璐 李丽灵 杜华冰 车兴森 黎宇坤 詹夏宇 杨家敏

## Density effect on electronic structure of warm dense matter based on X-ray fluorescence spectroscopy

Zhang Zhi-Yu Zhao Yang Qing Bo Zhang Ji-Yan Ma Jian-Yi Lin Cheng-Liang Yang Guo-Hong  
Wei Min-Xi Xiong Gang Lü Min Huang Cheng-Wu Zhu Tuo Song Tian-Ming Zhao Yan Zhang  
Yu-Xue Zhang Lu Li Li-Ling Du Hua-Bing Che Xing-Sen Li Yu-Kun Zhan Xia-Yu Yang Jia-Min

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 72, 245201 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.20231215

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.72.20231215>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

## 您可能感兴趣的其他文章

### Articles you may be interested in

温稠密物质中不同价态离子分布对X-射线弹性散射光谱计算的影响

Influence of different charge-state ion distribution on elastic X-ray scattering in warm dense matter

物理学报. 2021, 70(7): 073102 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201483>

温稠密铝等离子体物态方程及其电离平衡研究

Investigation on equation of state and ionization equilibrium for aluminum in warm dense matter regime

物理学报. 2020, 69(9): 099101 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191826>

基于可分离编码的高分辨X射线荧光成像技术研究

High-resolution coded aperture X-ray fluorescence imaging with separable masks

物理学报. 2020, 69(19): 198701 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200674>

超精细结构效应对辐射光谱圆极化特性的影响

Hyperfine structure effect on circular polarization of X-ray radiation

物理学报. 2018, 67(19): 193401 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180322>

层数变化对堆叠生长的 $\text{MoS}_{2(1-x)}\text{Se}_{2x}$ 电子结构的影响

Effect of layer variation on the electronic structure of stacked  $\text{MoS}_{2(1-x)}\text{Se}_{2x}$  alloy

物理学报. 2018, 67(24): 240601 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20181494>

X射线荧光CT成像中荧光产额、退激时间、散射、偏振等关键物理问题计算与分析

Calculation and analysis of key physical problems: Fluorescence yield, deexcitation time, scattering and polarization in X-ray fluorescence CT imaging

物理学报. 2021, 70(19): 195201 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210765>