

Объединенный институт высоких температур РАН

На правах рукописи

Фокин Владимир Борисович

**Континуально-атомистическая модель  
и ее применение  
для численного расчета воздействия  
одионочного и двойного  
фемтосекундного лазерного импульса  
на металлы**

01.04.08 – Физика плазмы

ДИССЕРТАЦИЯ

на соискание ученой степени

кандидата физико-математических наук

Научный руководитель

к. ф.-м. н.

Левашов Павел Ремирович

Москва – 2017

# Оглавление

<b>Список сокращений и обозначений</b> . . . . .	5
<b>Введение</b> . . . . .	10
<b>Обзор литературы</b> . . . . .	18
1. Двухтемпературная модель с теплопроводностью . . . . .	19
2. Двухтемпературная гидродинамическая модель . . . . .	21
3. Метод молекулярной динамики . . . . .	22
4. Гибридные модели . . . . .	24
4.1. Обоснование актуальности . . . . .	24
4.2. Модель Иванова–Жигилея . . . . .	25
4.3. Модель с термостатом Ланжевена . . . . .	27
4.4. Градиент электронного давления . . . . .	30
5. Эксперименты по абляции, модификации поверхности и получению наночастиц . . . . .	33
6. Моделирование абляции (1 и 2 импульса) . . . . .	42
7. Выводы по итогам обзора литературы . . . . .	47
<b>Глава 1. Гибридная континуально-атомистическая модель</b> . .	49
1.1. Гидродинамическая модель . . . . .	49
1.2. Метод молекулярной динамики . . . . .	51
1.2.1. Уравнения движения для систем атомов . . . . .	52
1.2.2. Точность и устойчивость МД-алгоритмов . . . . .	53
1.3. УрС алюминия, основанное на модели Томаса-Ферми, и ЕАМ-потенциал Жаховского для алюминия . . . . .	55
1.4. Метод для моделирования сверхбыстрого лазерного нагрева металлов . . . . .	61

1.5.	Описание ГиКАМ . . . . .	65
1.5.1.	Ионная подсистема . . . . .	66
1.5.2.	Электронная подсистема . . . . .	68
1.5.3.	Широкодиапазонные модели для расчета оптических и транспортных свойств металлов . . . . .	69
1.5.4.	Расчет поглощения излучения . . . . .	73
1.5.5.	Критерии расчета временного шага . . . . .	76
1.6.	Выводы к главе 1 . . . . .	80
<b>Глава 2. Абляция алюминия одиночным импульсом. Сравнение ГиКАМ и ГДМ . . . . .</b>		<b>82</b>
2.1.	Постановка задачи . . . . .	82
2.2.	Моделирование низкой интенсивности . . . . .	83
2.3.	Абляция при интенсивности, близкой к порогу абляции . . . . .	86
2.4.	Абляция при высоких интенсивностях . . . . .	88
2.5.	Общий обзор результатов моделирования. Сравнение с экспериментом . . . . .	90
2.6.	Выводы к главе 2 . . . . .	91
<b>Глава 3. Абляция алюминия двойным импульсом . . . . .</b>		<b>93</b>
3.1.	Постановка задачи . . . . .	93
3.2.	Различия в поглощении первого и второго импульсов . . . . .	95
3.3.	Анализ динамики абляции при различных задержках . . . . .	96
3.3.1.	0 пс между импульсами . . . . .	97
3.3.2.	10 пс между импульсами . . . . .	99
3.3.3.	20 пс между импульсами . . . . .	99
3.3.4.	50 пс между импульсами . . . . .	99
3.3.5.	100 пс между импульсами . . . . .	102

3.3.6. 200 пс между импульсами . . . . .	107
3.4. Общий обзор результатов моделирования . . . . .	109
3.5. Выводы к главе 3 . . . . .	112
<b>Заключение . . . . .</b>	<b>114</b>
<b>Приложение А. Алгоритм моделирования ГиКАМ . . . . .</b>	<b>116</b>
А.1. Параллельный алгоритм . . . . .	116
А.2. Тест масштабируемости параллельного алгоритма . . . . .	124
<b>Приложение Б. Зависимость глубины абляции алюминия от интегральной плотности падающего излучения при одноим- пульсном воздействии . . . . .</b>	<b>127</b>
<b>Приложение В. Зависимость глубины абляции алюминия при воздействии двойным импульсом от задержки между импуль- сами . . . . .</b>	<b>130</b>
<b>Список литературы . . . . .</b>	<b>132</b>

# Список сокращений и обозначений

## Сокращения

УрС — уравнение состояния (вещества)

МД-УрС — УрС, основанное на данных МД

ПЭ-УрС — полуэмпирическое УрС

ЕАМ — Embedded-Atom Model, модель внедренного атома, потенциал межчастичного взаимодействия, записанный согласно такой модели

ESM — Explosive Spinodal Melting, взрывное спинопальное плавление

ETD — Electronic Temperature Dependent (potential), потенциал, зависящий от электронной температуры

ВР — волна разгрузки (если в рамках рассматриваемой задачи вглубь мишени распространяются две ВР, то для первичной ВР, более ранней, и вторичной ВР, более поздней, используются обозначения, соответственно,  $ВР_1$  и  $ВР_2$ )

ГДМ — двухтемпературная гидродинамическая модель, гидродинамический подход с применением такой модели

ГЦК — гранецентрированная кубическая (кристаллическая решетка)

ГиКАМ — гибридная континуально-атомистическая модель

ЛИЭС — лазерно-искровая эмиссионная спектроскопия (также LIBS — Laser-Induced Breakdown Spectroscopy или LIPS — Laser-Induced Plasma Spectroscopy)

МД — молекулярная динамика, молекулярно-динамический (метод, расчет и т. д.)

УВ — ударная волна (если в рамках рассматриваемой задачи вглубь мишени распространяются две УВ, то для первичной УВ, более ранней, и вторичной УВ, более поздней, используются обозначения, соответственно,  $УВ_1$  и  $УВ_2$ )

### Обозначения

$\Delta t_{MD}$  — временной шаг моделирования с применением ГиКАМ

$\epsilon$  — внутренняя энергия (преимущественно удельная)

$\gamma$  — коэффициент электрон-фононного обмена

$\kappa_e$  — электронная теплопроводность

$\mathbf{B} = (B_x, B_y, B_z)$  — напряженность магнитного поля и ее компоненты

$\mathbf{E} = (E_x, E_y, E_z)$  — напряженность электрического поля и ее компоненты

$\mathbf{f}$  — сила, действующая на частицу

$\mathbf{k}_L$  — волновой вектор падающего на мишень излучения лазера

$\mathbf{v} = (u, v, w)$  — скорость частицы (в трехмерном пространстве) и ее компоненты

$\mathbf{r} = (x, y, z)$  — радиус-вектор положения частицы (в трехмерном пространстве) и его компоненты;  $r$  (в курсивном начертании) — расстояние между частицами

$\mathbf{v}^c = (u^c, v^c, w^c)$  — скорость центра масс ансамбля частиц и его компоненты

- $\mathbf{v}^T$  — тепловая скорость иона или атома (его скорость в системе отсчета, связанной с центром масс ансамбля окружающих частиц)
- $\omega_L$  — частота падающего на мишень излучения лазера
- $\rho$  — плотность вещества
- $\tau$  — характерная длительность лазерного импульса (длительность на половине максимального значения интенсивности)
- $\tau_D$  — временной промежуток (задержка) между импульсами в двойном лазерном импульсе
- $\varepsilon$  — диэлектрическая проницаемость
- $c_e, c_i$  — удельная теплоемкость электронной и ионной подсистемы, соответственно
- $E$  — энергия
- $F$  — интегральная плотность лазерного излучения (Fluence), падающего на мишень
- $F_{\text{abs}}$  — часть интегральной плотности лазерного излучения, поглощенная веществом
- $I$  — интенсивность излучения лазера
- $I_0$  — максимальное значение интенсивности на гауссовом временном профиле лазерного импульса
- $j$  — номер ячейки вычислительной сетки
- $L_x, L_y, L_z$  — линейные размеры моделируемого образца

- $M$  — количество ячеек пространственной вычислительной сетки
- $m$  — масса одной частицы
- $N$  — количество частиц
- $n$  — концентрация либо номер временного шага
- $P$  — давление
- $S$  — мощность лазерного излучения, поглощаемая единицей массы вещества
- $T$  — термодинамическая температура
- $t$  — время
- $t_0$  — момент времени, на который приходится максимум интенсивности лазерного импульса
- $U$  — потенциал межчастичного взаимодействия, потенциальная энергия
- $V$  — объем одной ячейки пространственной вычислительной сетки
- $x, y, z$  — одномерные координаты вдоль соответствующих осей
- $Z$  — средний заряд ионов
- $e$  — заряд электрона
- $c$  — скорость света
- $h, \hbar$  — постоянная Планка
- $k_B$  — постоянная Больцмана
- $m_e$  — масса электрона



$\langle A \rangle$  — среднее значение физической величины  $A$

$\min\{A, B, \dots\}$  — наименьшее значение среди аргументов  $A, B, \dots$

$\min_j\{A_j\}$  — наименьшее значение в распределении физической величины  $A$  по всем ячейкам пространственной вычислительной сетки, номера которых принимают все допустимые значения  $j$

Числа  $\pi, e$  — математические константы:  $\pi \approx 3.14159\dots, e \approx 2.71828\dots$

В §§1.5.3, 1.5.4 символом  $i$  обозначена комплексная мнимая единица:  $i^2 = -1$ .

Индекс « $j$ » у обозначения физической величины означает, что эта физическая величина относится к ячейке пространственной вычислительной сетки с номером  $j$  (например:  $\rho_j$  — плотность вещества в  $j$ -й ячейке сетки).

Индекс « $i$ » в курсивном начертании у обозначения физической величины означает, что эта физическая величина характеризует одну частицу с номером  $i$  из множества аналогичных частиц (например:  $m_i$  — масса  $i$ -го иона или атома).

Индексы « $e$ », « $i$ » в прямом начертании у обозначения физической величины означают, что эта физическая величина характеризует электронную и ионную подсистемы, соответственно (например:  $T_e$  — температура электронной подсистемы,  $T_i$  — температура ионной подсистемы или кристаллической решетки).

Переменные  $\alpha, i, j, k, m, n$  могут использоваться в качестве индексов однотипных величин, тогда физические величины, обозначенные этими переменными, могут отличаться от указанных в данном списке.

Прочие обозначения, не включенные в данный список, расшифровываются по мере их применения в тексте диссертации.

## Введение

**Актуальность работы.** В настоящее время, благодаря появлению новых технологий и уменьшению размера и энергопотребления различных технических устройств, возрастает необходимость в создании и совершенствовании физических моделей, способных описывать различные процессы в веществе на атомарном уровне. Континуальный подход, основанный на осреднении кинематических параметров атомов и молекул по времени и пространству, применим лишь в условиях локального термодинамического равновесия. В противном случае более корректными являются атомистические подходы, которые позволяют естественным образом учитывать атомарную структуру кристаллической решетки, влияние примесей, наличие дислокаций, кинетику фазовых переходов, явления нуклеации и откола при растяжении вещества и многие другие процессы. При этом динамика такой системы, состоящей из атомов (или молекул), будет определяться, главным образом, выбором потенциала межчастичного взаимодействия. Современные потенциалы воспроизводят с высокой точностью различные свойства вещества, такие как изотермическое сжатие, кривая плавления, скорость звука, модуль сдвига, однако не учитывают в явном виде свойства вырожденной электронной подсистемы, которая играет чрезвычайно важную роль при лазерном нагреве, используемом во многих современных высокотехнологических приложениях. Возможным решением проблемы является объединение атомистического подхода для ионов с континуальной моделью электронной подсистемы, свойства которой описываются с помощью уравнения состояния, а также моделей транспортных и оптических свойств. Такая гибридная модель будет воспроизводить динамику вещества как во время, так и после лазерного воздействия, учитывая поглощение излучения, эффекты, связанные с теплопроводностью, процессы плавления решетки, нуклеацию и откол вещества. В данной работе фор-

мулируется гибридная континуально-атомистическая модель для численного исследования воздействия одного или нескольких ультракоротких лазерных импульсов на вещество, и анализируются результаты, полученные с применением этой модели.

**Цель диссертационной работы** состоит в создании гибридной континуально–атомистической модели воздействия лазерного излучения на металл, в моделировании абляции алюминия под воздействием одиночного и двойного фемтосекундного лазерного импульса с применением созданной модели, а также в сравнении полученных результатов с другими подходами и экспериментальными данными.

Для достижения поставленной цели были последовательно решены следующие задачи:

- внесены модификации в код программного комплекса LAMMPS, реализующие решение уравнения теплопроводности по неявной схеме для электронов, а также поправки к силам, действующим на атомы;
- произведен анализ нескольких потенциалов межчастичного взаимодействия типа внедренного атома и выбран наиболее подходящий потенциал для исследуемой области фазовой диаграммы для алюминия;
- проведены тестовые расчеты абляции металлов (никеля, алюминия и золота) с применением полученного кода, работающего в однопроцессорном режиме;
- создан программный модуль для расчета комплексной диэлектрической проницаемости, коэффициентов электронной теплопроводности и электрон-фононного взаимодействия;
- разработана параллельная версия программы с оригинальным алгоритмом сбора статистики по атомам;

- реализовано решение уравнения энергии для электронов, которое учитывает их перенос вместе с ионами внутри моделируемого образца;
- реализован алгоритм гибридной модели с переменным временным шагом — учитываются два критерия расчета величины временного шага и ограничение на скорость его возрастания от итерации к итерации;
- на основе программного комплекса LAMMPS реализована параллельная версия гибридной континуально-атомистической модели, проведены тесты масштабируемости программы;
- проведено моделирование воздействия одиночного фемтосекундного лазерного импульса на алюминиевую мишень с помощью гибридной континуально-атомистической модели, проведено сравнение полученной динамики абляции с гидродинамическими расчетами, а также с имеющимися экспериментальными данными;
- проведено моделирование воздействия двойного фемтосекундного лазерного импульса на алюминиевую мишень с помощью гибридной континуально-атомистической модели.

**Научная новизна.** Впервые предложена континуально-атомистическая модель, которая позволяет:

- моделировать воздействие лазерного излучения на металл, имеющий сложный профиль плотности, в широком диапазоне температур и давлений;
- моделировать воздействие нескольких ультракоротких лазерных импульсов с различной частотой и поляризацией;
- моделировать воздействие мощного импульса излучения, энергия которого многократно превышает порог абляции;

- описывать развитие процессов, протекающих при абляции, на атомарном уровне, без привлечения моделей термодинамических и транспортных свойств ионной подсистемы.

Впервые с помощью атомистического моделирования для алюминия продемонстрировано:

- уменьшение глубины абляционного кратера при времени задержки между импульсами, превышающем 10 пс;
- экранирование мишени от второго импульса продуктами абляции первого импульса при времени задержки между импульсами, превышающем 50 пс;
- трехкратное увеличение электронной температуры плюма при времени задержки между импульсами 100–200 пс.

**Научная и практическая значимость.** Разработанная гибридная континуально-атомистическая модель может быть использована для:

- теоретического описания быстропротекающих процессов при воздействии лазерного излучения на вещество;
- моделирования процесса образования наночастиц и нанокластеров посредством лазерной абляции в различные среды;
- планирования экспериментов по лазерной обработке металлов.

**На защиту выносятся следующие основные результаты и положения:**

1. Гибридная континуально-атомистическая модель для численного исследования воздействия ультракоротких лазерных импульсов на металлы с

учетом реалистичных моделей теплофизических свойств плотной плазмы.

2. Расчетная глубина абляции при воздействии одиночного фемтосекундного лазерного импульса на металл, полученная с помощью гибридной континуально-атомистической модели, близка к глубине абляции по континуальной модели и меньше, чем экспериментальная глубина.
3. Для двойного импульса при задержках, превышающих 20 пс, наблюдается эффект экранирования плазмой, при котором второй импульс не достигает мишени.
4. При задержках между импульсами более 10 пс глубина кратера монотонно уменьшается с ростом задержки, а при задержках более 50 пс глубина кратера становится меньше, чем для одиночного импульса.
5. При задержках между импульсами 100–200 пс наблюдается трехкратное увеличение электронной температуры плюма.
6. Уменьшение глубины кратера, наблюдаемое и в экспериментах, и в гибридном моделировании, происходит: в случае задержек менее 20 пс — из-за подавления фрагментации в волне разрежения, вызванной первым импульсом, а в случае задержек более 50 пс — из-за осаждения внутренних аблированных слоев вещества обратно на мишень.

**Апробация работы.** Основные результаты диссертации докладывались на следующих конференциях, семинарах и симпозиумах:

- 8-й Российский симпозиум «Проблемы физики ультракоротких процессов в сильнонеравновесных средах» (Новый Афон, Абхазия, 2010 г.) [1];
- 53-я научная конференция МФТИ «Современные проблемы фундаментальных и прикладных наук» (Москва, 2010 г.) [2];

- XXVI International Conference on Interaction of Intense Energy Fluxes with Matter (Нальчик, 2011 г.) [3];
- 54-я научная конференция МФТИ «Проблемы фундаментальных и прикладных естественных и технических наук в современном информационном обществе» (Москва, 2011 г.) [4];
- XXVII International Conference on Equations of State for Matter (Эльбрус, 2012 г.) [5];
- X Международный семинар «Математические модели и моделирование в лазерно-плазменных процессах и передовых научных технологиях» (Петровац, Черногория, 2012 г.) [6];
- XIV Международная конференция «Супервычисления и математическое моделирование» (Саров, 2012 г.) [7];
- 55-я научная конференция МФТИ «Проблемы фундаментальных и прикладных естественных и технических наук в современном информационном обществе» (Москва, 2012 г.) [8];
- XXVIII International Conference on Interaction of Intense Energy Fluxes with Matter (Эльбрус, 2013 г.) [9];
- XV Liquid and Amorphous Metals Conference (Пекин, Китай, 2013 г.) [10];
- XI Международный семинар «Математические модели и моделирование в лазерно-плазменных процессах и передовых научных технологиях» (Будва, Черногория, 2013 г.) [11];
- 12th International Conference on Laser Ablation (Искья, Италия, 2013 г.) [12];

- 56-я научная конференция МФТИ «Актуальные проблемы фундаментальных и прикладных наук в современном информационном обществе» (Москва, 2013 г.) [13];
- XXIX International Conference on Equations of State for Matter (Эльбрус, 2014 г.) [14];
- Международная конференция «XVI Харитоновские тематические научные чтения „Мощная импульсная электрофизика“ » (Саров, 2014 г.) [15];
- 2014 International High Power Laser Ablation Symposium (Санта Фе, США, 2014 г.) [16];
- XII Международная конференция «Забабахинские научные чтения» (Снежинск, 2014 г.) [17];
- ALT'14: International Conference on Advanced Laser Technologies (Кассис, Франция, 2014 г.) [18];
- XV Международная конференция «Супервычисления и математическое моделирование» (Саров, 2014 г.) [19];
- XIV Российская конференция (с международным участием) по теплофизическим свойствам веществ (Казань, 2014 г.) [20];
- XXX International Conference on Interaction of Intense Energy Fluxes with Matter (Эльбрус, 2015 г.) [21, 22];
- XIII Международный семинар «Математические модели и моделирование в лазерно-плазменных процессах и передовых научных технологиях» (Петровац, Черногория, 2015 г.) [23];
- 15 International Conference on the Physics of Non-Ideal Plasmas (Алма-Ата, Казахстан, 2015 г.) [24];



- Scientific-Coordination Workshop on Non-Ideal Plasma Physics (Москва, 2015 г.) [25];
- XXXI International Conference on Equations of State for Matter (Эльбрус, 2016 г.) [26];
- Международная конференция «XVIII Харитоновские тематические научные чтения „Проблемы физики высоких плотностей энергии“ » (Саров, 2016 г.) [27];
- XXXII International Conference on Interaction of Intense Energy Fluxes with Matter (Эльбрус, 2017 г.) [28];
- XIII Международная конференция «Забабахинские научные чтения» (Снежинск, 2017 г.) [29].

**Публикации.** Материалы диссертации опубликованы в 35 печатных работах, из них 6 статей в рецензируемых журналах и 29 тезисов докладов.

**Личный вклад автора.** Содержание диссертации и основные положения, выносимые на защиту, отражают персональный вклад автора в опубликованные работы. Автором были проведены все расчеты с применением гибридной континуально-атомистической модели и выполнена интерпретация полученных данных. Подготовка к публикации полученных результатов проводилась совместно с соавторами, причем вклад диссертанта был определяющим. Все представленные в диссертации результаты, выводы и заключения получены лично автором.

**Структура и объем диссертации.** Диссертация состоит из [списка сокращений и обозначений](#), введения, обзора литературы, 3-х глав (1, 2, 3), заключения, 3-х приложений (А, Б, В) и [списка литературы](#). Общий объем диссертации составляет 153 страницы, включая 31 рисунок и 3 таблицы. Список литературы включает 170 наименований.

## Обзор литературы

Обзор литературы состоит из шести разделов.

В разделе 1 кратко рассматривается исторически первая модель, пригодная для моделирования воздействия фемтосекундных лазерных импульсов на вещество — **двухтемпературная модель с теплопроводностью**, впервые предложенная С. И. Анисимовым и его коллегами в статье [30], опубликованной в 1974 г.

Дальнейшее развитие двухтемпературная модель получила в 2000 г.: коллектив авторов работы [31] сформулировал **двухтемпературную гидродинамическую модель** (ГДМ), кратко описанную в разделе 2.

Континуальные методы моделирования воздействия лазерного излучения на вещество, несмотря на все свои достоинства, имеют ряд ограничений, поэтому параллельно разрабатывались способы моделирования такого воздействия методом **молекулярной динамики** (МД). В разделе 3 будут рассмотрены преимущества МД. Из-за хорошей предсказательной силы и с учетом своих преимуществ метод МД получил широкое распространение в последние 60 лет.

Раздел 4 начинается с краткого рассмотрения недостатков, присущих и гидродинамическим методам, и методу МД (§4.1). Стремление компенсировать эти недостатки привело к тому, что в 2003 г. Д. С. Ивановым и Л. В. Жигилеем в их совместной работе была предложена **гибридная модель** [32], объединяющая в себе континуальный и атомистический подходы (§4.2). Развитие некоторых модификаций этой модели будет далее описано в §§4.3–4.4 настоящего обзора.

Поскольку воздействие лазерного излучения (в том числе короткоимпульсного) на металл широко применяется в науке и технике, то для изучения такого воздействия было проведено множество **экспериментов по изу-**

**чению абляции** металла, а также модификации поверхности и получению наночастиц вследствие такого воздействия. Обзор соответствующих экспериментов будет дан в разделе 5.

Наконец, в разделе 6, будут рассмотрены некоторые работы, в которых было проведено **численное моделирование абляции** вследствие воздействия однократного и двойного лазерного импульса.

## 1. Двухтемпературная модель с теплопроводностью

В работах [33–35] (1955–1959 гг.) показано, что после воздействия ультракороткого лазерного импульса металл в течение процесса релаксации должен рассматриваться как двухтемпературная система, состоящая из электронов и кристаллической решетки. В этих же публикациях рассмотрен процесс установления равновесия между электронами и решеткой в металлах, и в [33] был рассчитан коэффициент энергообмена между электронной и фононной подсистемами. Согласно [33], энергия, передаваемая решетке от электронной подсистемы в единице объема металла в единицу времени, определяется соотношением

$$\Delta E = \gamma(T_e - T_i), \text{ где } \gamma = \frac{\pi^2 m_{\text{eff}} n_e c_S^2}{6 \tau_e T_e}, \quad (1)$$

$T_i$  — температура решетки,  $c_S$  — скорость звука,  $\tau_e$  — время свободного пробега электронов, которое зависит от  $T_e$  — электронной температуры,  $n_e$  — концентрация электронов,  $m_{\text{eff}}$  — эффективная масса электрона. Выражение (1) справедливо, когда значения температуры электронов  $T_e$  и ионов  $T_i$  намного больше температуры Дебая. Поскольку в этом случае  $\tau_e \sim 1/T_e$ , коэффициент обмена  $\gamma$  между электронами и решеткой практически не зависит от температуры. Оценки, основанные на электропроводности типичных металлов, дают значения  $\gamma$  порядка  $10^{16}$  Вт/(м<sup>3</sup>·К). Время релаксации фононной температуры, которое оценивается как  $c_i/\gamma$  ( $c_i$  — удельная теплоемкость ион-

ной решетки), составляет  $\sim 100$  пс, и при изучении воздействия лазерных импульсов меньшей длительности становится важным учет нарушения равновесия между электронами и решеткой.

Пользуясь результатами работ [33–36], С. И. Анисимов, Б. Л. Капелиович и Т. Л. Перельман в работе [30] (1974 г.) предложили двухтемпературную модель с теплопроводностью, записав уравнения баланса энергии для металла, поглощающего лазерный импульс, в виде

$$\begin{aligned} c_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial t} &= \kappa_e \Delta T_e - \gamma(T_e - T_i) + S(\mathbf{r}, t), \\ c_i \frac{\partial T_i}{\partial t} &= \gamma(T_e - T_i), \end{aligned} \quad (2)$$

где  $c_e$  и  $\kappa_e$  — соответственно, удельная теплоемкость и теплопроводность электронной подсистемы,  $S(\mathbf{r}, t)$  — источник энергии. Основное улучшение по сравнению с предыдущими работами [33–36] состоит в том, что в системе (2) коэффициент обмена  $\gamma$  вычисляется согласно (1).

Далее в работе Анисимова и др. [30] проверяется справедливость макроописания, даваемого системой уравнений (2), с помощью различных оценок.

Предложенная Анисимовым и др. двухтемпературная модель с теплопроводностью получила широкое распространение для описания кинетики электронов и эволюции температур в кристаллической решетке металла под воздействием лазерного импульса. Наряду с экспериментальными данными по коэффициенту отражения, эта модель использовалась для получения оценок теплопроводности, коэффициента электрон-фононного взаимодействия [37–42], механических свойств тонких пленок [39]. Эта модель также способна предсказать порог абляции [43], лазерной десорбции веществ с металлических поверхностей [44], может объяснить динамику вылетающих ионов во время лазерной абляции [45].

## 2. Двухтемпературная гидродинамическая модель

С точки зрения гидродинамики, движение жидкости описывается набором трех уравнений [46]:

$$D_t \rho = -\rho \nabla \cdot \mathbf{v}, \quad (3)$$

$$\rho D_t \mathbf{v} = -\nabla P - \mathbf{R}, \quad (4)$$

$$\rho D_t \epsilon = -P \nabla \cdot \mathbf{v} - \nabla \cdot \mathbf{q} - Q + S, \quad (5)$$

которые отражают законы сохранения массы (3), импульса (4) и внутренней энергии (5). Основные переменные — плотность вещества  $\rho(\mathbf{r}, t)$ , скорость  $\mathbf{v}(\mathbf{r}, t)$ , удельная внутренняя энергия  $\epsilon(\mathbf{r}, t)$  и давление  $P(\mathbf{r}, t)$  — рассматриваются как функции координат и времени;  $D_t$  — производная по времени в системе отсчета, связанной с жидкостью и движущейся с ее скоростью:  $D_t \equiv \partial_t + \mathbf{v} \cdot \nabla$ ;  $\mathbf{R}$  и  $Q$  — радиационный импульс и радиационная энергия, рассчитанные в единице объема,  $\mathbf{q}$  — поток тепловой энергии,  $S$  включает в себя другие источники энергии, такие как энергию лазерного излучения или ионного пучка.

Взяв за основу систему уравнений гидродинамического описания жидкости (3)–(5), К. Эйдман и др. в работе [31] (2000 г.) предложили ГДМ, система уравнений которой содержит отдельно электронную и ионную температуры:

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \left( \frac{1}{\rho} \right) - \frac{\partial u}{\partial m} &= 0, \\ \frac{\partial u}{\partial t} + \frac{\partial (P_e + P_i)}{\partial m} &= 0, \\ \frac{\partial \epsilon_e}{\partial t} + P_e \frac{\partial u}{\partial m} &= -\frac{\partial S_e}{\partial m} - \sum_k \frac{\partial S_k}{\partial m} + \frac{\partial S_L}{\partial m} - \gamma(T_e - T_i), \\ \frac{\partial \epsilon_i}{\partial t} + P_i \frac{\partial u}{\partial m} &= \gamma(T_e - T_i). \end{aligned}$$

В этой системе  $m$ ,  $u$ ,  $P_e$ ,  $P_i$ ,  $\epsilon_e$ ,  $\epsilon_i$ , соответственно, лагранжева массовая координата, скорость жидкости, давление и внутренняя энергия электронов и

ионов;  $T_e$  и  $T_i$  — температура электронов и ионов (в неравновесном состоянии  $T_e \neq T_i$ );  $\partial S_L/\partial t$  — энергия лазерного излучения, поглощенная единицей массы вещества в единицу времени,  $S_e$  — электронный тепловой поток. Энергообмен между электронами и ионами определяется коэффициентом  $\gamma$ ,  $S_k$  — поток излучения от фотона  $k$ -й группы с энергиями  $h\nu_k \leq h\nu \leq h\nu_{k+1}$ .

В разделе 1.1 будет описан вариант ГДМ, разработанный и используемый М. Е. Поварницыным и др. [47, 48].

### 3. Метод молекулярной динамики

Для описания динамики быстропротекающих процессов в веществе под воздействием лазерного импульса можно использовать метод МД (раздел 1.2, [49, 50]), преимущество которого состоит в том, что для моделирования поведения вещества необходимо лишь знать особенности межатомного взаимодействия, и никаких предположений относительно характера изучаемого процесса делать не нужно. Однако необходимость описания межатомного взаимодействия может оказаться и недостатком МД-моделирования — поиск адекватного потенциала межчастичного взаимодействия становится отдельной задачей, иногда весьма трудной, поскольку каждый такой потенциал работает в ограниченной области фазовой диаграммы моделируемого вещества, и при других условиях корректное воспроизведение свойств с этим потенциалом не гарантируется. МД довольно эффективна для микроскопического анализа механизмов плавления и испарения в условиях перегрева как в толще мишени [51–53], так и для систем со свободной поверхностью [54, 55]. Процессы кипения, спиноподальной декомпозиции и фрагментации метастабильной жидкости [56–58], возникновение и распространение волн давления, сгенерированных лазерным излучением [59, 60], а также динамика лазерной абляции [61–63] хорошо моделируются с помощью МД.

МД развивается параллельно с историей вычислительной техники, а сложность решаемых с помощью МД задач непосредственно связана с производительностью компьютеров. Метод МД был впервые предложен в работах [64] (1957 г.) и [65] (1959 г.) для системы из менее 100 твердых сфер. Сегодня МД способна производить моделирование систем, содержащих более  $4 \cdot 10^{12}$  частиц [66] (2014 г.); также следует отметить, что разработанные за более чем 50 лет потенциалы межчастичного взаимодействия чрезвычайно разнообразны.

В МД-моделировании решаются уравнения движения системы частиц (атомов, молекул, ионов и т. п.) Координаты и импульсы частиц эволюционируют под воздействием межмолекулярных сил, которые влияют на каждую частицу в отдельности. Как следует из названия МД, этот метод помимо равновесных свойств системы позволяет изучать и ее динамические свойства.

Моделирование воздействия ультракороткого лазерного излучения на металлы методом МД представляет существенные сложности, в частности из-за необходимости учета вырожденной электронной подсистемы. В некоторых случаях влияние электронов можно учесть с помощью начальных условий, например, для очень тонких пленок [67], в которых выравнивание температур происходит чрезвычайно быстро из-за высокой электронной теплопроводности. Другой способ состоит в получении начальных условий для МД с помощью одномерной двухтемпературной ГДМ [68, 69]; в этом случае для получения заданного начального профиля температуры в МД-ячейке используется термостат Ланжевена. Необходимо отметить, однако, что атомистическое моделирование нескольких последовательных ультракоротких импульсов требует явного учета поглощения энергии излучения лазера и прямого моделирования электронной подсистемы.

При МД-моделировании поведение системы атомов определяется потенциалом межчастичного взаимодействия и граничными условиями.

В работе [70] (1984 г.) был предложен способ расчета потенциала межчастичного взаимодействия для металлов и их сплавов — модель внедренного атома (Embedded-Atom Model, ЕАМ), который учитывает как парное взаимодействие ионов, так и вклад их взаимодействия с электронными оболочками ближайших соседних ионов. Общая форма ЕАМ-потенциала выглядит следующим образом:

$$E_{\text{tot}} = \sum_i E(n_i) + \sum_{i < j} U(r_{ij}), \text{ где } n_i = \sum_{k \neq i} n(r_{ik}). \quad (6)$$

Здесь  $U(r_{ij})$  — парная часть потенциала,  $E(n_i)$  — функция погружения  $i$ -го атома (энергия, необходимая для его помещения в электронное облако),  $n(r_{ik})$  — вклад в плотность заряда электронов от  $k$ -го атома в месте нахождения  $i$ -го атома.

В работе [71] (1993 г.) приводится обзор различных теоретических задач, связанных со свойствами металлов, для решения которых применялись ЕАМ-потенциалы: моделирование объемных (тепловое расширение, термодинамические функции, плавление, фононные спектры) и поверхностных (поверхностное натяжение, поверхностные фононы) свойств, свойств границы мелких зерен и их структуры, механических свойств и дислокаций.

## 4. Гибридные модели

### 4.1. Обоснование актуальности

Для замыкания континуальных моделей (разделы 1 и 2 настоящего обзора) требуются различные модели механических, термодинамических и транспортных свойств. Так, при континуальном моделировании быстропротекающих процессов, индуцированных фемтосекундным лазерным импульсом, требуются двухтемпературное уравнение состояния, кинетические модели фазовых переходов и разрушения, модели поглощения лазерного излучения,



электронной теплопроводности, электрон-ионного взаимодействия и т.п., которые в настоящее время отсутствуют для широкого круга веществ. Многие вопросы, касающиеся кинетики и микроскопических механизмов плавления и кипения в условиях сильного перегрева, остаются дискуссионными до сих пор. Например, неясно, можно ли применять макроскопические кинетические приближения, основанные на классической теории нуклеации [72–74], в условиях, при которых движение фронта плавления сравнимо со скоростью звука, а размеры зародышей другой фазы сравнимы с размером межатомных расстояний. Многие процессы, приводящие к абляции вещества мишени и образованию плазменного плюма при короткоимпульсном воздействии, такие как кулоновский взрыв [75], взрывное гомогенное кипение [76–78], спинодальная декомпозиция [79, 80], активно изучаются.

Метод классической МД также сложно непосредственно применить для моделирования воздействия лазерного излучения на металл (раздел 3 настоящего обзора). Одна из возникающих здесь проблем касается расчета поглощения излучения электронами зоны проводимости. Другая сложность состоит в том, что обычный МД-метод учитывает лишь вклад кристаллической решетки в теплопроводность металла (хотя в реальности есть еще и преобладающий электронный вклад в теплопроводность), что приводит к нефизичному ограничению скорости распространения поглощаемой металлом энергии лазерного излучения.

#### **4.2. Модель Иванова–Жигилея**

Вычислительная гибридная модель, которая позволила преодолеть ограничения континуальной модели и совместить ее преимущества с преимуществами МД, впервые была предложена Д. С. Ивановым в 2003 г. в его совместной с Л. В. Жигилеем работе [32]. В этой модели уравнение теплопроводности

сти, моделирующее поведение электронов как сплошной среды (электронной жидкости), совместно решалось с уравнениями МД, которыми описывалось поведение ионов. Получившаяся система выглядела следующим образом:

$$c_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left( \kappa_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial z} \right) - \gamma(T_e - T_i) + S(z, t), \quad (7)$$

$$m_i \frac{d^2 \mathbf{r}_i}{dt^2} = \mathbf{f}_i + \xi m_i \mathbf{v}_i^T, \quad (8)$$

где

$$\xi = \frac{1}{n} \sum_{k=1}^n \gamma V (T_e^k - T_i) \Big/ \sum_i m_i (\mathbf{v}_i^T)^2.$$

Последнее слагаемое в уравнении (8), которое отвечает за обмен энергией между электронами и ионами, содержит электронную температуру [55, 81, 82]. Уравнение теплопроводности для электронов (7) можно решать конечно-разностным методом одновременно с интегрированием МД-уравнений движения ионов. Поскольку размер светового пятна, образуемого лазерным излучением, намного больше, чем глубина лазерного прогрева, уравнение теплопроводности (7) достаточно решать на одномерной пространственной сетке.

В уравнении (8)  $m_i$  и  $\mathbf{r}_i$  — масса и координата иона с номером  $i$ , соответственно, а  $\mathbf{f}_i$  — сила, действующая на ион  $i$  вследствие межатомного взаимодействия. В дополнительном слагаемом, прибавляемом к силам в МД-уравнениях движения, которое отвечает за электрон-фононное взаимодействие,  $\mathbf{v}_i^T$  — тепловая скорость иона  $i$ .

Для описания поглощения энергии лазерного излучения в модели Иванова–Жигилея задавался гауссов временной профиль интенсивности излучения, а поглощение описывалось законом Бугера–Ламберта–Бера:

$$S(z, t) = \frac{1 - R}{L_p} I_0 e^{-(t-t_0)^2/(2d^2)} e^{-z/L_p} = \frac{1 - R}{L_p} I_0 \cdot 16^{-(t-t_0)^2/\tau^2} e^{-z/L_p}, \quad (9)$$

где  $I_0$  — пиковая интенсивность,  $R$  — коэффициент отражения,  $L_p$  — глубина оптического проникновения,  $d$  — среднеквадратичное отклонение,  $\tau =$

$d\sqrt{8 \ln 2}$  — характерная длительность импульса (длительность на половине максимального значения интенсивности). Интегральная плотность излучения лазера  $F$  и пиковая интенсивность  $I_0$  связаны между собой соотношением

$$F = \sqrt{\frac{\pi}{4 \ln 2}} I_0 \tau \approx 1.0645 I_0 \tau. \quad (10)$$

### 4.3. Модель с термостатом Ланжевена

В работе [83] (1989 г.) предлагается вычислительная модель, в рамках которой в МД включается учет неупругих потерь энергии, что делает возможным использовать МД для моделирования высокоэнергетичного радиационного разрушения металлической кристаллической решетки. Авторы работы рассматривали вопрос адекватного учета неупругого рассеяния электронов, а теплопроводность твердого металла описывали путем взаимодействия ионов с тепловым резервуаром. В основе модели лежит уравнение Ланжевена [84]:

$$\mu \ddot{\mathbf{r}} = \mathbf{f} + \boldsymbol{\eta}(t) - \beta \dot{\mathbf{r}}, \quad (11)$$

где  $\beta$  — постоянная, характеризующая силу взаимодействия с резервуаром, обратно пропорциональная времени жизни флуктуаций энергии, а сила Ланжевена  $\boldsymbol{\eta}(t)$  — случайная сила, которая удовлетворяет флуктуационно-диссипационной теореме. Чтобы имитировать электрон-фононное равновесие, постоянная  $\beta$  должен быть таковой, чтобы время электрон-фононной релаксации составляло величину порядка  $\tau_{\text{rel}} = \mu/(2\beta) \sim 10^{-11}$  с [85] ( $\mu$  — масса налетающей частицы). В зависимости от величины кинетической энергии ионов, выделяются два режима передачи энергии от возбужденных электронов к ионам, для этих режимов авторы модели считают возможным использовать одни и те же уравнения с различающимся на один-два порядка параметром  $\beta$ .

На основе работы [83] разработаны некоторые варианты модели с термостатом Ланжевена, изложенные в работах [86–88].

Работа [86] и ее логическое продолжение [87] (2007 г.) посвящены моделированию радиационного разрушения железа. В применяемой модели электрон-ионное взаимодействие описывается торможением ионов в электронном газе, а моделирование электронов производится путем решения уравнения теплопроводности, при этом учитывается передача энергии электронному газу от ионов при их торможении. Для учета обратной передачи энергии, от электронов к ионам, используется «неоднородный» ланжевенский термостат (такое название в работах [86, 87] дано из-за того, что ланжевенская сила различна по всему пространству и изменяется с течением времени). В модели [86, 87] уравнения движения ионов аналогичны (11), но иначе моделируется коэффициент трения  $\beta_i$  — для каждого атома он складывается из двух компонент, отвечающих за потерю энергии при электрон-ионных взаимодействиях ( $\beta_p$ ) и электронном торможении ( $\beta_s$ ):

$$\beta_i = \beta_p + \beta_s \text{ при } v_i > v_0, \text{ и } \beta_i = \beta_p \text{ при } v_i \leq v_0,$$

где  $v_0$  — пороговая скорость ионов, при превышении которой начинает проявляться тормозящее воздействие электронов. Величина случайной силы  $\boldsymbol{\eta}(t)$  определяется локальной электронной температурой вычислительной ячейки сетки, которой принадлежит атом, эта сила удовлетворяет соотношениям:

$$\langle \boldsymbol{\eta}(t) \rangle = 0,$$

$$\langle \boldsymbol{\eta}(t') \cdot \boldsymbol{\eta}(t) \rangle = 2k_B T_e \beta_p \delta(t' - t)$$

(флуктуационно-диссипационная теорема). Эволюция электронной температуры в модели описывается численным решением уравнения теплопроводности

$$c_e \frac{\partial T_e}{\partial t} = \nabla(\kappa_e \nabla T_e) - g_p(T_e - T_a) + g_s T_a'$$

на сетке, привязанной к МД-ячейке;  $c_e$  — удельная теплоемкость (при постоянном объеме) и  $\kappa_e$  — теплопроводность электронного газа. Температуры  $T_a$

и  $T'_a$  получены из кинетической энергии частиц в ячейке сетки; при расчете значений  $T'_a$  исключаются частицы, скорость которых меньше  $v_0$ . Связующие параметры  $g_p$  и  $g_s$  выбираются так, чтобы сбалансировать передачу энергии из-за силы сопротивления и стохастической силы, представляющих электрон-фононное взаимодействие, в итоге они линейно зависят, соответственно, от  $\beta_p$  и  $\beta_s$ . Вычислительный алгоритм устроен так, что на каждом временном МД-шаге происходит энергообмен между электронной и ионной подсистемами.

Еще один вариант двухтемпературной модели с ланжевеновским термостатом был предложен в работе [88] (2009 г.), и в ней же было описано его применение для моделирования системы атомов, взаимодействующих с потенциалом ЛД. Модель этой работы основана на модели [86, 87], в нее с целью улучшения сохранения энергии были внесены некоторые изменения в подсчет энергии, переданной при энергообмене — вычислялась полная энергия, потерянная частицами за один МД-шаг:

$$(\Delta E_f)_j = \sum_i \mathbf{f}_i \mathbf{v}_i \Delta t,$$

а затем решалось уравнение теплопроводности для электронов:

$$c_e \frac{\partial T_e}{\partial t} = \nabla(\kappa_e \nabla T_e) - \sum_j \frac{(\Delta E_f)_j}{V},$$

$V$  — объем одной ячейки вычислительной сетки. Такая модификация двухтемпературной модели, способная лучше сохранять энергию по сравнению с базовыми моделями [83, 86, 87], позволяет проводить моделирование малых областей с интересными энергетическими феноменами, без введения нефизических флуктуаций энергии, которые могут повлиять на результаты моделирования.

#### 4.4. Градиент электронного давления

Модель Иванова–Жигиля (§4.2 настоящего обзора) не рассматривает влияние электронного возбуждения на межионные силы, следовательно, в этой модели не учитывается увеличение давления при нагреве электронной подсистемы (электронное давление).

В работе [89] (2006 г.) предпринимались попытки учесть электронную «взрывную силу» («blast force» — термин из работы [89]), т. е. кинетическое давление электронов, возникающее из-за большого значения градиента электронной температуры в самом начале лазерного нагрева. В этой работе показывается, что из-за изотропии идеальный электронный газ может влиять на электронную подсистему слабо и лишь при наличии градиента электронной температуры. Модель [89] является дальнейшим развитием дважды гиперболической двухтемпературной модели [90], которая, в свою очередь, основана на двухтемпературной модели Анисимова (раздел 1 настоящего обзора). Опуская подробности, можно отметить, что в модели [89] для описания электронов вместо уравнения теплопроводности используется следующее уравнение, содержащее «взрывную силу»:

$$m_e \frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} + m_e \mathbf{v} \cdot \nabla \mathbf{v} - e \mathbf{E} + \frac{1}{n} \nabla P_e = m \left( \frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} \right)_c,$$

где столкновительный член  $m(\partial \mathbf{v} / \partial t)_c$  представляет собой скорость изменения плотности импульса из-за внутризонных столкновений и процессов генерации-рекомбинации,  $\mathbf{E} \sim \nabla T_e$  — электрическое поле, возникающее из-за неравномерного прогрева проводника при отсутствии тока. Здесь  $\nabla P_e = 2nk_B \nabla T_e$  — это и есть «взрывная сила», действующая со стороны разогретых электронов. Теоретический расчет такой силы электронного давления был проведен ранее в [91] (1999 г.), там же обосновано влияние этой силы на деформацию кристаллической решетки и ее разрушение.

В работе [92] (2008 г.) показано, что наличие электронного давления мо-

жет изменить картину абляции. В этой работе была предложена модель, в ходе создания которой авторы ставили задачу наиболее простым способом учесть эволюцию плотности мишени сразу после лазерного нагрева, до наступления теплового равновесия. За основу этой модели авторы взяли модель Анисимова, содержащую уравнения в форме (2). Утверждается, что для движения вещества со скоростями, малыми по сравнению со скоростью звука, анализ возмущений плотности в целях упрощения можно свести к уравнению релаксации давления, добавленного к системе уравнений двухтемпературной модели (2). Наименьшее возможное давление в системе может быть определено уравнением:

$$P_{\text{eq}}(\rho, T_e, T_i) = 0 \text{ либо } \left. \frac{\partial P}{\partial \rho} \right|_{\text{eq}} = 0. \quad (12)$$

Первое уравнение в (12) следует из теории упругости и предполагает, что изо-терма  $P(\rho)$  достигает своего минимума при отрицательном давлении, и это условие может выполняться при относительно низких температурах электронов и ионов. При более высоких температурах давление становится положительным для любой плотности, и равновесное давление определяется вторым уравнением в (12), которое, по сути, является определением спинодали. Предполагается, что система эволюционирует таким образом, что она асимптотически достигнет состояния с наиболее низким давлением. Соответственно, давление  $P(\rho)$  определяется уравнением локальной релаксации:

$$\frac{dP}{d\rho} = -\frac{P - P_{\text{eq}}}{\tau_{\text{rel}}},$$

где  $\tau_{\text{rel}}$  — характеристическое время прихода давления к равновесию, которое может быть определено как время распространения возмущения давления со скоростью звука на глубину скин-слоя. В выводах к данной работе указывается, что релаксация давления повышает температуру ионов, уменьшает плотность и приводит вещество к термодинамическому состоянию вблизи

фазового перехода жидкость–газ. Из-за падения плотности уменьшается энергия межионной связи, что индуцирует абляцию, которая происходит перед термализацией.

В работе [93] (2009 г.) «взрывной силой» со стороны идеального электронного газа была дополнена модель Иванова–Жигилея (§4.2 настоящего обзора). Далее в этой работе было проведено моделирование абляции золотых нанопленок фемтосекундным лазерным импульсом с применением получившейся модели. Модель состояла из уравнений в форме (7)–(8), а «взрывная сила» рассчитывалась следующим образом:

$$\mathbf{G} = \frac{2}{3}\nabla(c_e T_e),$$

и эта найденная величина включалась в добавку к силе, действующей на ионы, в уравнении (8) модели Иванова–Жигилея. Модифицированное уравнение (8) выглядело следующим образом:

$$m_i \frac{d^2 \mathbf{r}_i}{dt^2} = \mathbf{f}_i + \xi m_i \mathbf{v}_i^T + \frac{\mathbf{G}V}{N},$$

где  $N$  — количество ионов в объеме  $V$ , а остальные обозначения те же, что и в уравнении (8). В работе по результатам сравнения рассчитанных профилей механического напряжения в мишени с учетом электронного давления согласно предлагаемой модели и без него предлагается вывод, что воздействие «взрывной силы» на термомеханическую реакцию мишени не очень выражено, по крайней мере, для пленки толщиной 100 нм. Показано, что влияние электронного давления более заметно в случае более толстой пленки (толщиной 300 нм) и в случае большого градиента и медленного изменения профиля температуры решетки, что приводит к заметным волнам разрежения.

В работе [94] (2006 г.) изучалось влияние интенсивного лазерного облучения на устойчивость кристаллической решетки кремния, золота и алюминия при различных электронных температурах путем сравнения фонон-



ных спектров, полученных первопринципными расчетами с использованием программы ABINIT [95]; в работе [96] (2009 г.) экспериментально исследовались процессы, сопутствующие повышению устойчивости кристаллической решетки золота при повышенной электронной температуре. По сравнению с рассмотренными работами [89, 92, 93], где явно не говорится о значительном влиянии электронного давления на эволюцию ионной подсистемы, в [94] и [96] было отмечено, что высокая электронная температура даже при отсутствии ее градиента может существенно изменить фононный спектр и температуру плавления ионной подсистемы.

## **5. Эксперименты по абляции, модификации поверхности и получению наночастиц**

Лазерная абляция твердых тел ультракороткими субпикосекундными импульсами (в том числе двойными) применяется для сверхточной обработки веществ, поэтому экспериментально исследуется поведение вещества мишени и динамика плюма под воздействием импульсного излучения [97–101] для повышения интенсивности спектральных линий в лазерно-искровой эмиссионной спектроскопии (ЛИЭС) [102, 103], для оптимизации получения нужного соотношения размеров наночастиц в вакууме [104, 105] и жидкостях [106, 107], а также изучаются процессы модификации поверхности веществ и их оптических свойств [108].

В работе [97] (2004 г.) экспериментально изучаются особенности микроабляции металла и перегрева плазмы под действием ультракоротких (от 50 фс до 10 пс) двойных лазерных импульсов с задержкой между импульсами от 50 фс до 250 пс, длина волны лазера 800 нм. Упор делался на изучение особенностей такой абляции и повторного нагрева плазмы, а также определялся наиболее оптимальный режим абляции металлических мишеней. Для

этого изучалась зависимость формы и размеров абляционного кратера и параметров лазерной микроплазмы (формы, размеров, скорости расширения, интенсивности, времени жизни, воспроизводимости при повторном импульсе) от задержки между импульсами. В работе было проделано две серии экспериментов.

В ходе первой серии мишень подвергалась воздействию ряда одиночных импульсов, следующих один за другим, с различной энергией (от 2 до 20 мкДж) и длительностью (от 50 фс до 2 пс). Оказалось, что глубина кратера линейно зависит от энергии и количества воздействовавших импульсов (вплоть до 30-ти импульсов), при условии, если временной промежуток между последовательными импульсами превышает время жизни плазменного облачка, состоящего из аблированного вещества мишени, которое, по оценкам из этой же статьи, составляет  $\sim 100$  нс. Было обнаружено, что эффективность абляции не зависит от длительности импульса, лежащей в интервале от 50 фс до 2 пс; было установлено, что для алюминиевой мишени эффективность абляции по глубине кратера составляет  $0.027$  мкм/(Дж/см<sup>2</sup>), а для медной —  $0.02$  мкм/(Дж/см<sup>2</sup>). Также приводятся данные для этих металлов по эффективности абляции с точки зрения объема получающегося кратера, и эти данные согласуются с данными, полученными в результате предыдущей работы этого же автора [109] (2001 г.), в которой изучалось влияние одиночного импульса различной длительности и частоты излучения на металл. Исследование поверхности кратера оптическими приборами показало, что отсутствует осаждение вещества на дно кратера. При увеличении энергии лазера с 2 до 10 мкДж диаметр поверхности кратера и для алюминиевой, и для медной мишеней возрастает с 20 до 30 мкм, затем, при дальнейшем увеличении энергии лазера с 10 до 20 мкДж, диаметр остается постоянным. Кратеры, полученные от одиночного импульса с энергией 20 мкДж, но различной длительности, совершенно не различимы между собой, если длитель-

ность импульса лежит в интервале от 50 фс до 2 пс. Также изучалась форма и интенсивность свечения вылетающего абляционного плазменного плюма, показано, что его размеры не превышали 100 мкм.

Целью второй серии экспериментов было изучение зависимости параметров кратера в медной и алюминиевой мишенях от длительности задержки между двумя последовательными импульсами, если эта задержка мала по сравнению с временем жизни абляционного плюма. Для каждой длительности импульса и каждой задержки между импульсами создавались два кратера: один кратер формировался двойным импульсом с энергией  $2 \times 20$  мкДж, а другой — одиночным, с энергией 20 мкДж. Это позволяло сравнивать глубину абляционного кратера, получившегося после поглощения одиночного и двойного импульса. Результаты этой серии экспериментов для меди нанесены на график зависимости глубины абляции от величины задержки между двумя импульсами (рис. 1). Из получившегося графика было замечено, что при воздействии на мишень двойным импульсом глубина кратера начинает монотонно уменьшаться, если задержка между импульсами превышает 1 пс. Если задержка превышает 10 пс, то тогда глубина кратера после воздействия двойного импульса становится даже меньше, чем после одноимпульсного воздействия (хотя общая энергия двойного импульса выше), и эта зависимость справедлива для импульсов любой длительности, меньшей 2 пс. Аналогичная качественная зависимость наблюдалась и в случае алюминиевой мишени с теми же характерными временами. Затем для тех же металлов аналогичная зависимость была получена и для импульсов меньшей интенсивности.

В конце статьи говорится, что плазменное образование над поверхностью мишени возникает через 1 пс после прохождения первого импульса, затем, спустя  $> 10$  пс, энергия второго импульса тратится на нагрев этой плазмы. Расширение сильно нагретой плазмы (1–10 пс) занимает больше времени, чем лазерный нагрев ( $< 2$  пс), поэтому нужно учитывать вклад излу-

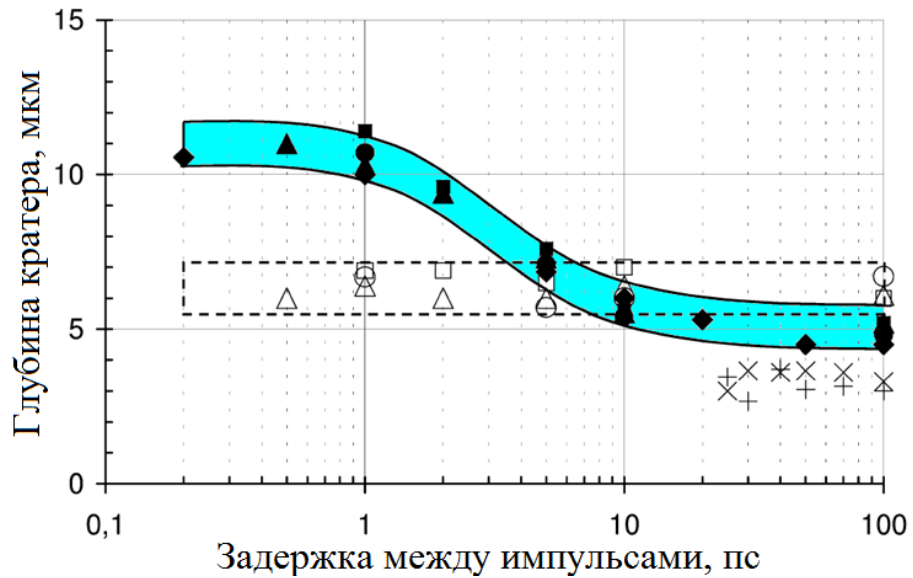


Рис. 1. Зависимость глубины абляционного кратера от задержки между двумя последовательными импульсами. Данные, относящиеся к двойному импульсу (с энергией  $2 \times 20$  мкДж), отмечены символами:  $\blacklozenge$  — длительность импульса 50 фс,  $\blacktriangle$  — 160 фс,  $\blacksquare$  — 675 фс и  $\bullet$  — 2 пс. Данные для одиночного импульса (с энергией 20 мкДж) отмечены аналогичными символами для соответствующей длительности каждого импульса:  $\triangle$  — 160 фс,  $\square$  — 675 фс и  $\circ$  — 2 пс. Глубина кратера, полученная с помощью импульса длительностью 10 пс, показана маркером  $\times$  для двойного импульса и  $+$  — для одиночного. (Рисунок из работы [97].)

чения плазмы, ее высокого давления и температуры в нагрев поверхности и образование кратера. Комплексный микроструктурный анализ кратера свидетельствует о тепловом характере абляции металла.

В работе [98] (2005 г.) изучается взаимодействие второго импульса с плюмом, произведенным первым импульсом после воздействия на твердую мишень (материал мишени — титан), методом спектроскопии с разрешением по времени, диапазон энергии импульса  $10^{12}$ – $10^{14}$  Вт/см<sup>2</sup>. Применяемый метод позволяет исследовать оптическое излучение, которое характеризует вещество, вылетающее из мишени, а именно — ионы, нейтральные атомы и наночастицы. Распределение этих наночастиц по размерам определяется путем анализа подложки с осажденным веществом. Изучалось воздействие

двойного импульса с задержкой между импульсами от 0.8 до 1 нс на процесс фрагментации вещества.

В работе [99] (2009 г.) экспериментально изучалась абляция никеля в вакууме под воздействием двойного ультракороткого ( $\approx 250$  пс) лазерного импульса (длина волны 527 нм) с задержкой между импульсами от 1 до 1000 пс. При этом исследовались такие параметры, как объем аблированного вещества, угловое распределение абляционного плазменного плюма, количество эмитированных из мишени ионов. При росте задержки от 10 до 100 пс объем аблированного вещества уменьшался более, чем в два раза, становясь даже меньше, чем от воздействия одиночного импульса, при этом эмиссия ионов из вещества мишени сильно возрастала. Предлагается объяснение, что это происходит из-за взаимодействия второго импульса с веществом, аблированным первым импульсом. На рис. 2 приведены несколько профилей кратеров, полученных путем воздействия двойного импульса с различными задержками между импульсами, а также, для сравнения, приведен профиль кратера, полученного после воздействия одиночного импульса. Как видно, поведение зависимости глубины абляции от задержки между импульсами качественно похоже на аналогичные зависимости для других веществ, полученные в других экспериментальных работах.

ЛИЭС — один из методов атомно-эмиссионного спектрального анализа, в котором используют спектры плазмы лазерного пробоя (лазерной искры) для анализа твердых образцов, жидкостей, газовых сред, взвешенной пыли и аэрозолей. Лазерный пробой формируют при фокусировке импульсного лазерного излучения на поверхности образца (или в объеме газа). В лазерной искре формируется весьма горячая плазма (возможна температура до 100 кК, обычно для экспериментов требуется 5–20 кК) с концентрацией электронов до  $\sim 10^{18}$  см<sup>-3</sup> [110]. Использование лазерных импульсов короче 1 пс предельно упрощает процесс сверхбыстрого испарения и ионизации вещества,

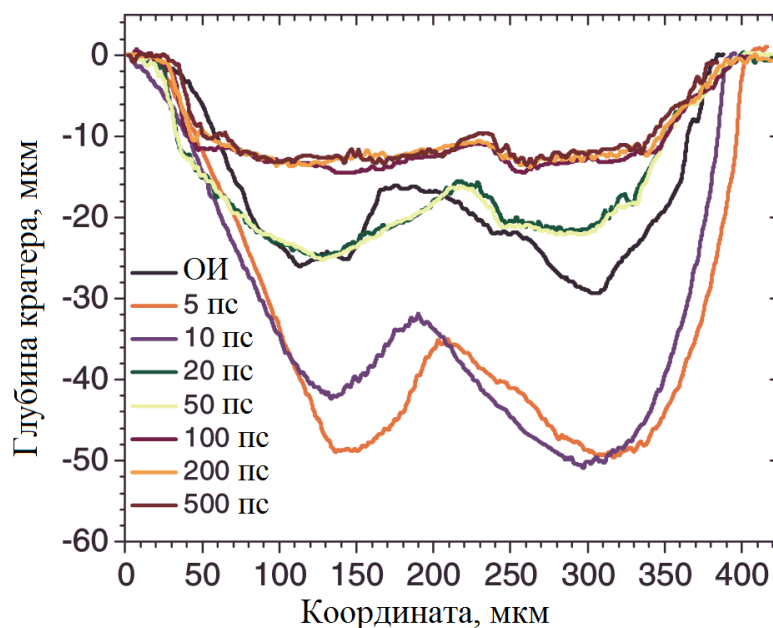


Рис. 2. Профили глубины кратера абляции в никелевой мишени, полученные воздействием на нее двойного лазерного импульса, для различных задержек между импульсами. ОИ — профиль глубины кратера от одиночного импульса. (Рисунок из работы [99].)

поскольку на эти процессы не влияет теплопередача по объему образца и нет экранирования лазерного излучения плазмой факела, формирование которой происходит уже после окончания лазерного импульса. Эти факторы улучшают воспроизводимость анализа ЛИЭС. Двухимпульсная ЛИЭС впервые была использована при анализе проб воды в работе [111] (1999 г.), а авторы [112] (2003 г.) были одними из первых, кто применил двух- и многоимпульсные схемы для анализа твердых тел.

В работе [102] (2008 г.) представлены результаты, полученные при изучении твердых веществ (латуни, железа, алюминия, кремния, сульфата бария) в окружающих средах двухимпульсной фемтосекундной ЛИЭС с помощью лазера с длиной волны 248 нм и длительностью одного импульса 450 пс. При оптимальном временном разрешении между двумя импульсами, вызывающими абляцию, обнаружено усиление сигнала в 3–10 раз по сравнению со случаем одиночного импульса. Исследовалось влияние задержки между

импульсами  $\Delta t$  на интенсивность сигнала ЛИЭС, и выявлено два интервала для значений задержки, в которых ЛИЭС работает по-разному: первый интервал — от 0 до 50 пс, в котором интенсивность сигнала ЛИЭС растет до достижения максимальной величины, а во втором интервале 50–1000 пс — усиление сигнала остается постоянным. В выводах к данной работе предполагается, что наблюдаемый эффект может быть вызван различными физическими механизмами и их взаимодействием между собой. Среди этих механизмов упоминается повторный нагрев плазмы, воздействие второго импульса на модифицированную поверхность образца и формирование плазмы из воздуха из-за взаимодействия электронов, покидающих мишень, с окружающей атмосферой.

В работе [103] (2014 г.) с помощью атомно-силовой микроскопии анализируются абляционные структуры, возникающие после воздействия фемтосекундных двойных лазерных импульсов с задержкой между импульсами в диапазоне от 100 фс до 2 нс на мишень из алюминия и титана в условиях окружающей среды, энергия импульса значительно выше порога абляции. Длительность одного импульса 30 фс, длина волны 785 нм, оба импульса имеют одинаковую интенсивность. Изучается зависимость интенсивности спектральных линий элементов и спектра светящегося плазменного плюма от задержки между двумя импульсами. Обнаружены различные режимы усиления спектральных сигналов ЛИЭС, причем поведение зависимости качественно похоже для обоих веществ. Опуская подробности, можно лишь отметить, что при задержках менее 2 пс общее поведение абляции напоминает случай одноимпульсной абляции при той же суммарной энергии падающего излучения. При увеличении задержки между импульсами до нескольких десятков пикосекунд уменьшается коэффициент отражения вещества мишени, увеличивается доля поглощенной энергии, становится выше степень ионизации получившегося плазменного плюма, и, следовательно, выше интенсивность сигнала ЛИЭС.

При более длинной задержке (вплоть до 150 пс) отражение второго импульса становится более выраженным, при этом интенсивность сигнала ЛИЭС продолжает расти вплоть до значений задержки 800 пс.

В работе [104] (2009 г.) методами атомно-силовой микроскопии исследовалась эффективность получения наночастиц, вылетающих вместе с плюмом из металлической мишени (сравнивались результаты, полученные для золота и меди) при абляции двойным лазерным импульсом. Использовался лазер с длиной волны 800 нм, длительность импульса 100 фс, задержка между импульсами 0.1–300 пс. Показывается, что количество наночастиц значительно уменьшается, если задержка между двумя импульсами превышает характерное время электрон-решеточной термализации. В качестве возможного механизма наблюдаемого уменьшения количества наночастиц предполагается, что доминирующим процессом является снижение электронной теплопроводности при высоких температурах решетки.

Работа [105] (2014 г.) посвящена изучению таких параметров, как распределение частиц по скоростям, массовая скорость и степень монохроматичности  $\mu = \langle v \rangle^2 / \langle v^2 \rangle$  потока газа-плазмы при абляции металлов (изучались титан, цирконий, молибден, ниобий, медь) под воздействием фемтосекундного лазерного импульса (длительность импульса  $\sim 45$  фс, длина волны лазера  $\sim 800$  нм). Результаты работы представлены в виде совокупности новых экспериментальных данных.

В работе [106] (2008 г.) получали наночастицы золота путем лазерной абляции золотой пластины в водном растворе лаурилсульфата натрия, средний диаметр частиц  $\approx 11$  нм. Затем капли коллоидного раствора, содержащего эти наночастицы, облучались одиночным и двойным наносекундным лазерным импульсом с длиной волны 532 нм и энергией 30 мДж с целью исследования динамики дальнейшей фрагментации этих наночастиц. Средний диаметр полученных фрагментов оказывался наименьшим тогда, когда на на-



ночастицы производилось воздействие одиночного импульса удвоенной мощности (иными словами, двойного импульса с нулевой задержкой), с увеличением задержки между импульсами размер фрагментов увеличивался. Предполагается объяснение, что наночастицы термически возбуждаются лазерным импульсом, а затем многократно ионизируются, и величина приобретенного частицами заряда растет с увеличением интенсивности лазерного излучения, а также с увеличением размера частиц. Фрагментация наночастиц является следствием их кулоновского взрыва. В случае воздействия двойным импульсом заряженные фрагменты, сформированные первым импульсом, слипаются, если их заряд после воздействия второго импульса становится больше некоторого порогового значения.

В работе [107] (2015 г.) исследовалась структура нанодисперсного диоксида циркония, синтезированного посредством лазерной абляции металла в воде и водном растворе лаурилсульфата натрия. Для экспериментов использовался ультрафиолетовый лазер со средней мощностью  $\sim 0.6$  Вт, длина волны его излучения 271 нм, длительность одного импульса 20 нс, частота импульсов 10 кГц. В ходе эксперимента получалась коллоидная взвесь, содержащая наночастицы диоксида циркония. Рентгеновские дифрактограммы и спектры комбинационного рассеяния этой взвеси указывают на преобладание аморфной фазы в синтезированном диоксиде циркония, а в кристаллизованной фазе присутствуют все три формы — кубическая, тетрагональная и моноклинная. Также в работе указана возможность достаточно гибко менять свойства получаемых наночастиц: в дистиллированной воде получают отдельные крупные частицы (до 10 мкм) и агрегаты из округлых частиц (100–500 нм), а изменяя время лазерного воздействия (в диапазоне 5–180 мин), можно получать частицы различной формы с различным их соотношением (округлые, сферические полые, полые с вогнутой поверхностью, а также частично разрушенные); при добавлении в воду поверхностно-активного вещества лаурил-

сульфата натрия в осадке появляются его кристаллиты и крупные слоистые образования, в которые включены агрегаты, состоящие из сплошных и полых частиц диоксида циркония.

В работе [108] (2011 г.) экспериментально изучается формирование лазерно-индуцированных периодических поверхностных структур при облучении оксида кремния двойным фемтосекундным лазерным импульсом (150 фс, 800 нм), а также множественной последовательностью таких импульсов. По результатам наблюдений авторы делают вывод о влиянии лазерного возбуждения электронов в зоне проводимости на формирование таких структур из-за релаксации носителей.

## 6. Моделирование абляции (1 и 2 импульса)

В течение последнего десятилетия основной задачей численного моделирования ультракороткой лазерной абляции металлов была попытка сформулировать модель, позволяющую точно описать экспериментальные данные [113, 114], понять основные механизмы, ответственные за процесс абляции вещества [115, 116] и динамику наночастиц [117] под воздействием лазерного излучения. Кроме того, усилия теоретиков были направлены на поиск оптимального временного профиля лазерного импульса [118]. Проводилось континуальное моделирование лазерной абляции под воздействием одиночного [119, 120] и двойного [121, 122] импульсов, проводилось МД-моделирование абляции от воздействия одиночного [32, 82, 123–125] и двойного [126] импульсов, а также изучалась эффективность абляции мишени, покрытой тонкой пленкой жидкости [127]. Также представляет интерес теоретическое описание экспериментов типа Pump-Probe [48, 128, 129].

В работе [113] (2011 г.) для описания процесса абляции золота вблизи порогового энерговклада было предложено дополнить двухтемпературную мо-

дель Иванова–Жигиляя (§4.2 настоящего обзора) потенциалом межионного взаимодействия, зависящим от электронной температуры (ETD)  $U(\Delta\mathbf{r}, T_e(\mathbf{r}))$ . По мнению авторов данной работы, использование такого потенциала позволило учесть влияние электронного давления на поведение ионов с целью интерпретации имеющихся экспериментальных данных. Этот метод аналогичен предложенному ранее, в [130] (2008 г.) Основная проблема данного метода состоит в том, что при решении системы уравнений, содержащей ETD-потенциал, не сохраняется полная энергия моделируемой физической системы, поскольку в ходе решения уравнений Ньютона для нахождения межатомных сил требуется находить градиент такого потенциала (см. §1.2.1 и формулу (1.9)):

$$\mathbf{f}_i = -\nabla U(\Delta\mathbf{r}, T_e(\mathbf{r}));$$

и, поскольку потенциал зависит от температуры электронов, которая, в свою очередь, зависит от координат (особенно сильна такая зависимость в первые несколько фемтосекунд после лазерного нагрева, когда профиль электронной температуры на поверхности мишени может достигать значений сотен килокельвинов, а в глубине мишени электронная температура может незначительно отличаться от температуры решетки), в выражение для силы войдет градиент электронной температуры. В более поздней работе [114] (2014 г.), в которой также участвовали авторы [113], было явно указано, что использование ETD-потенциала приводит к принципиальному несохранению полной энергии системы, что неприемлемо ни для точных расчетов воздействия одиночного импульса высокой (по сравнению с порогом абляции) интенсивности, ни для моделирования двойного импульса.

В работах Н. А. Иногамова, В. В. Жаховского, В. А. Хохлова и др. [131] (2014 г.), [132] (2016 г.) для описания фемтосекундной абляции металлической мишени применяется комбинированный способ, разработанный ранее

в [69] (раздел 3 настоящего обзора): начальная стадия лазерного нагрева моделируется одномерной двухтемпературной ГДМ (уравнения используемой модификации ГДМ приведены в [133]), а после релаксации, когда исчезает необходимость применять двухтемпературную модель, моделирование производится с помощью МД. Рассматриваются случаи мишени из золота разной толщины, приводится сравнение динамики абляции. В [131] отмечается, что такой комбинированный способ позволяет учесть электронное давление (§4.4 настоящего обзора). Новые эффекты, связанные с учетом электронного давления, обсуждаются в работах Н. А. Иногамова и др. [134–136]. В [135] отмечается, что на этапе лазерного нагрева металлов (двухтемпературной стадии) электронное давление в 3–4 раза превышает ионное, и тогда становится заметным движение вещества, инициируемое электронным давлением, при этом от металлической мишени могут отделяться возбужденные атомы в макроскопическом количестве, формируя разреженный газ, поскольку присутствует электрон-ионное взаимодействие. В работе [136], в которой изучаются механизмы генерации ударных волн в двухтемпературной стадии, показано, что в твердом горячем металле (алюминии), нанесенном на стеклянную подложку, после воздействия лазерного импульса возникает растяжение на границе с подложкой преимущественно вследствие электронного давления.

В работе [137] (2016 г.) методом [69, 133] моделируется абляция золота фемтосекундным лазерным импульсом средней интенсивности и производится сравнение расчетов с экспериментом.

Дальнейший обзор будет выполнен в виде таблицы 1, в которой будет приведено сравнение некоторых ключевых работ, затрагивающих непосредственно тематику моделирования воздействия ультракороткого лазерного импульса на металл и не вошедших в предыдущие разделы настоящего обзора.

Таблица 1. Сведения о проделанных теоретических работах по тематике настоящей диссертации.

Работа	Используемая модель, допущения	Вещества	Комментарий
1	2	3	4
[116]	Модель Иванова–Жигилея (§4.2 настоящего обзора)	Ag	Моделировалось формирование полостей, рекристаллизация поверхности
[117]	Однотемпературное уравнение теплопроводности. Коэффициенты теплопроводности — константы. Отдельно и различными уравнениями описывалось поглощение энергии, термализация, теплообмен с окружающей средой	Au	Моделировался нагрев фемтосекундным импульсом наночастиц в воде
[118]	Двухтемпературная ГДМ. Для расчета поглощения энергии решались уравнения Гельмгольца, диэлектрическая проницаемость — функция электронной и ионной температуры, плотности и среднего заряда	Al	Моделировался нагрев металлов при лазерной абляции на сверхмалом временном масштабе
[119]	Модель, напоминающая двухтемпературную модель с теплопроводностью (раздел 1 настоящего обзора). Для расчета поглощения энергии решались уравнения Гельмгольца	Al, Cu	Сравнивались экспериментальные данные по абляции меди и алюминия 170-фс лазерным импульсом с теоретическими расчетами
[92, 120]	Модель, учитывающая электронное давление (§4.4 настоящего обзора, обзор работы [92])	Al, Cu	Предложена одна из моделей, учитывающих влияние электронного возбуждения на межионные силы
[121, 122]	ГДМ модификации М. Е. Поварницына (раздел 1.1)	Cu	Моделировалась абляция двойным импульсом
[82]	Двухтемпературная модель с теплопроводностью (раздел 1 настоящего обзора). Часть толщины пленки моделировалась МД, обмен между электронной и ионной подсистемами согласно [55] — поправка к силе содержит электронную и ионную температуры и пропорциональна скорости частиц. Поглощение энергии по закону Бугера–Ламберта–Бера. Электронная теплопроводность зависит от электронной и ионной температуры	Cu	Моделировалась абляция ультрафиолетовым пикосекундным лазерным импульсом (с участием Л. В. Жигилея). Работа предшествовала работе Д. С. Иванова и Л. В. Жигилея [32], в которой была предложена гибридная модель (§4.2 настоящего обзора), сочетающая в себе континуальный подход и МД и которая применялась во всем образце

1	2	3	4
[123]	МД. Поглощение фотонов определялось энергообменом с «носителями», т. е. частицами, которые описываются динамикой Друде, она определяется последовательными столкновениями с характерным временем рассеяния 1 фс. При каждом столкновении «фонон» с энергией $0.07\varepsilon^1$ передается от «носителя» к ближайшему атому, если «носитель» обладает достаточной энергией. Это достигалось путем добавления соответствующих компонент скорости атома в случайном направлении. Для имитации диффузии энергии за пределы вычислительной ячейки использовался термостат Ланжевена	ЛД	Моделировалась абляция кристалла. В работе сказано, что ее авторы не ставили цель промоделировать реалистичные процессы взаимодействия излучения с веществом
[124]	Модель, содержащая ETD-потенциал, предложенная в работе [113]	Au	Изучалась модификация поверхности пикосекундным рентгеновским импульсом, проводилось сравнение с экспериментом
[125]	Модель, содержащая ETD-потенциал. Одномерные и трехмерные расчеты	Al, Au	Моделировалась модификация поверхности пикосекундным рентгеновским импульсом
[126]	Модель Иванова–Жигиля (§4.2 настоящего обзора). Зависимости коэффициентов теплопроводности и теплоемкости простые. Поглощение второго импульса плазменным плюмом не учитывалось. Импульсы слабые по сравнению с порогом абляции	Al	Проводилось моделирование абляции двойным импульсом, грубая оценка эффекта уменьшения глубины абляции при воздействии двойным импульсом (раздел 5 настоящего обзора, обзор работ [97, 99])
[127]	Работа является логическим продолжением [123], модель та же. Жидкость абсолютно прозрачная	ЛД <sup>2</sup>	Изучалась абляция кристалла, покрытого тонким слоем жидкости, ультракороткими импульсами с низкой интенсивностью по сравнению порогом абляции

<sup>1</sup> Здесь  $\varepsilon$  — параметр потенциала ЛД.

<sup>2</sup> И кристалл, и жидкость в этой работе моделировались как система частиц, взаимодействующих с потенциалом ЛД.

## 7. Выводы по итогам обзора литературы

1. Теоретическое описание одно- и многоимпульсной абляции важно для повышения эффективности научных исследований и технологических процессов, в которых происходит абляция вещества.
2. Существует экспериментально обнаруженный эффект уменьшения глубины абляции при воздействии двойным импульсом с ростом задержки между импульсами [97, 99], также требующий теоретического объяснения и количественной оценки. Этот эффект является следствием воздействия второго импульса на плазменный пюм, образующийся над мишенью (что также изучалось экспериментально — [98, 102, 103]) после воздействия первого импульса (раздел 5 настоящего обзора).
3. Для теоретического описания быстропротекающих процессов воздействия излучения на вещество использовались: МД [123, 127], континуальные методы [82, 117–119, 121, 122] и комбинированные методы [32, 82, 83, 86–89, 92, 93, 113, 114, 116, 120, 124–126, 130] (раздел 6 настоящего обзора). Что касается метода МД и континуальных методов, то им присущи ограничения, о которых говорится в §4.1 настоящего обзора. Из-за этих ограничений точное моделирование абляции невозможно: в указанных работах проводилось моделирование слабых по сравнению с порогом абляции импульсов либо идеализированных систем (таких как система ЛД и абсолютно прозрачная жидкость). К недостаткам (которые в разной степени проявляются в рассмотренных работах) используемых комбинированных методов можно отнести простые (линейные либо константы) зависимости коэффициентов теплопроводности и теплоемкости, поглощение энергии лазерного импульса по закону Бугера–Ламберта–Бера (что также является упрощением), несохранение

полной энергии моделируемой системы. Сохранение полной энергии не гарантируется, например, в работах [32, 93, 113, 125]: в первых двух работах уравнение теплопроводности для свободных электронов не учитывает движение вещества, в последних двух — используется ЕТД-потенциал.

4. Даже в рамках применения аналогичных моделей, между авторами различных работ есть разногласия относительно влияния физических процессов на поведение системы из-за чрезмерно упрощенного моделирования этих процессов. Например, разногласие между работами [89, 92, 93] и [94, 96] (§4.4 настоящего обзора) следует из того, что представление об электронной подсистеме как об идеальном газе является грубым упрощением и не может использоваться для точной количественной оценки результатов воздействия излучения на вещество.



## Глава 1

# Гибридная континуально-атомистическая модель

Исследование взаимодействия лазерного излучения с веществом в настоящее время представляет собой достаточно актуальную задачу. Существуют различные подходы, позволяющие изучать многостадийные лазерно-плазменные процессы в веществе; при этом компьютерное моделирование занимает сейчас одно из главных мест в изучении таких явлений. Использование сложных физических моделей совместно с высокопроизводительными многопроцессорными компьютерами позволяет исследовать отклик вещества на лазерные импульсы и получать результаты, недостижимые ни аналитически, ни экспериментально.

В данной главе будет дано краткое описание уже существующей ГДМ [47, 48], затем будет рассказано о моделировании методом классической МД [49, 50], затем будет представлена **Гибридная континуально-атомистическая модель** (ГиКАМ), объединяющая достоинства этих двух методов моделирования. ГиКАМ представляет собой значительное усовершенствование предложенной в 2003 г. модели Иванова–Жигилея [32].

Параллельный алгоритм моделирования, посредством которого реализована представленная ГиКАМ, приведен в **Приложении А**.

### 1.1. Гидродинамическая модель

Двухтемпературная одножидкостная ГДМ [47, 48] (модель модификации М. Е. Поварницына и др.), сформулированная для нескольких веществ, развивает идеи работы [31]. Для отслеживания границ между веществами исполь-

зуется алгоритм выделения границы высокого порядка аппроксимации [138]. Ниже записаны одномерные уравнения этой модели в форме Эйлера, в которых учитывается поглощение лазерного излучения (в виде источника энергии), электронная теплопроводность и электрон-фононный энергетический обмен:

$$\frac{\partial \varsigma^\alpha}{\partial t} + \frac{\partial(\varsigma^\alpha u)}{\partial x} = \frac{\varsigma^\alpha \bar{K}_S}{K_S^\alpha} \frac{\partial u}{\partial x}, \quad (1.1)$$

$$\frac{\partial(\varsigma^\alpha \rho^\alpha)}{\partial t} + \frac{\partial(\varsigma^\alpha \rho^\alpha u)}{\partial x} = 0, \quad (1.2)$$

$$\frac{\partial(\bar{\rho} u)}{\partial t} + \frac{\partial(\bar{\rho} u^2 + \bar{P})}{\partial x} = 0, \quad (1.3)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \left( \varsigma^\alpha \rho^\alpha \left( \epsilon_e^\alpha + \frac{u^2}{2} \right) \right) + \frac{\partial}{\partial x} \left( \varsigma^\alpha \rho^\alpha u \left( \epsilon_e^\alpha + \frac{u^2}{2} \right) \right) + \frac{\varsigma^\alpha \rho^\alpha}{\bar{\rho}} u \frac{\partial \bar{P}}{\partial x} = \\ = -\bar{P}_e \frac{\varsigma^\alpha \bar{K}_S}{K_S^\alpha} \frac{\partial u}{\partial x} + S^\alpha - \varsigma^\alpha Q_{ei}^\alpha + \frac{\varsigma^\alpha \rho^\alpha c_e^\alpha}{\bar{\rho} \bar{c}_e} \frac{\partial}{\partial x} \left( \bar{\kappa}_e \frac{\partial \bar{T}_e}{\partial x} \right), \end{aligned} \quad (1.4)$$

$$\frac{\partial(\varsigma^\alpha \rho^\alpha \epsilon_i^\alpha)}{\partial t} + \frac{\partial(\varsigma^\alpha \rho^\alpha \epsilon_i^\alpha u)}{\partial x} = -\bar{P}_i \frac{\varsigma^\alpha \bar{K}_S}{K_S^\alpha} \frac{\partial u}{\partial x} + \varsigma^\alpha Q_{ei}^\alpha. \quad (1.5)$$

Здесь  $\varsigma^\alpha$ ,  $K_S^\alpha$ ,  $c_e^\alpha$  и  $\rho^\alpha$  — объемная доля, изоэнтропический модуль упругости, удельная электронная теплоемкость и плотность компоненты  $\alpha$ , соответственно;  $u$  — гидродинамическая скорость (одинаковая для электронов и тяжелых частиц),  $\bar{P} = \bar{P}_e + \bar{P}_i$  — сумма электронного и ионного давлений,  $\bar{\kappa}_e$  — эффективная электронная теплопроводность,  $\bar{T}_e$  — средняя температура электронов,  $\epsilon_e^\alpha$  и  $\epsilon_i^\alpha$  — удельные внутренние энергии электронов и ионов, соответственно;  $S^\alpha$  — источник, описывающий поглощение лазерной энергии,  $Q_{ei}^\alpha$  — слагаемое, отвечающее за электрон-ионный обмен. Объемные доли удовлетворяют условию  $\sum_\alpha \varsigma^\alpha = 1$ , средняя плотность в ячейке с несколькими веществами равна  $\bar{\rho} = \sum_\alpha \varsigma^\alpha \rho^\alpha$ , а эффективная электронная теплоемкость  $\bar{c}_e = \frac{1}{\bar{\rho}} \sum_\alpha \varsigma^\alpha \rho^\alpha c_e^\alpha$ .

Эффективный изоэнтропический модуль сжатия и теплопроводность смеси вычисляются как средние значения индивидуальных свойств различных

компонент:  $1/\bar{K}_S = \sum_{\alpha} \zeta^{\alpha}/K_S^{\alpha}$  и  $\bar{\rho}c_e/\bar{\kappa}_e = \sum_{\alpha} (\zeta^{\alpha}\rho^{\alpha}c_e^{\alpha}/\kappa_e^{\alpha})$ , где  $\kappa_e^{\alpha}$  — электронная теплопроводность компоненты  $\alpha$ . В модели предполагается, что на выбранном временном и пространственном масштабе процесс установления теплового равновесия наступает раньше, чем выравнивается давление. По этой причине уравнение (1.4) расщепляется по физическим процессам, и отдельно решается уравнение электронной теплопроводности с эффективной электронной температурой  $\bar{T}_e$  по неявной численной схеме.

Для моделирования поглощения лазерного излучения в ГДМ задается источник с гауссовым временным профилем. Поглощенная энергия  $S$  в ГДМ вычисляется согласно закону Бугера–Ламберта–Бера [47] (формула (9) **Обзора литературы**) либо путем решения уравнений Гельмгольца для электромагнитного поля [48] (§1.5.4), а ее распределение между различными веществами устанавливается пропорционально их массовым долям:  $S^{\alpha} = S\zeta^{\alpha}\rho^{\alpha}/\bar{\rho}$ .

Для замыкания этой модели используется двухтемпературное уравнение состояния (УрС) для каждого вещества [139, 140]. Этому вопросу частично посвящен раздел 1.3.

## 1.2. Метод молекулярной динамики

При МД-моделировании координаты частиц системы (молекул, атомов или ионов) эволюционируют точно в соответствии с вычисленными значениями энергии или сил межмолекулярных взаимодействий. МД-моделирование позволяет, используя вычислительный алгоритм, определить макроскопические свойства вещества путем усреднения по конфигурациям, генерируемым согласно какой-либо теоретической модели. Результаты МД-моделирования определяются исключительно видом используемой теоретической модели, поэтому необходимо сравнение результатов моделирования с экспериментальными данными. Если экспериментальные данные не соответствуют данным,

полученными в результате МД-моделирования, то они могут указывать на недостатки модели, описывающей поведение частиц.

### 1.2.1. Уравнения движения для систем атомов

Пусть дана система из  $N$  частиц, взаимодействующих между собой посредством потенциала  $U$  вида

$$U = \sum_i u_1(\mathbf{r}_i) + \sum_i \sum_{j>i} u_2(\mathbf{r}_i, \mathbf{r}_j) + \sum_i \sum_{j>i} \sum_{k>j>i} u_3(\mathbf{r}_i, \mathbf{r}_j, \mathbf{r}_k) + \dots \quad (1.6)$$

Здесь первое слагаемое  $\sum_i u_1(\mathbf{r}_i)$  воспроизводит эффект внешнего поля, остальные слагаемые отражают двухчастичные, трехчастичные и т.д. взаимодействия (т.к. они зависят от координат нескольких атомов  $\mathbf{r}_i, \mathbf{r}_j, \mathbf{r}_k$  и т.д.) Уравнения движения таких частиц можно вывести из единой фундаментальной формы уравнений движения механической системы — уравнений Лагранжа:

$$\frac{d}{dt} \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \dot{q}_k} - \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial q_k} = 0, \quad (1.7)$$

где  $\mathcal{L} = \mathcal{L}(\mathbf{q}, \dot{\mathbf{q}}) = K - U$  — функция Лагранжа ( $q_k$  — обобщенные координаты,  $\dot{q}_k$  — их производные по времени),  $K$  — кинетическая энергия:

$$K = \sum_{i=1}^N \sum_{\alpha} p_{i\alpha}^2 / (2m_i),$$

а  $U$  — потенциальная энергия, определенная выражением (1.6). Если координаты атомов в МД  $\mathbf{r}_i$  — декартовы, то уравнение Лагранжа (1.7) можно привести к виду

$$m_i \ddot{\mathbf{r}}_i = \mathbf{f}_i \quad (1.8)$$

(II закон Ньютона), где  $m_i$  — масса  $i$ -го атома, и

$$\mathbf{f}_i = \nabla_{\mathbf{r}_i} \mathcal{L} = -\nabla_{\mathbf{r}_i} U \quad (1.9)$$

— сила, действующая на  $i$ -й атом.

Расчет траекторий частиц включает в себя решение системы  $3N$  дифференциальных уравнений второго порядка — уравнений (1.8).

В МД-системе существуют сохраняющиеся величины. Если функция потенциала  $U$  зависит только от расстояния между частицами и отсутствует воздействие внешних полей (т.е. отсутствует слагаемое  $u_1$  в уравнении (1.6)), то  $U$  и  $\mathcal{L}$  не зависят: 1) от трех координат центра масс всей системы и 2) от трех координат, которые описывают поворот этой системы вокруг ее центра масс. Из первого утверждения следует закон сохранения полного импульса  $\mathbf{p}_{\text{tot}} = \sum_i \mathbf{p}_i$ , а из второго — закон сохранения полного момента импульса системы  $\mathbf{L}_{\text{tot}} = \sum_i \mathbf{r}_i \times \mathbf{p}_i = \sum_i m_i \mathbf{r}_i \times \dot{\mathbf{r}}_i$ .

Если на систему не действуют силы, явно зависящие от времени (или от скорости), то можно говорить о наиболее важном законе сохранения в МД — законе сохранения энергии. Полагая, что  $U$  явно не зависит от времени (т.е.  $\partial U / \partial t = 0$ ), уравнения (1.8) с учетом (1.9) легко привести к виду

$$\frac{d}{dt} (K + U) = 0,$$

т.е. сохраняется полная энергия системы частиц.

### 1.2.2. Точность и устойчивость МД-алгоритмов

Уравнения (1.8) обычно решаются конечно-разностными методами, пошагово: зная координаты молекул, их скорости и другую динамически меняющуюся информацию в момент времени  $t$ , можно получить аналогичные величины в следующий момент времени ( $t + \Delta t$ ) с некоторой степенью точности. Временной шаг  $\Delta t$  должен быть значительно меньше, чем среднее время, затрачиваемое атомом на прохождение среднего межатомного расстояния. Некоторые алгоритмы такого численного интегрирования рассмотрены в [141–144].

В [50] приведен краткий список желаемых характеристик алгоритма МД-моделирования:

- алгоритм должен быть быстрым и умеренным к компьютерным ресурсам;
- алгоритм должен допускать возможность использовать относительно длинный временной шаг  $\Delta t$ ;
- алгоритм должен рассчитывать классическую траекторию частиц настолько точно, насколько это возможно;
- алгоритм должен воспроизводить известные законы сохранения энергии и импульса, он должен быть обратимым по времени;
- алгоритм должен быть прост в оформлении и легок для программирования.

Поскольку обычно в МД вычисление сил отнимает бóльшую часть машинного времени (силы вычисляются на каждом МД-шаге), собственная скорость алгоритма интегрирования слабо влияет на скорость решения МД-задачи. Поэтому важно иметь возможность применять длинный временной шаг, чтобы уменьшить количество шагов при моделировании. Очевидно, чем больше  $\Delta t$ , тем с меньшей точностью решение будет повторять классическую траекторию.

В МД нет необходимости точно восстанавливать классические траектории: во-первых, достаточно точное решение уравнений движения необходимо лишь в течение времени затухания временной корреляционной функции; во-вторых, при моделировании в микроканоническом ансамбле необходимо лишь обеспечить сохранение полной энергии системы. Сохранение энергии

ухудшается по мере увеличения временного шага, и поэтому МД-моделирование представляет собой компромисс между экономией ресурсов и точностью: хороший алгоритм позволяет использовать большой шаг по времени, при котором будет обеспечено приемлемое сохранение энергии. На сохранение энергии могут повлиять характерные скорости частиц — поэтому короткий временной шаг имеет смысл использовать при высоких температурах.

В настоящей диссертационной работе для интегрирования уравнений движения ионов в ГиКАМ используется алгоритм Верле [145], реализованный в виде программного кода на C++, включенного в свободно распространяемый программный комплекс МД-моделирования LAMMPS [146].

### 1.3. УрС алюминия, основанное на модели

#### Томаса-Ферми, и ЕАМ-потенциал Жаховского для алюминия

В ГДМ (раздел 1.1) для моделирования металлов используется полуэмпирическое двухтемпературное многофазное УрС [139], основанное на модели Бушмана [147], которое позволяет замкнуть систему уравнений (1.1)–(1.5).

Ионная часть УрС содержит информацию о фазовых переходах и фазовых границах в системе (плавление, испарение, сублимация), а также о метастабильных состояниях при положительных и отрицательных давлениях. Полуэмпирическое УрС (ПЭ-УрС) обычно включает в себя ряд подгоночных параметров, с помощью вариации которых можно добиться согласия с экспериментальными данными и первопринципными расчетами. Термодинамические параметры и границы раздела фаз системы атомов могут быть получены из МД-моделирования, таким образом получится УрС, основанное на данных МД (МД-УрС).

Для МД-моделирования (раздел 1.2) поведения алюминия и золота под воздействием сильных волн сжатия и разгрузки В. В. Жаховским и его коллегами в работе [148] был разработан новый аналитический потенциал межчастичного взаимодействия в форме ЕАМ (формула (6) **Обзора литературы**), основанный на данных по кривым холодного давления, полученных из теории функционала плотности. При разработке использовались также экспериментальные данные по тройной точке. Для полученного потенциала для алюминия парная часть, функция погружения и функция электронной плотности выглядят, соответственно, следующим образом:

$$U(r) = \left( \frac{1}{x} - a_2 \right) (x - x_c)^{10} ((x - x_c)^6 + a_3 x^6), \text{ здесь } x = a_1 r^2, \quad x_c = a_1 r_c^2,$$

$$E(n) = \frac{b_1 n (b_2 + (b_3 + n)^2)}{1 + b_4 n},$$

$$n(r) = \frac{c_1 (r^2 + r_c^2)^2}{1 + (c_2 r^2)^3},$$

где радиус  $r_c = 0.6875$  нм выбран как радиус обрезания.

Подгоночные параметры  $a_m$ ,  $b_m$ ,  $c_m$  найдены путем минимизации суммы производных компонент тензора холодного давления, полученного с использованием программы ABINIT [95], и экспериментальных свойств алюминия при  $T \rightarrow 0$  К, взятых из [149]. При процедуре подгонки бóльший вес имели экспериментальные точки.

Предложенный В. В. Жаховским потенциал наиболее точно среди многих имеющихся потенциалов воспроизводит экспериментальную кривую плавления алюминия, механические и термодинамические параметры при нормальных условиях, кривую Гюгонио и холодную кривую. Этот потенциал дает хорошее описание свойств алюминия под воздействием экстремально высоких давлений и температур, из-за этого он наилучшим образом подходит для задачи моделирования воздействия лазерного излучения на металл.



Как будет сказано далее, в ГиКАМ (раздел 1.4) для нахождения энергии электронов и их теплоемкости используется упомянутое ПЭ-УрС, а для расчета межйонных сил используется рассмотренный в данном разделе ЕАМ-потенциал. (Таким образом, в ГиКАМ, как и в методе МД, все фазовые переходы однозначно определяются выбранным потенциалом, а электронная часть одинакова и для ГиКАМ, и для ГДМ — она описывается тепловой частью модели Томаса–Ферми [140] в форме  $P_e(\rho, T_e)$ ,  $\epsilon_e(\rho, T_e)$ .) Поскольку и потенциал, и ПЭ-УрС используются в одной модели — ГиКАМ, — то МД-УрС и ПЭ-УрС должны соответствовать друг другу, воспроизводить термодинамические параметры одинаково и приводить к одной и той же фазовой диаграмме. Кроме того, глава 2 целиком посвящена проверке адекватности ГиКАМ путем сравнения результатов расчетов абляции алюминия с аналогичными расчетами согласно давно используемой ГДМ модификации М. Е. Поварницына и др. (раздел 1.1, [47, 48, 121, 122, 150, 151]), и несоответствие ПЭ-УрС и МД-УрС будет искажать картину проверки.

Для проверки согласованности ПЭ-УрС и МД-УрС были рассчитаны изотермы 0, 1000, 3000 и 5000 К при положительных и отрицательных давлениях. Результаты моделирования были нанесены на фазовую диаграмму ПЭ-УрС в координатах плотность–температура (рис. 1.1) и плотность–давление (рис. 1.2). Видно неплохое соответствие между бинодалями, рассчитанными по различным моделям УрС (рис. 1.1). Тем не менее, ПЭ-УрС и МД-УрС дают различные значения параметров в критической точке, значения которых для большинства веществ точно не известны. Критические параметры, соответствующие потенциалу Жаховского, могут быть примерно оценены как  $T_{CP} \approx 8000$  К,  $\rho_{CP} \approx 0.5$  г/см<sup>3</sup> (маркер «○» на бинодали, построенной по потенциалу, рис. 1.1), тогда как параметры критической точки согласно ПЭ-УрС следующие:  $T_{CP} = 6600$  К и  $\rho_{CP} = 0.7$  г/см<sup>3</sup> (маркер «●» на рис. 1.1). В ПЭ-УрС круче наклон кривой плавления и шире сама область плавления

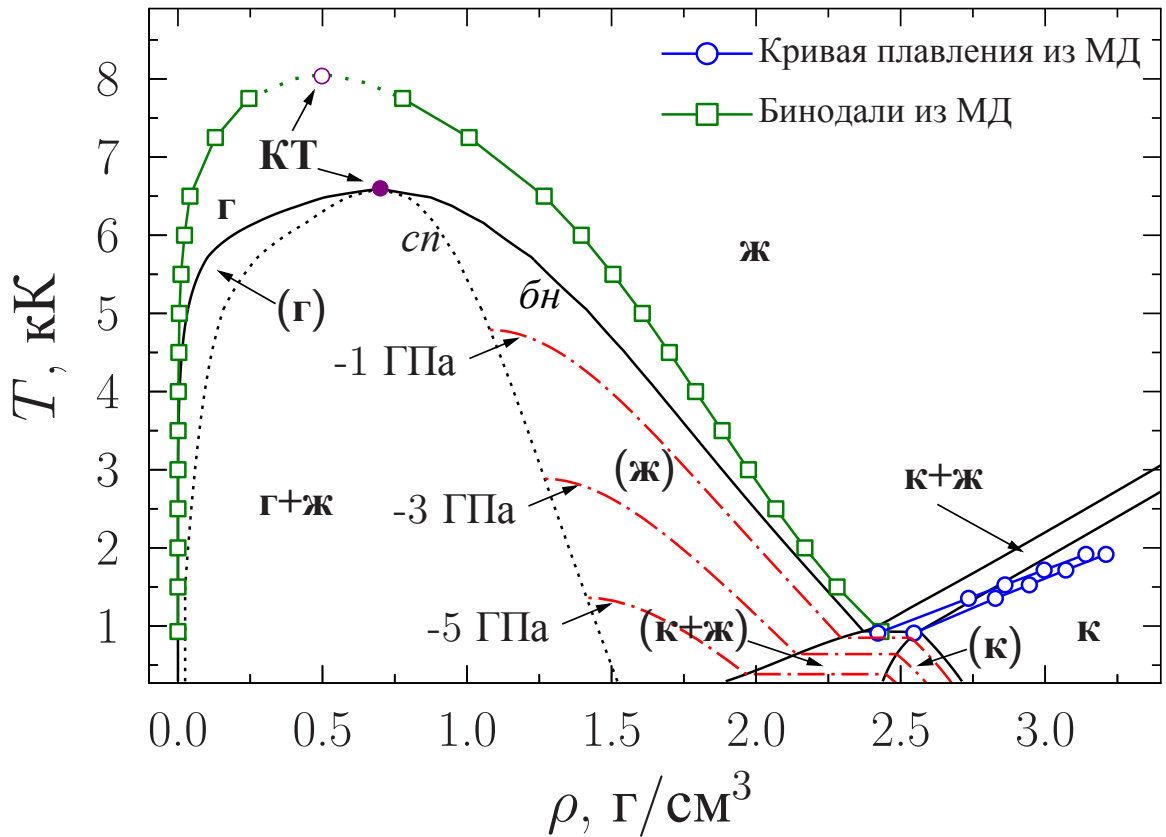


Рис. 1.1. Фазовые диаграммы алюминия в координатах плотность–температура. Фазы в УрС следующие: **г** — стабильный газ, **ж** — стабильная жидкость, **к** — стабильный кристалл, **к+ж** — стабильное плавление, **г+ж** — смесь жидкость–газ, **(г)** — метастабильный газ, **(ж)** — метастабильная жидкость, **(к+ж)** — метастабильное плавление, **(к)** — метастабильный кристалл, **бн** — бинодаль, **сп** — спинодаль, **КТ** — критические точки из ПЭ-УрС (маркер ●) и по ЕАМ-потенциалу Жаховского [148] (маркер ○). Красные штрихпунктирные линии — изобары: −1, −3 и −5 ГПа. Прямые двухфазные МД-расчеты по данным, полученным из личной беседы с В. В. Жаховским (2014 г.): сплошные зеленые кривые с маркерами □ — бинодали по потенциалу Жаховского, сплошные синие кривые с маркерами ○ — область плавления согласно этому потенциалу.

(по сравнению с МД-УрС).

Сравнение ПЭ-УрС и МД-УрС в координатах плотность–давление представлено на рис. 1.2. Можно заметить, что холодные кривые  $T = 0$  К из ПЭ-УрС и по потенциалу Жаховского очень хорошо согласуются, а также совпадают с данными, полученными с использованием метода FP-LMTO [152].

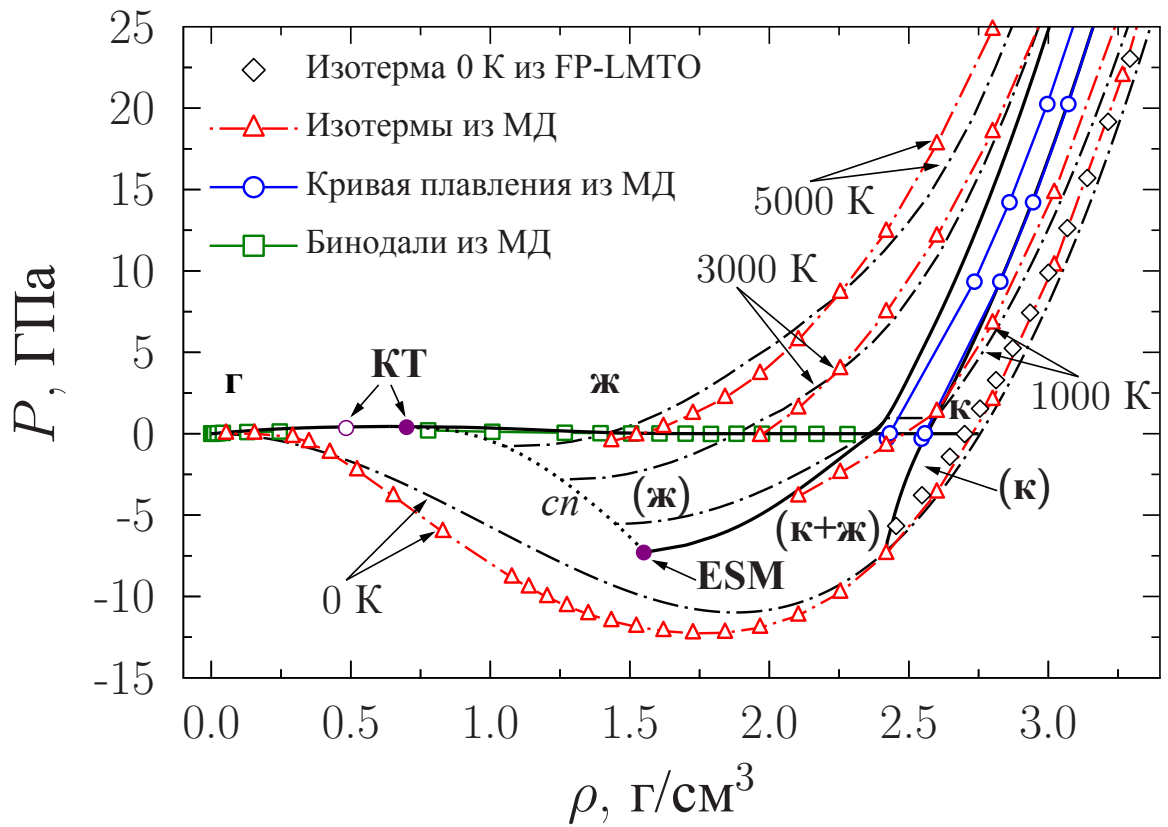


Рис. 1.2. Фазовая диаграмма алюминия в координатах плотность–давление. Обозначения фазовых состояний, спинодали и критической точки — те же, что и на рис. 1.1. Черные штрихпунктирные линии — изотермы по УрС: 0, 1000, 3000 и 5000 К. Сплошные зеленые кривые с маркерами  $\square$  — бинодали по потенциалу Жаховского [148], сплошные синие кривые с маркерами  $\circ$  ограничивают область плавления согласно этому потенциалу. Красные штрихпунктирные кривые с маркерами  $\triangle$  — изотермы согласно этому потенциалу: 0, 1000, 3000 и 5000 К. Маркерами  $\diamond$  показаны результаты моделирования FP-LMTO [152].

Такое соответствие означает, что можно ожидать сходную максимальную прочность вещества при отрицательных давлениях и экстремально высоких скоростях деформации ( $\sim 10^9 \text{ с}^{-1}$ ), которые достижимы в фемтосекундных лазерных экспериментах, что важно для корректного воспроизведения динамики разрушения под воздействием излучения такого лазера. Как было показано [153], напряжения, вызывающие откол, в экспериментах по фемтосекундной лазерной абляции могут быть близки к теоретическому пределу. Другие изотермы (для 1000, 3000 и 5000 К) в ПЭ-УрС и МД-УрС также

достаточно близки друг к другу (рис. 1.2).

Фазовые переходы при отрицательном давлении до сих пор недостаточно изучены. Например, один из возможных сценариев метастабильного плавления при  $T \rightarrow 0$  предложен в [154], когда кривая плавления может достигнуть холодной кривой. Другая возможность реализована, когда кривая кристаллизации впервые достигает спинодали жидкости (при  $T > 0$ ). Ниже этой точки, называемой также ESM (Exploded Spinodal Melting, взрывное спиноподальное плавление) [155] (рис. 1.2), жидкость абсолютно неустойчива и в связи с этим плавление кристалла невозможно в термодинамическом смысле. Вместо этого может реализоваться необратимое состояние кристалл–газ (сублимация). В ПЭ-УрС реализован этот второй сценарий ESM.

Как показано в [156], при сверхбыстром нагреве кристалла перегрев может достигать 20% температуры плавления. Выше этой температуры начинается спонтанное гомогенное плавление. В ГДМ этот процесс не учитывается, и плавление рассматривается как мгновенный процесс, т.к. фемтосекундный импульс вызывает нагрев и плавление в толще мишени еще до того, как начинается движение вещества. Также не учитывается испарение со свободной поверхности из-за того, что вклад этого эффекта в формирование кратера в фемтосекундном режиме пренебрежимо мал [120].

Для рассмотрения с помощью ГДМ фемтосекундных процессов абляции, сопровождающихся быстрым расширением и фрагментацией вещества в зоне интенсивного нагрева, необходима дополнительная кинетическая модель нуклеации в метастабильной жидкой фазе.

## 1.4. Метод для моделирования сверхбыстрого лазерного нагрева металлов

Поскольку настоящая диссертационная работа в основном посвящена моделированию поведения металла под воздействием лазерного импульса, автором был выбран метод, который учитывает особенности сверхбыстрого нагрева металлов фемтосекундным импульсом, что впоследствии привело к созданию ГиКАМ.

В металлах лазерное излучение поглощается электронами в зоне проводимости. Поглощенная энергия быстро, в течение фемтосекунд, перераспределяется между электронами, затем, более медленно, передается кристаллической решетке, вызывая колебания ионов. Дальнейший процесс контролируется сильным электрон-фононным взаимодействием и протекает в течение времени от нескольких пикосекунд до нескольких десятков пикосекунд. Наконец, между электронами и фононами устанавливается тепловое равновесие, и поток тепла с поверхности вглубь облучаемой мишени может быть описан как обычный процесс тепловой диффузии. Если характерная длительность лазерного импульса сравнима или меньше времени, требуемого для установления электрон-фононного равновесия, то такой импульс приводит вещество в сильно неравновесное состояние, в котором электроны и кристаллическая решетка имеют различные температуры.

В рамках модели [32], предложенной Д. С. Ивановым и Л. В. Жигилеем, эволюция температуры электронов может быть описана уравнением (7), а поведение ионов моделируется уравнением (8) (§4.2 **Обзора литературы**). Модель Иванова–Жигилея интересна следующими особенностями:

1. В этой модели объединены достоинства двух методов: метода классической МД (раздел 1.2) и двухтемпературной модели с теплопроводно-

стью (раздел 1 **Обзора литературы**).

2. Поглощение излучения лазера учитывается согласно закону Бугера–Ламберта–Бера (формула (9) **Обзора литературы**).
3. Коэффициенты электронной теплопроводности, электронной теплоемкости и электрон-фононного взаимодействия имеют простые (линейные) зависимости от температуры либо являются константами.

Этого достаточно, чтобы промоделировать абляцию в никеле, алюминии или золоте под воздействием лазерного излучения с интенсивностью, слабо превышающей порог абляции, и визуализировать динамику такой абляции.

Автором настоящей диссертационной работы было проведено моделирование воздействия лазерного импульса на никелевую мишень с применением модели Иванова–Жигилея и с последующим сравнением полученной динамики электронной и ионной температур с ГДМ. Параметры постановки задачи были взяты из [32]: моделировалось воздействие лазерного импульса на никелевую пленку толщиной 50 нм. Для этого использовалась МД-ячейка в виде прямоугольного параллелепипеда размером  $3.53 \times 3.53 \times 50.14$  нм, содержащая 56800 атомов, расположенных в узлах ГЦК-решетки. На ячейку накладывались периодические граничные условия по двум направлениям, вдоль которых размер ячейки был 3.53 нм. Интегральная плотность поглощенной энергии от лазерного импульса  $F_{\text{abs}} = (1 - R)F = 0.043$  Дж/см<sup>2</sup> ( $R$  — коэффициент отражения излучения от поверхности металла), характерная длительность импульса — 200 пс. Транспортные свойства никеля также были взяты из [32]: электронная теплоемкость  $c_e = \alpha T_e$  с  $\alpha = 1065$  Дж/(м<sup>3</sup>·К<sup>2</sup>), электронная теплопроводность  $\kappa_e = \kappa_0 T_e / T_i$  с  $\kappa_0 = 91$  Вт/(м·К), коэффициент электрон-фононного взаимодействия  $\gamma = 3.6 \times 10^{17}$  Вт/(м<sup>3</sup>·К). При моделировании максимум интенсивности импульса приходился на момент времени 2 пс.

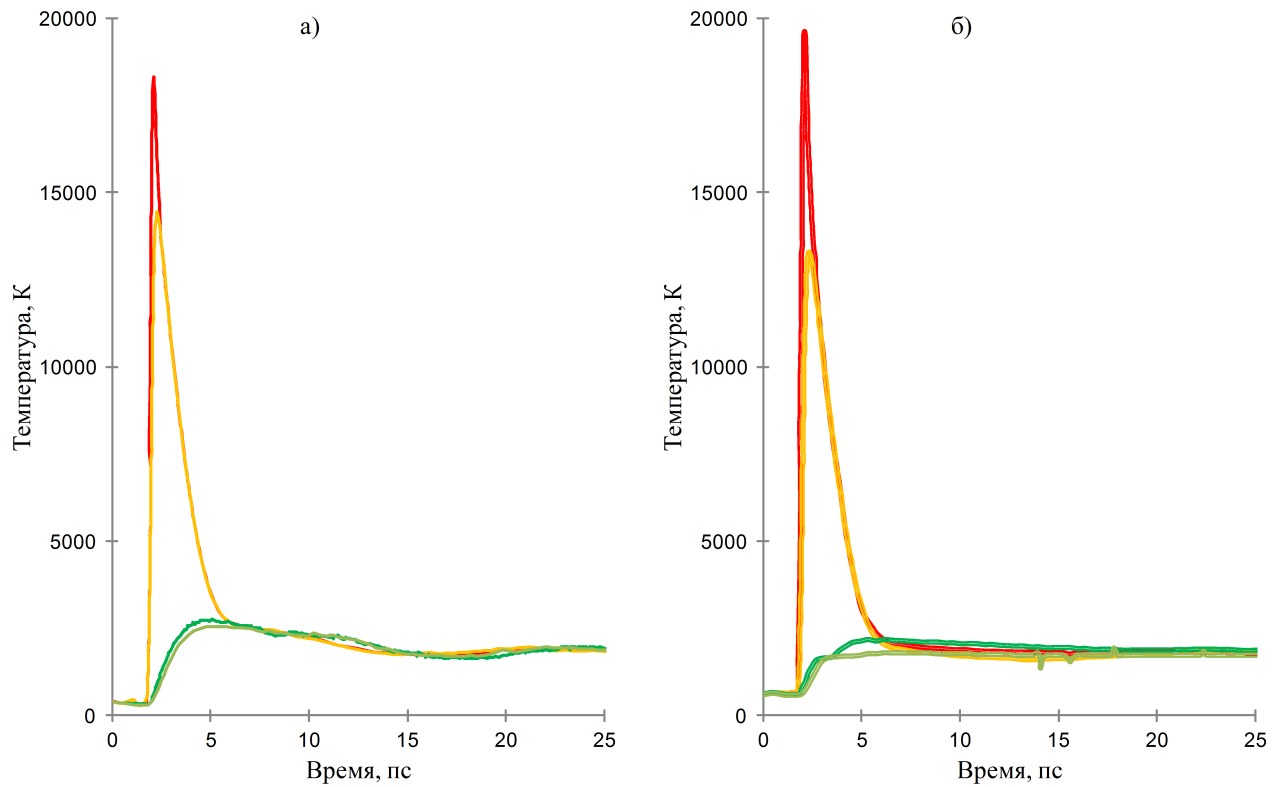


Рис. 1.3. Временные зависимости температуры электронов (красная кривая — с облучаемой стороны мишени, оранжевая — с ее обратной стороны) и ионов (темно-зеленая кривая — с облучаемой стороны мишени, светло-зеленая — с ее обратной стороны) в никелевой пленке после прохождения одиночного лазерного импульса с интегральной плотностью поглощенной энергии  $F_{\text{abs}} = 0.043$  Дж/см<sup>2</sup>, рассчитанные с применением: а) модели Иванова–Жигиля, б) ГДМ. Максимум интенсивности импульса приходится на момент времени 2 пс.

Для расчета сил при решении уравнения для ионов модели Иванова–Жигиля использовался ЕАМ-потенциал для никеля [157].

На рис. 1.3 (а) приведены результаты такого моделирования: показаны временные зависимости электронной и ионной температуры с облучаемой и противоположной стороны мишени, рассчитанные с применением модели Иванова–Жигиля; а на рис. 1.3 (б) для сравнения приведены аналогичные временные зависимости, рассчитанные с применением ГДМ. Также анализировались профили электронной и ионной температур для различных моментов времени по моделям Иванова–Жигиля и ГДМ. Качественно профили

соответствовали друг другу, хотя ГДМ дает больший градиент электронной температуры на начальном этапе лазерного нагрева, а после релаксации, согласно расчетам с ГДМ, в образце достигается меньшая температура, чем по модели Иванова–Жигилея. Такие различия возникают из-за того, что свойства никеля (теплоемкость, теплопроводность и т. д.), рассчитываемые по используемому потенциалу [157], не соответствуют аналогичным свойствам, получаемым из полуэмпирических моделей, которые применялись в ГДМ.

В ходе разработки новой версии модели — ГиКАМ, — за основу была взята модель Иванова–Жигилея, которая была существенно усовершенствована (ср. с особенностями модели Иванова–Жигилея, перечень которых приведен на стр. 61):

1. Для электронов решается не уравнение теплопроводности, а уравнение энергии, которое учитывает перенос электронов вместе с ионами (§1.5.2), при этом учитывается связь между энергией электронов и их температурой  $\epsilon_e(\rho, T_e)$  согласно тепловой части ПЭ-УрС, основанного на модели Томаса–Ферми (раздел 1.3). Эволюция ионной подсистемы по-прежнему описывается уравнениями, предложенными Д. С. Ивановым и Л. В. Жигилеем (формула (8) **Обзора литературы**).
2. Поглощение лазерного излучения моделируется путем решения уравнений Гельмгольца для электромагнитного поля (§1.5.4), что позволяет рассчитать воздействие импульса с интенсивностью, во много раз превышающей порог абляции, а также становится возможным выполнить расчет воздействия двойного импульса на мишень (чему целиком посвящена глава 3). Надо отметить, что закон Бугера–Ламберта–Бера неприменим в случае двойного импульса (и, как следствие, неприменимо поглощение в виде (9) из **Обзора литературы**), так как после прохождения первого импульса профиль плотности вещества становится



ся сложным.

3. Коэффициенты электронной теплопроводности  $\kappa_e(\rho, T_i, T_e)$  и электрон-фононного взаимодействия  $\gamma(\rho, T_i, T_e)$  моделируются с использованием широкодиапазонных моделей (§1.5.3), а электронная теплоемкость  $c_e(\rho, T_e)$  вычисляется по ПЭ-УрС (раздел 1.3).

## 1.5. Описание ГиКАМ

В настоящей диссертационной работе изучается взаимодействие лазерного излучения с веществом с помощью новой версии гибридной модели — ГиКАМ. В этой модели вещество состоит из двух подсистем — ионной и электронной. Ионная подсистема состоит из частиц, взаимодействующих между собой. Межчастичное взаимодействие описывается ЕАМ-потенциалом (раздел 1.3). Электронная подсистема моделируется в рамках континуального подхода, представляющего электроны как сплошную среду (жидкость), у которой есть такие характеристики, как температура, теплоемкость, теплопроводность и коэффициент электрон-ионного обмена. Электронная жидкость движется вместе с ионами со скоростью их коллективного движения (мгновенная подстройка). Для полной системы выполняется условие квазинейтральности.

Исследуемое вещество расположено в области в виде прямоугольного параллелепипеда (рис. 1.4), для которого

$$0 \leq x \leq L_x, 0 \leq y \leq L_y, L_{\text{left}} < z < L_{\text{right}}. \quad (1.10)$$

Параллелепипед вытянут по оси  $z$ , на боковых гранях ( $x = 0, x = L_x, y = 0, y = L_y$ ) задаются периодические граничные условия. Излучение распространяется в плоскости  $x - z$  и падает под углом  $\theta$  к нормали поверхности вещества, так что  $\mathbf{k}_L = (\omega_L/c) (\sin \theta, 0, \cos \theta)$ . Чтобы в процессе разлета вдоль

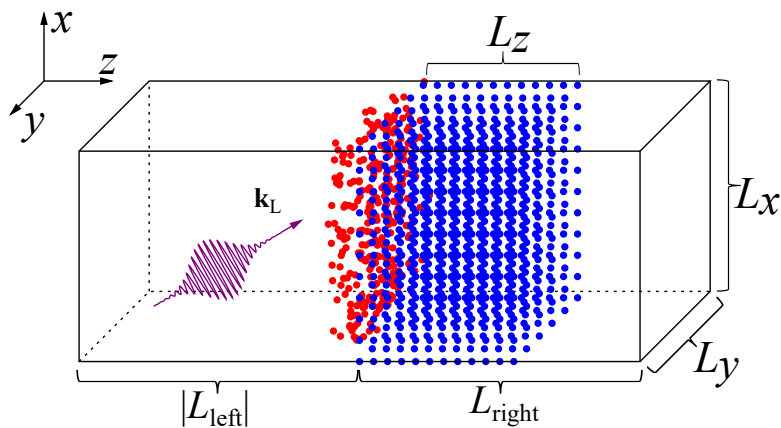


Рис. 1.4. Пространственное расположение мишени и воздействие лазерного импульса.

оси  $z$  атомы не достигали границ, грани  $z = L_{\text{left}}$  и  $z = L_{\text{right}}$  выбираются удаленными от области начальной локализации вещества (рис. 1.4):

$$0 \leq z \leq L_z, \quad (1.11)$$

где  $z = 0$  и  $z = L_z$  — соответственно, левая и правая границы вещества в начале моделирования ( $L_z$  — начальная толщина мишени), причем  $L_{\text{left}} \ll 0$ ,  $L_{\text{right}} \gg L_z$ . На гранях  $z = L_{\text{left}}$  и  $z = L_{\text{right}}$  используются условия свободных границ.

Для моделирования электронной жидкости вводится равномерная одномерная пространственная сетка по оси  $z$  во всей области моделирования. Ячейки этой сетки нумеруются  $1, 2, \dots, (j-1), j, (j+1), \dots, M$  (всего  $M$  ячеек), каждая из ячеек имеет объем  $V$ . Таким образом, в каждой  $j$ -й ячейке сетки находится как электронная жидкость с температурой  $(T_e)_j$ , так и ионы, количество которых  $N_j \geq 0$ .

### 1.5.1. Ионная подсистема

Для каждого иона можно записать уравнение движения в виде

$$m_i \frac{d^2 \mathbf{r}_i}{dt^2} = \mathbf{f}_i + \xi_i m_i \mathbf{v}_i^T, \quad (1.12)$$

где  $m_i$  — масса  $i$ -го иона,  $\mathbf{r}_i$  — радиус-вектор его положения,  $t$  — время,  $\mathbf{f}_i$  — сила, действующая на этот ион со стороны остальных ионов,  $\xi_i$  — коэффициент трения, характеризующий влияние электронной жидкости на  $i$ -й ион,  $\mathbf{v}_i^T$  — его тепловая скорость (скорость в системе отсчета, связанной с центром масс ионов, окружающих рассматриваемый  $i$ -й ион). Пусть объем  $V$  мал по сравнению с размером моделируемой системы, но его характерный размер больше среднего межионного расстояния. Если в объеме  $V$  помещается много частиц  $N \gg 1$ , то внутри этого объема можно определить тепловую скорость  $i$ -го иона

$$\mathbf{v}_i^T = \mathbf{v}_i - \mathbf{v}^c. \quad (1.13)$$

Здесь  $\mathbf{v}_i = (u_i, v_i, w_i)$  — скорость иона относительно неподвижной системы координат,  $\mathbf{v}^c = (u^c, v^c, w^c)$  — скорость центра масс вещества внутри объема  $V$ , которая вычисляется с помощью известной формулы

$$\mathbf{v}^c = \frac{\sum_{i=1}^N (m_i \mathbf{v}_i)}{\sum_{i=1}^N m_i}. \quad (1.14)$$

В работе Д. С. Иванова и Л. В. Жигилея [32] показано, что коэффициент  $\xi_i$  отвечает за процесс выравнивания температур электронной  $T_e$  и ионной  $T_i$  подсистем. В предположении об установившемся максвелловском распределении частиц по скоростям, температура ионов внутри объема  $V$  вычисляется как мера средней кинетической энергии, приходящейся на один ион:

$$T_i = \frac{1}{3k_B N} \sum_{i=1}^N m_i (\mathbf{v}_i^T)^2. \quad (1.15)$$

Для всех ионов внутри этого объема коэффициент  $\xi_i$  одинаков [32]:

$$\xi_i \equiv \xi_V = \frac{\gamma V (T_e - T_i)}{\sum_{i=1}^N m_i (\mathbf{v}_i^T)^2} = \frac{\gamma V (T_e - T_i)}{3k_B N T_i}, \quad (1.16)$$

где  $\gamma(\rho, T_i, T_e)$  — коэффициент электрон-ионного обмена, а

$$\rho = \frac{1}{V} \sum_{i=1}^N m_i \quad (1.17)$$

— плотность вещества в ячейке сетки.

Численное интегрирование уравнений (1.12) производится согласно алгоритму Верле [145].

### 1.5.2. Электронная подсистема

Для электронной жидкости решается одномерное (поскольку  $L_z \gg L_x$  и  $L_z \gg L_y$ ) по  $z$  уравнение энергии

$$\frac{\partial(\rho\epsilon_e)}{\partial t} + \frac{\partial(\rho w\epsilon_e)}{\partial z} = \frac{\partial}{\partial z} \left( \kappa_e \frac{\partial T_e}{\partial z} \right) - \gamma(T_e - T_i) + S, \quad (1.18)$$

где  $\epsilon_e$  — удельная энергия свободных электронов,  $\kappa_e(\rho, T_i, T_e)$  — коэффициент электронной теплопроводности,  $S(z, t)$  — объемный энерговклад (плотность мощности) от лазерного излучения,  $w$  — скорость в направлении оси  $z$ . Уравнение (1.18) расщепляется по физическим процессам, связанным с макроскопическими и микроскопическими эффектами:

$$\frac{\partial(\rho\epsilon_e)}{\partial t} = -\gamma(T_e - T_i) + S, \quad (1.19)$$

$$\frac{\partial(\rho\epsilon_e)}{\partial t} + \frac{\partial(\rho w\epsilon_e)}{\partial z} = 0, \quad (1.20)$$

$$\frac{\partial(\rho\epsilon_e)}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left( \kappa_e \frac{\partial T_e}{\partial z} \right). \quad (1.21)$$

Уравнение (1.19) описывает изменение энергии электронов из-за обмена с ионами и поглощения лазерной энергии, и не связано с макроскопическим движением вещества. Решение этого уравнения производится по явной разностной схеме (индекс «e» у энергии электронов опущен):

$$\rho_j \frac{\epsilon_j' - \epsilon_j^n}{\Delta t} = -\gamma_j^n ((T_e)_j^n - (T_i)_j^n) + S_j^n. \quad (1.22)$$

Поскольку вещество рассматривается в приближении полной нейтральности (и атом, и его электроны, включая свободные, движутся как одно целое), то можно записать уравнение изменения энергии свободных электронов (1.20) в следующем разностном виде:

$$N_j^* \epsilon_j^* = N_j^n \epsilon_j' + N_{j-1/2}^+ \epsilon_{j-1}' - N_{j-1/2}^- \epsilon_j' - N_{j+1/2}^+ \epsilon_j' + N_{j+1/2}^- \epsilon_{j+1}', \quad (1.23)$$

где  $N_j^n$  — число ионов в ячейке с номером  $j$  до интегрирования перемещения ионов,  $N_j^*$  — число ионов в ячейке с номером  $j$  после интегрирования,  $N_{j-1/2}^+$  — число ионов, перетекающих через границу  $(j - 1/2)$  из ячейки  $(j - 1)$  в ячейку  $j$ ,  $N_{j-1/2}^-$  — число ионов, перетекающих через границу  $(j - 1/2)$  из ячейки  $j$  в ячейку  $(j - 1)$ ,  $N_{j+1/2}^+$  — число ионов, перетекающих через границу  $(j + 1/2)$  из ячейки  $j$  в ячейку  $(j + 1)$ ,  $N_{j+1/2}^-$  — число ионов, перетекающих через границу  $(j + 1/2)$  из ячейки  $(j + 1)$  в ячейку  $j$  (рис. 1.5). Очевидно, что  $N_j^* = N_j^n + N_{j-1/2}^+ - N_{j-1/2}^- - N_{j+1/2}^+ + N_{j+1/2}^-$ . После шага интегрирования уравнения (1.12) плотность вещества в ячейке становится равной  $\rho_j^* = m_i N_j^* / V$ .

Уравнение (1.21) преобразуется к виду

$$\rho_{c_e} \frac{\partial T_e}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left( \kappa_e \frac{\partial T_e}{\partial z} \right), \quad (1.24)$$

а затем оно решается по неявной разностной схеме, методом прогонки [144]. Временной шаг  $\Delta t$  решения уравнений (1.22) и (1.24) выбирается равным временному шагу  $\Delta t_{\text{МД}}$  МД-интегрирования траекторий ионов (система уравнений (1.12)), и его величина перед каждым шагом интегрирования рассчитывается согласно критериям, описанным в §1.5.5.

### 1.5.3. Широкодиапазонные модели для расчета оптических и транспортных свойств металлов

Широкодиапазонные модели, пригодные для расчета диэлектрической проницаемости, коэффициентов электронной теплопроводности и электрон-

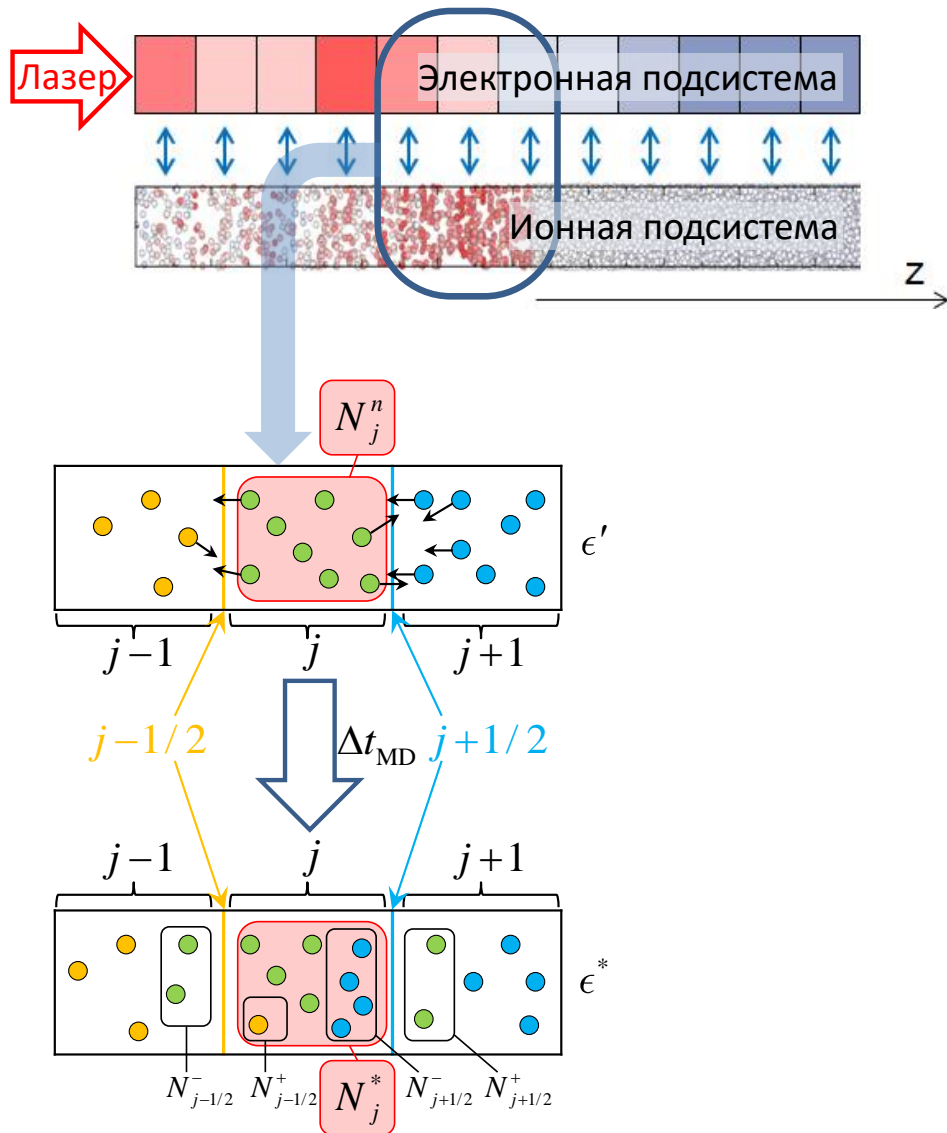


Рис. 1.5. Численное решение уравнения изменения энергии свободных электронов (1.20) в разностном виде (1.23). Введена одномерная пространственная сетка по оси  $z$ , и ионы перемещаются между ячейками такой сетки вместе с электронами. Показаны три ячейки сетки с номерами  $(j - 1)$ ,  $j$  и  $(j + 1)$  до и после интегрирования уравнений движения ионов (1.12) (при этом энергия электронов в каждой ячейке изменяется от значения  $\epsilon'$  до значения  $\epsilon^*$ , индексы номеров ячеек опущены). Черными стрелками показаны направления движения ионов через границы ячеек  $(j - 1/2)$  и  $(j + 1/2)$  (границы выделены, соответственно, оранжевым и голубым цветами). Цвет ионов после их перемещения сохраняется. Обозначения количества переместившихся через границы ячеек ионов  $N_{j-1/2}^-$ ,  $N_{j-1/2}^+$ ,  $N_{j+1/2}^-$  и  $N_{j+1/2}^+$ , а также общего их количества в ячейке  $N_j^n$  и  $N_j^*$ , соответствуют обозначениям к формуле (1.23).

фононного обмена, были описаны в работе М. Е. Поварницына и др. [48].

В металлах электроны в зоне проводимости рассматриваются как сплошная среда. В этих условиях свойства вещества могут быть описаны моделью Друде с температурой ниже температуры Ферми  $T_F$ . В некоторых металлах вклад межзонных переходов в диэлектрическую проницаемость  $\varepsilon_{\text{bb}}$  может оказаться доминирующим [158]. Металлическая часть  $\varepsilon_{\text{met}}$  при этом является суммой вклада внутризонного и межзонного Друде-подобного члена:

$$\varepsilon_{\text{met}}(\omega_L, \rho, T_i, T_e) = \varepsilon_{\text{bb}} + 1 - \frac{n_e}{n_{\text{cr}}(1 + i\nu_{\text{eff},p}/\omega_L)},$$

где  $n_e$  — концентрация электронов,  $n_{\text{cr}}$  — их критическая концентрация,  $\omega_L$  — частота излучения лазера. Эффективная частота соударений равна  $\nu_{\text{eff},p} = \min\{\nu_{\text{met},p}, \nu_{\text{max},p}\}$ .

Частота столкновений в металлическом состоянии складывается из электрон-фононного и электрон-электронного взаимодействий:

$$\nu_{\text{met},p} = A_1^p k_B T_i / \hbar + A_2^p k_B T_e^2 / (T_F \hbar). \quad (1.25)$$

Максимальная частота соударений соответствует свободному движению электронов между ионами (межионное расстояние  $r_{\text{int}}$ ), поэтому

$$\nu_{\text{max},p} = A_3^p \frac{\sqrt{\nu_F^2 + k_B T_e / m_e}}{r_{\text{int}}}. \quad (1.26)$$

При высоких температурах электронов ( $T_e \gg T_F$ ) плазменная модель представима следующим образом:

$$\varepsilon_{\text{pl}}(\omega_L, \rho, T_e) = 1 - \frac{n_e}{n_{\text{cr}}} \left( K_1(\xi) - i \frac{\nu_{\text{pl}}}{\omega_L} K_2(\xi) \right).$$

Здесь функции  $K_1(\xi)$ ,  $K_2(\xi)$ , где  $\xi = 3\sqrt{\pi}\nu_{\text{pl}}/(4\omega_L)$ , описаны в [159]. Выражение для плазменной частоты имеет форму:

$$\nu_{\text{pl}} = \frac{4}{3} \sqrt{2\pi} \frac{Z n_e e^4 \Lambda}{\sqrt{m_e} (k_B T_e)^{3/2}},$$

где  $Z$  — средний заряд ионов,  $\Lambda$  — кулоновский логарифм.

Полагается, что переход металл-плазма происходит в окрестности температуры Ферми, и, таким образом, можно произвести сшивку между этими двумя состояниями и получить широкодиапазонную модель диэлектрической проницаемости  $\varepsilon(\omega_L, \rho, T_i, T_e)$ , которая может быть записана следующим образом:

$$\varepsilon = \varepsilon_{\text{pl}} + (\varepsilon_{\text{met}} - \varepsilon_{\text{pl}})e^{-A_4^p T_e/T_F}. \quad (1.27)$$

Электронная теплопроводность в металле вычисляется согласно формализму Друде следующим образом:

$$\kappa_{\text{met}} = \frac{\pi^2 k_B^2 n_e}{3m_e \nu_{\text{eff},t}} T_e, \quad (1.28)$$

а предел для горячей плазмы:

$$\kappa_{\text{pl}} = \frac{16\sqrt{2}k_B(k_B T_e)^{5/2}}{\pi^{3/2} Z e^4 \sqrt{m_e} \Lambda}. \quad (1.29)$$

Сшивка условий (1.28) и (1.29) дает широкодиапазонное выражение для теплопроводности:

$$\kappa_e = \kappa_{\text{pl}} + (\kappa_{\text{met}} - \kappa_{\text{pl}})e^{-A_4^t T_e/T_F}. \quad (1.30)$$

Соответствующая эффективная частота имеет форму  $\nu_{\text{eff},t} = \min\{\nu_{\text{met},t}, \nu_{\text{max},t}\}$ . Выражения для  $\nu_{\text{met},t}$  и  $\nu_{\text{max},t}$  аналогичны (1.25) и (1.26).

Значения коэффициентов  $A_1$ ,  $A_2$ ,  $A_3$  и  $A_4$  и теоретическое обоснование выбранных значений приведены в [48].

Наконец, коэффициент электрон-фононного взаимодействия можно представить следующим образом:

$$\gamma = \frac{3k_B m_e}{m_i} n_e \nu_{\text{eff},g}, \quad (1.31)$$

где  $\nu_{\text{eff},g} = \min\{\nu_{\text{met},g}, \nu_{\text{max},g}, \nu_{\text{pl}}\}$ .



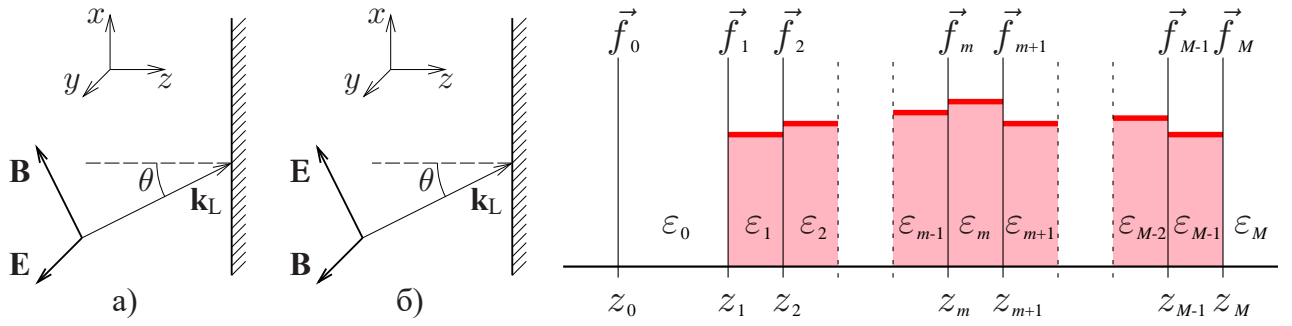


Рис. 1.6. Пространственное расположение мишени и векторов электрического и магнитного полей падающего излучения для случая: а)  $s$ -поляризации и б)  $p$ -поляризации.

Рис. 1.7. Пространственная сетка на профиле диэлектрической проницаемости.

#### 1.5.4. Расчет поглощения излучения

Поглощение лазерного излучения и его частичное отражение может быть рассчитано для произвольного профиля высокочастотной диэлектрической проницаемости методами классической электродинамики. Диэлектрическая проницаемость — это функция термодинамических параметров, распределение которых в веществе может быть получено в ходе расчетов. Используемые в данной работе модели (ГДМ и ГиКАМ) позволяют получить значения всех термодинамических параметров даже в случаях сильно неравновесного состояния.

Данная модель поглощения излучения была разработана и более подробно описана в [150].

В одномерном приближении диэлектрическая проницаемость зависит лишь от координаты  $z$  (ось  $z$  направлена нормально к свободной поверхности), т.е.  $\varepsilon = \varepsilon(z)$  и  $\varepsilon(z \rightarrow -\infty) = 1$ . Для  $s$ -поляризации излучения можно записать  $\tilde{\mathbf{E}} = \text{Re}(\mathbf{E}e^{-i\omega_L t + ik_L x \sin \Theta})$ ,  $\mathbf{E} = (0, E_y, 0)$ ,  $\mathbf{k}_L = (\omega_L/c)(\sin \Theta, 0, \cos \Theta)$ . Здесь  $\omega_L$  — частота излучения,  $\Theta$  — угол падения излучения (рис. 1.6). Для одной компоненты  $E_y(z, t)$  огибающей электрического поля, медленно меня-

ющего со временем, можно записать уравнение Гельмгольца:

$$\frac{\partial^2 E_y}{\partial z^2} + k_L^2 (\varepsilon(z) + \sin^2 \Theta) E_y = 0. \quad (1.32)$$

Для  $p$ -поляризации одна компонента  $B_y(z, t)$  огибающей магнитного поля  $\mathbf{B} = (0, B_y, 0)$  подчиняется следующему уравнению Гельмгольца:

$$\frac{\partial^2 B_y}{\partial z^2} + k_L^2 (\varepsilon(z) - \sin^2 \Theta) B_y - \frac{\partial \ln \varepsilon(z)}{\partial z} \frac{\partial B_y}{\partial z} = 0. \quad (1.33)$$

Для расчета поглощения рассматривается кусочно-гладкое приближение функции, описывающее сложную диэлектрическую проницаемость вещества, занимающего область  $z_1 \leq z \leq z_M$  (рис. 1.7). Фронтальная и задняя поверхности вещества расположены в точках с координатами  $z = z_1$  и  $z = z_M$ , соответственно. Электромагнитная волна падает слева направо, ее амплитуда и фаза известна при  $z = z_0$ . В этом приближении в любой области  $z_m \leq z \leq z_{m+1}$ , где  $m = 0, \dots, (M - 1)$ , уравнения (1.32) и (1.33) записываются одинаково:

$$\mathfrak{F}_m(z) = f_m^{(+)} e^{ik_m(z-z_m)} + f_m^{(-)} e^{-ik_m(z-z_m)}, \quad (1.34)$$

здесь  $\mathfrak{F} = E_y$  либо  $\mathfrak{F} = B_y$  в случае  $s$ - и  $p$ -поляризации электромагнитной волны, соответственно;  $f_m^{(+)}$  и  $f_m^{(-)}$  — амплитуды волн, распространяющихся слева направо и справа налево, соответственно, в точке  $z = z_m$ ;  $k_m = k_L \sqrt{\varepsilon_m - \sin^2 \Theta}$ , где  $k_L = \omega_L/c$ . При расчетах полагается, что диэлектрическая проницаемость постоянна: в ячейке сетки  $z_m \leq z \leq z_{m+1}$   $\varepsilon(z) = \varepsilon_m$ .

Принимая во внимание непрерывность тангенциальных составляющих полей и скачка первой производной для  $p$ -поляризации, можно записать:

$$\mathfrak{F}_m(z_{m+1}) = \mathfrak{F}_{m+1}(z_{m+1}), \quad (1.35)$$

$$(\partial \mathfrak{F}_m / \partial z)|_{z_{m+1}} = D_m (\partial \mathfrak{F}_{m+1} / \partial z)|_{z_{m+1}}, \quad (1.36)$$

здесь

$$D_m = \begin{cases} 1 & \text{в случае } s\text{-поляризации,} \\ \varepsilon_m / \varepsilon_{m+1} & \text{в случае } p\text{-поляризации.} \end{cases}$$

Обозначим фазу  $\psi_m = k_m(z_{m+1} - z_m)$ , и перепишем условия (1.35) и (1.36)

в виде:

$$\begin{aligned} f_m^{(+)} e^{i\psi_m} + f_m^{(-)} e^{-i\psi_m} &= f_{m+1}^{(+)} + f_{m+1}^{(-)}, \\ f_m^{(+)} e^{i\psi_m} - f_m^{(-)} e^{-i\psi_m} &= \frac{k_{m+1}}{k_m} D_m (f_{m+1}^{(+)} - f_{m+1}^{(-)}). \end{aligned}$$

В векторной форме это эквивалентно уравнению:

$$C_{m+1} \vec{f}_{m+1} = \mathfrak{P}_m \vec{f}_m, \quad (1.37)$$

где

$$\begin{aligned} \vec{f}_m &= \begin{pmatrix} f_m^{(+)} \\ f_m^{(-)} \end{pmatrix}, \\ C_{m+1} &= \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ d_{m+1} & -d_{m+1} \end{pmatrix}, \end{aligned}$$

здесь  $d_{m+1} = (k_{m+1}/k_m) D_m$ , и

$$\mathfrak{P}_m = \begin{pmatrix} e^{i\psi_m} & e^{-i\psi_m} \\ e^{i\psi_m} & -e^{-i\psi_m} \end{pmatrix}.$$

Используя уравнение (1.37) для  $m = 0, \dots, (M-1)$ , можно получить уравнение

$$\vec{f}_M = (C_M)^{-1} \mathfrak{P}_{M-1} \dots (C_2)^{-1} \mathfrak{P}_1 (C_1)^{-1} \mathfrak{P}_0 \vec{f}_0, \quad (1.38)$$

в котором  $f_0^{(+)}$  задано и  $f_M^{(-)} \equiv 0$ , т.к. при  $z \geq z_M$  нет электромагнитного поля. Два неизвестных значения  $f_0^{(-)}$  и  $f_M^{(+)}$  могут быть легко получены из уравнения (1.38).

В конечном итоге, слагаемое, отвечающее за поглощение излучения, для каждой ячейки может быть записано как

$$S_m = \frac{I(t) k_L \text{Im}(\varepsilon_m)}{z_{m+1} - z_m} \int_{z_m}^{z_{m+1}} |\mathbf{E}(z)|^2 dz, \quad (1.39)$$

где  $I(t)$  — интенсивность падающего импульса, и

$$|\mathbf{E}|^2 = \begin{cases} |E_y|^2 & \text{в случае } s\text{-поляризации,} \\ |E_x|^2 + |E_z|^2 & \text{в случае } p\text{-поляризации.} \end{cases}$$

Компоненты поля  $E_y$  и  $B_y$  можно вычислить из уравнений (1.34) и (1.37), полагая  $f_0^{(+)} \equiv 0$ . Соотношения между  $E_x$ ,  $E_z$  и  $B_y$  в случае  $p$ -поляризации следующие:  $E_x = -i/(\varepsilon k_L)(\partial B_y/\partial z)$ ,  $E_z = -(B_y \sin \Theta)/\varepsilon$ . Таким образом, поглощение лазерной энергии в каждой ячейке сетки  $z_m \leq z \leq z_{m+1}$  может быть определено из уравнения (1.39).

Коэффициенты отражения  $R$  и прохождения  $T$  могут быть определены как  $R = |f_0^{(-)}/f_0^{(+)}|^2$  и  $T = |f_M^{(+)}|/|f_0^{(+)}|^2$ .

### 1.5.5. Критерии расчета временного шага

Величина временного шага для решения уравнений движения ионов (1.12) и уравнения энергии для электронов (1.18) в ГиКАМ пересчитывается после каждого произведенного шага интегрирования этих уравнений (на каждой итерации главного цикла моделирования, см. Приложение А, шаг 8 параллельного алгоритма). Для расчета величины временного шага используются два критерия:

1. Необходимо, чтобы за один временной шаг в каждой ячейке ион проходил расстояние не более 3%<sup>1</sup> от среднего межйонного расстояния  $r_{\text{int}}$  в этой ячейке. Поэтому в каждой ячейке необходимо найти максимальную скорость по всем ионам  $(v_{\text{max}})_j$ , и шаг будет определяться мини-

---

<sup>1</sup> Ограничения на временной шаг, выраженные в процентах, определены методом перебора в результате анализа сохранения полной энергии моделируемой системы при окончательных расчетах: при более строгом ограничении на временной шаг сохранение энергии не улучшается, а при менее строгом — энергобаланс становится хуже. В данной работе разбаланс энергии около 10% в течение 500 пс моделирования считался приемлемым.

мальным по всем ячейкам соотношением:  $\Delta t^I = \min_j \{0.03(r_{\text{int}})_j / (v_{\text{max}})_j\}$ , где  $(r_{\text{int}})_j = 2\sqrt[3]{3m_i / (4\pi\rho_j)}$ ,  $j$  — номер ячейки сетки.

2. Необходимо, чтобы при лазерном нагреве за один временной шаг температура электронов возрастала не более, чем на  $0.5\%^2$  от ее текущего значения. Для этого в каждой ячейке сетки вычисляется предварительная величина шага:  $\Delta t_j^{\text{II}} = 0.005(c_e)_j \cdot (T_e)_j / S_j$ , и результирующий шаг выбирается минимальным из этих предварительных значений шагов по всем ячейкам:  $\Delta t^{\text{II}} = \min_j \{\Delta t_j^{\text{II}}\}$ .

В качестве окончательного шага берется наименьшее из значений, полученных по этим двум критериям:

$$\Delta t_{\text{MD}} = \min \{ \Delta t^I, \Delta t^{\text{II}} \}. \quad (1.40)$$

Если вычисленная согласно (1.40) величина временного шага  $\Delta t_{\text{MD}}^*$  на текущей итерации главного цикла моделирования перед началом очередного шага интегрирования превышает предыдущее значение шага  $\Delta t_{\text{MD}}$  (на предыдущей итерации цикла) более, чем на  $1\%^3$ , то для интегрирования используется значение  $1.01\Delta t_{\text{MD}}$ , т.е. введено дополнительное ограничение:

$$\Delta t_{\text{MD}}^* \leq 1.01\Delta t_{\text{MD}}. \quad (1.41)$$

В сторону уменьшения от итерации к итерации шаг может изменяться на любую величину.

Значение временного шага  $\Delta t_{\text{MD}}$ , определяемое согласно (1.40) с дополнительным ограничением (1.41), используется в ГиКАМ как для решения уравнений движения ионов (1.12), так и для решения уравнения энергии электронов (1.18) (включая численное решение уравнений (1.22) и (1.24)). Исполь-

---

<sup>2</sup> См. предыдущую сноску.

<sup>3</sup> См. предыдущую сноску.

зование единого значения<sup>4</sup> временного шага оправдано, поскольку при таком способе его расчета вычисления с малым шагом выполняются лишь тогда, когда это необходимо для сохранения точности вычислений — при больших скоростях частиц и быстром росте температур подсистем, а когда температуры меняются медленно и скорости частиц небольшие, то без заметного снижения точности можно выполнять расчеты с бóльшим временным шагом, экономя процессорное время.

При расчетах во избежание чрезмерного замедления скорости расчета в случае, если вычисленные согласно (1.40) значения временного шага оказываются слишком малы, временной шаг  $\Delta t_{\text{MD}}$  ограничивается снизу значением 0.05 фс. Существует также ограничение на шаг сверху значением 5 фс, оно достигается при низких температурах в самом начале моделирования, до прохождения импульса. Таким образом,  $0.05 \leq \Delta t_{\text{MD}} \leq 5$  фс.

Временной шаг в ходе моделирования изменяется примерно так, как показано на графике на рис. 1.8. В данной постановке моделировалось воздействие 100-фс лазерного импульса с интегральной плотностью 5 Дж/см<sup>2</sup> на алюминиевую мишень, максимум интенсивности импульса приходится на момент времени 2 пс. Видно, что до начала прохождения импульса ( $t \lesssim 1.8$  пс), поскольку вещество холодное ( $T = 300$  К, скорости атомов небольшие) временной шаг принимает свое наибольшее значение — 5 фс. Затем, во время действия лазерного импульса ( $1.8 \lesssim t \lesssim 2.2$  пс) температура электронов начинает быстро возрастать, поэтому вступает в действие критерий 2, и величина временного шага начинает стремительно уменьшаться, пока электронная температура не достигнет своего максимального значения (при  $t \approx 1.85$  пс;

---

<sup>4</sup> Для сравнения, в модели Иванова–Жигиля (§4.2 **Обзора литературы**) временной шаг  $\Delta t_{\text{MD}}$  численного интегрирования уравнений движения ионов (8) в несколько раз больше временного шага  $\Delta t_{\text{HD}}$  конечно-разностной схемы решения уравнения эволюции электронной подсистемы (7):  $\Delta t_{\text{MD}} = n\Delta t_{\text{FD}}$ . В зависимости от вещества значение  $n$  выбиралось от 2 до 100.

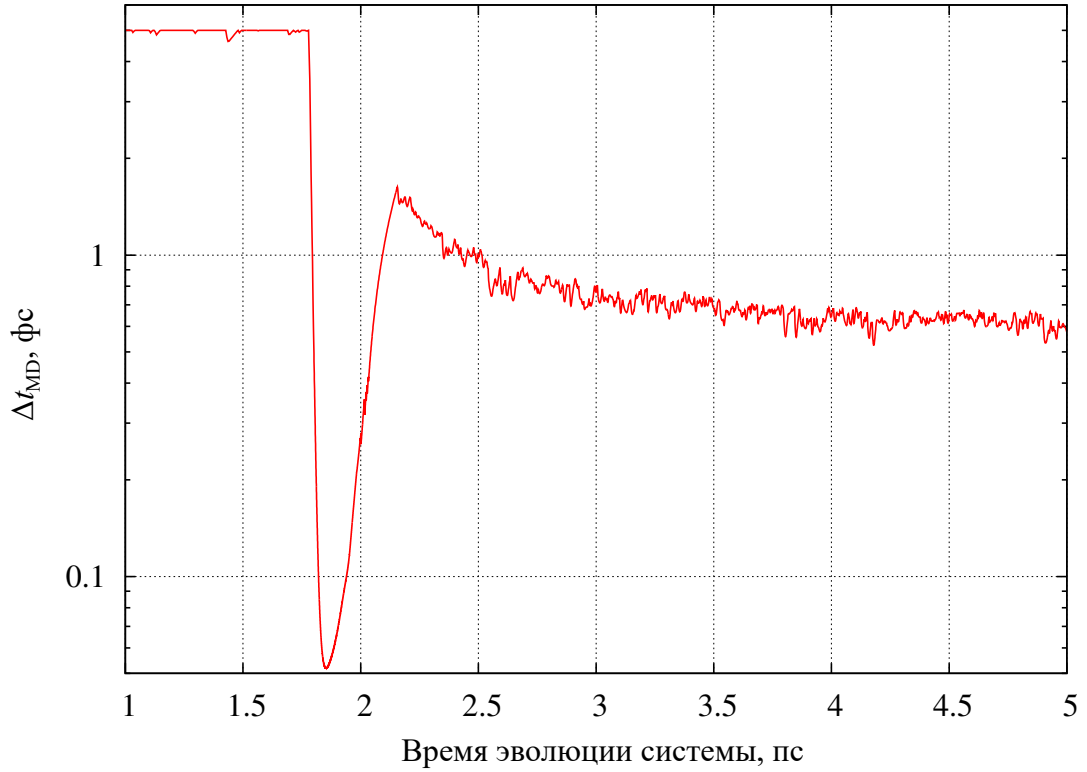


Рис. 1.8. Пример изменения переменного временного шага численного решения уравнений (1.12) и (1.18) в ходе моделирования. По горизонтальной оси отложено промоделированное время эволюции системы в пикосекундах, по вертикальной — длина временного шага  $\Delta t_{\text{MD}}$  в фемтосекундах, вычисленного согласно (1.40) с применением всех ограничений, о которых говорится в §1.5.5. Максимум интенсивности лазерного импульса приходится на момент времени 2 пс.

далее, хотя импульс все еще действует, рост электронной температуры приостанавливается из-за теплопроводности). Затем, при  $1.85 \lesssim t \lesssim 2.2$  пс, временной шаг начинает возрастать, и скорость его роста ограничена соотношением (1.41). Далее, при  $t \gtrsim 2.2$  пс, начинает возрастать температура ионов — скорости атомов увеличиваются, вступает в действие критерий 1 расчета значения временного шага, и временной шаг начинает медленно уменьшаться из-за дальнейшего увеличения температуры ионов.

## 1.6. Выводы к главе 1

1. Создана улучшенная версия гибридного метода — ГиКАМ — путем развития модели Иванова–Жигилея, предложенной в 2003 г. (§4.2 **Обзора литературы**). ГиКАМ объединяет достоинства ГДМ (раздел 1.1) и классической МД (раздел 1.2).
2. Предложенные автором улучшения позволяют более реалистично моделировать воздействие на металл как одиночного импульса с энергией, многократно превышающей порог абляции, так и двойного импульса, а также, возможно, и более сложной конфигурации импульсов (раздел 1.4).
3. Среди основных улучшений можно отметить следующие:
  - электронная подсистема представляет собой электронную жидкость, поведение которой моделируется путем решения уравнения энергии (§1.5.2);
  - электронная теплопроводность и коэффициент электрон-фононного взаимодействия моделируются согласно широкодиапазонным моделям (§1.5.3), а электронная теплоемкость вычисляется по ПЭ-УрС, основанному на модели Томаса–Ферми (раздел 1.3);
  - поглощение излучения лазера учитывается путем решения уравнений Гельмгольца для электромагнитного поля (§1.5.4).
4. Для улучшенной версии модели требуется потенциал межчастичного взаимодействия, который хорошо описывает поведение вещества под воздействием высоких температур и давлений, возникающих при лазерной абляции; для моделирования поведения ионов алюминия наиболее подходит ЕАМ-потенциал Жаховского (раздел 1.3).



5. Для экономии машинного времени моделирование производится с переменным временным шагом (§1.5.5).
6. Параллельный алгоритм ГиКАМ приведен в **Приложении А**.

Результаты главы 1 опубликованы в работах [160–163].

## Глава 2

### Абляция алюминия одиночным импульсом.

### Сравнение ГиКАМ и ГДМ

Данная глава посвящена проверке ГиКАМ путем сравнения результатов, полученных с ее помощью, с результатами ГДМ [48], описанной в разделе 1.1.

#### 2.1. Постановка задачи

В данной главе рассматривается следующая задача.

Моделируется воздействие одиночного фемтосекундного лазерного импульса на алюминиевую мишень. Параметры импульса соответствуют титан-сапфировому лазеру с длиной волны 800 нм, характерная длительность импульса  $\tau = 100$  фс. Временной профиль интенсивности импульса имеет гауссову форму:

$$I(t) = I_0 \cdot 16^{-(t-t_0)^2/\tau^2},$$

где  $I_0$  — пиковая интенсивность. Интегральная плотность падающего излучения и его пиковая интенсивность связаны между собой согласно формуле (10)

**Обзора литературы.** При моделировании для интегральной плотности падающего излучения в различных постановках устанавливалось значение из интервала от 0.1 до 20 Дж/см<sup>2</sup>.

Моделирование начинается в момент времени 0 пс, максимум интенсивности импульса приходится на момент времени  $t_0$ , выбираемый произвольно из интервала от 2 до 6 пс.

Изначально левая свободная поверхность мишени находится в точке с координатой  $z = 0$  нм, сама мишень занимает область пространства при

$0 \leq z \leq L_z$  (1.11), а лазерный луч падает слева направо, в положительном направлении оси  $z$  (рис. 1.4), нормально к начальной поверхности мишени. Начальная толщина мишени при расчетах с ГДМ выбиралась такой, чтобы избежать влияния волн давления, отраженных от противоположной (задней) ее стороны. При моделировании по ГиКАМ начальная толщина мишени  $L_z$  составляла от 2 до 4 мкм. Площадь поперечного сечения мишени  $L_x \times L_y = 8 \times 8$  нм (1.10) ( $20 \times 20$  периодов ГЦК-решетки алюминия). Толщины мишени в 2 мкм достаточно для исследования начальной стадии лазерной абляции с передней поверхности мишени вплоть до времен около 500 пс, при этом волны давления, отраженные от задней поверхности мишени, не успевают достигнуть ее нагреваемой поверхности. Общее количество атомов в одном запуске (в зависимости от толщины мишени) составляло от 8 до 16 млн.

Длительность моделирования с ГДМ в большинстве случаев составляет несколько минут. С другой стороны, ГиКАМ для своей работы требует большого количества вычислительных ресурсов, а длительность расчета одной задачи составляет от нескольких часов до нескольких суток. Например, для одного расчета процесса, описанного в разделе 2.4 (интегральная плотность лазерного импульса  $2.0$  Дж/см<sup>2</sup>, количество атомов  $\sim 8$  млн.), для которого было задействовано 50 узлов вычислительного кластера (на каждом узле 12 вычислительных ядер, т.е. всего было запущено 600 процессов), потребовалось около 8 часов, в результате такого моделирования была получена картина эволюции вещества мишени от 0 до 200 пс.

## 2.2. Моделирование низкой интенсивности

В работе динамика абляции изучается путем анализа диаграмм плотности вещества мишени в координатах  $z-t$  для различных значений интегральной плотности импульса  $F$ , а также путем сравнения профилей температуры

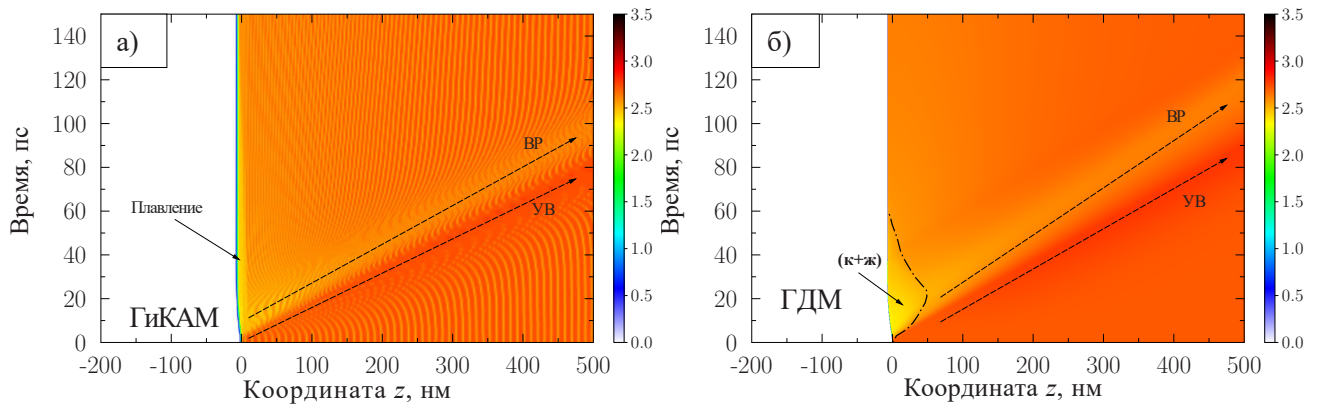


Рис. 2.1. Результаты моделирования для интегральной плотности падающего излучения  $F = 0.2$  Дж/см<sup>2</sup> — диаграммы плотности в координатах  $z-t$ . Максимум интенсивности импульса приходится на момент времени  $t_0 = 2$  пс. а) — ГиКАМ; б) — ГДМ. Границы зоны плавления (к+ж) показаны штрихпунктирной линией. Стрелками показано направление распространения УВ и ВР.

$T_i$  и давления  $P_i$  в мишени после прохождения импульса, полученных при двух способах моделирования воздействия импульса на мишень.

В данном разделе рассматривается моделирование, произведенное для интегральной плотности излучения лазера  $0.2$  Дж/см<sup>2</sup>, которая близка к субпикосекундному порогу абляции для алюминия [164].  $z-t$  диаграммы плотности вещества мишени в случае указанной интегральной плотности излучения лазера представлены на рис. 2.1. При такой интегральной плотности поглощается  $F_{\text{abs}} = 0.023$  Дж/см<sup>2</sup>, и наблюдается лишь начало плавления приповерхностного слоя. Тем не менее, на этом процесс не завершается, и в ГДМ проплавленная зона исчезает к моменту времени  $60$  пс (рис. 2.1 (б)). Полосы в структуре плотности на диаграмме, полученной по ГиКАМ (рис. 2.1 (а)), возникают из-за того, что ГЦК-решетка ориентирована вдоль оси  $z$ , а исчезновение таких полос на диаграмме с течением времени одновременно со снижением плотности можно интерпретировать как разрушение кристаллической решетки и ее плавление. В ГиКАМ можно наблюдать разупорядочение слоя толщиной около  $10$  нм, а кристаллическая структура не восстанавлива-

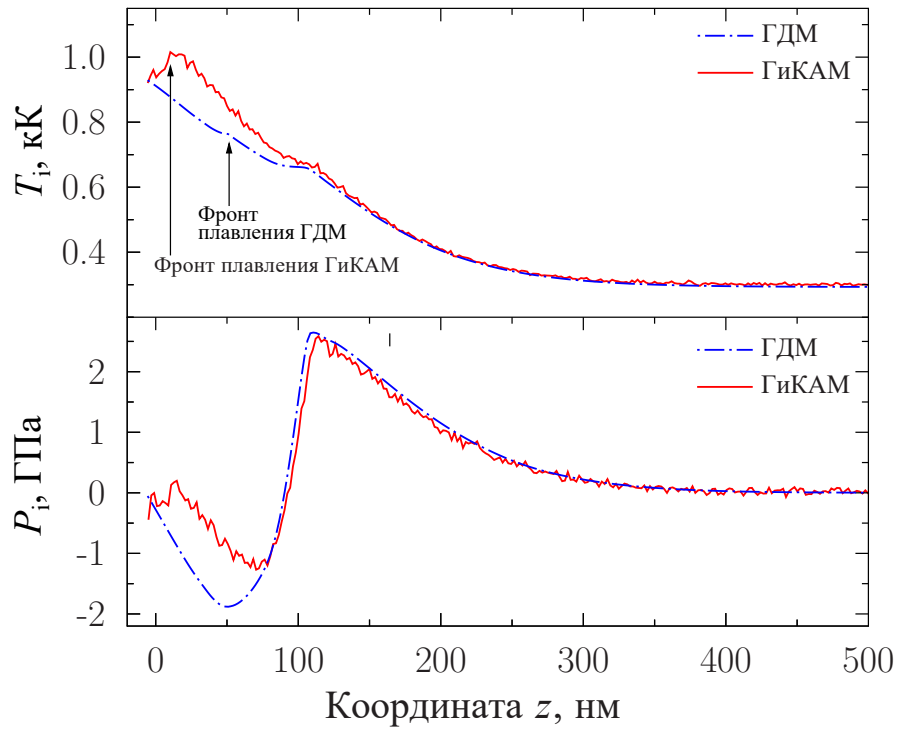


Рис. 2.2. Распределение температуры  $T_i$  и давления  $P_i$  ионов при  $F = 0.2$  Дж/см<sup>2</sup>, рассчитанные по ГиКАМ и ГДМ в момент времени  $t = 20$  пс. Красная сплошная линия — ГиКАМ, синяя штрихпунктирная линия — ГДМ.

ется к моменту 150 пс (рис. 2.1 (а)). Таким образом, модель «мгновенного» плавления, используемая в ГДМ, переоценивает динамику модификации поверхности, в то время как ГиКАМ напрямую воспроизводит кинетику плавления и рекристаллизации. Возникновение и распространение ударной волны (УВ) хорошо видно на обеих диаграммах рис. 2.1, при этом скорость ее движения составляет около 5.5 км/с, что близко к скорости акустической волны в алюминии при нормальных условиях. За УВ следует волна разгрузки (ВР), интенсивность которой недостаточна для того, чтобы вызвать механическое разрушение мишени в твердой фазе. На рис. 2.2 показаны профили ионной температуры и давления в мишени, получившиеся по ГиКАМ и ГДМ в момент времени  $t = 20$  пс. При значениях координаты  $z \gtrsim 100$  нм наблюдается очень хорошее согласие профилей как температуры, так и давления. В той

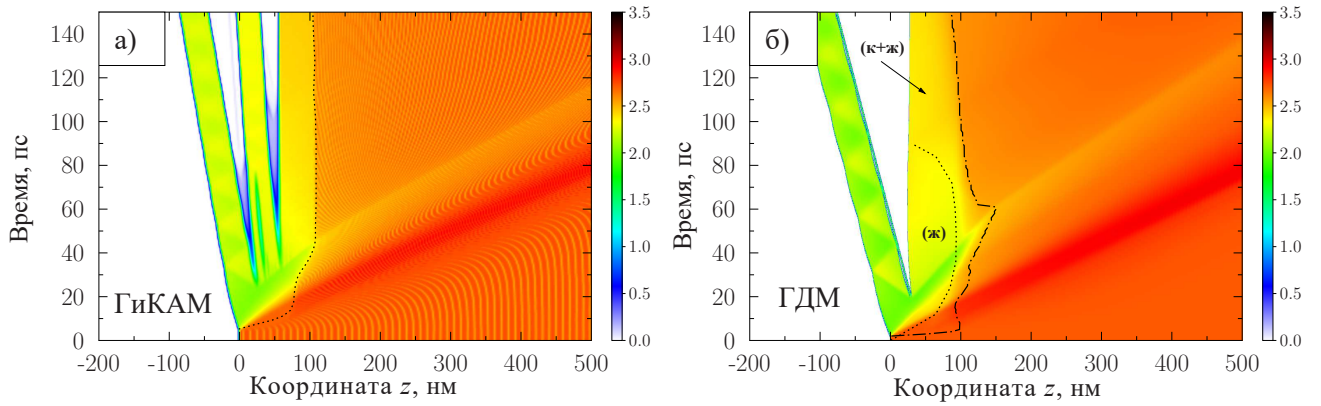


Рис. 2.3. То же самое, что на рис. 2.1, только  $F = 0.5$  Дж/см<sup>2</sup>.

области мишени, где в ГДМ наступает плавление ( $-5 \lesssim z \lesssim 50$  нм), ГиКАМ дает чуть бóльшую температуру, чем ГДМ. Пиковые значения давлений на профилях составляют около 3 ГПа для обеих моделей. При растяжении амплитуда ВР в ГДМ получается больше, что можно ассоциировать с процессом размягчения кристалла при значениях температур, лежащих около кривой плавления [165], что не учитывается в ГиКАМ.

### 2.3. Абляция при интенсивности, близкой к порогу абляции

В этом разделе будет рассматриваться моделирование двумя рассматриваемыми методами для случая лазера с интегральной плотностью излучения  $F = 0.5$  Дж/см<sup>2</sup> ( $F_{\text{abs}} = 0.065$  Дж/см<sup>2</sup>). При меньшей интегральной плотности с использованием ГиКАМ невозможно гарантировано получить абляцию.

На рис. 2.3 уже отчетливо видно, что толщина проплавленного слоя к моменту времени 20 пс достигает толщины 80 нм и по ГДМ, и по ГиКАМ. Расширение области высокого давления в вакуум приводит к формированию ВР, которая продвигается вглубь мишени и встречается с другой ВР, движущейся к облучаемой поверхности. Давление в месте встречи достигает около  $-3$  ГПа, и происходит механический откол этого расплавленного слоя. Пу-

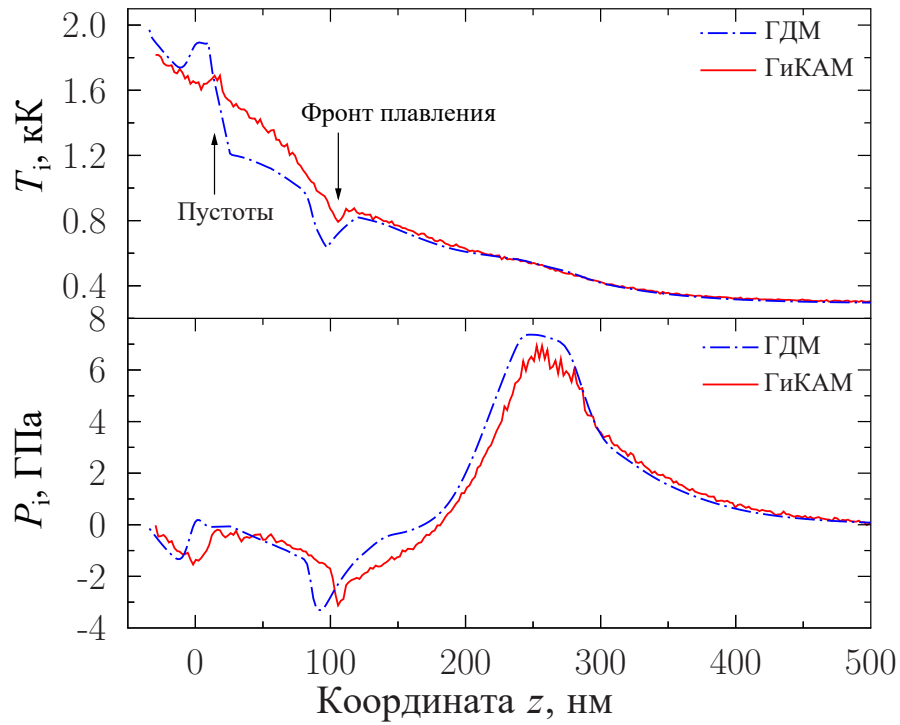


Рис. 2.4. То же самое, что на рис. 2.2, только  $F = 0.5$  Дж/см<sup>2</sup>, и  $t = 40$  пс.

стоты образуются в момент времени 20 пс в ГДМ и в момент 40 пс в ГиКАМ (рис. 2.3). Скорость аблированного слоя  $\sim 0.5$  км/с в ГиКАМ и  $\sim 1$  км/с в ГДМ. Абляция в обеих моделях происходит в жидкой фазе. Таким образом, при  $F = 0.5$  Дж/см<sup>2</sup> вклад в формирование кратера дает кавитация «растянутой» метастабильной жидкости при отрицательных давлениях. Как в ГиКАМ, так и в ГДМ после абляции вещества образуется новая поверхность (рис. 2.3), учитывая это, можно определить глубину кратера (см. Приложение Б и формулу (Б.1)). Рекристаллизация расплавленного слоя в случае с ГДМ происходит быстрее, и после 90 пс присутствует только фазовое состояние «кристалл+жидкость» (рис. 2.3 (б)), тогда как в случае ГиКАМ сохраняется жидкая фаза (рис. 2.3 (а)). Такое поведение объясняется кинетикой рекристаллизации, которая учитывается в ГиКАМ, и отличиями в кривых плавления в МД-УрС и ПЭ-УрС (раздел 1.3). На рис. 2.4 показаны профили температуры и давления через 40 пс после прохождения импульса. В обеих

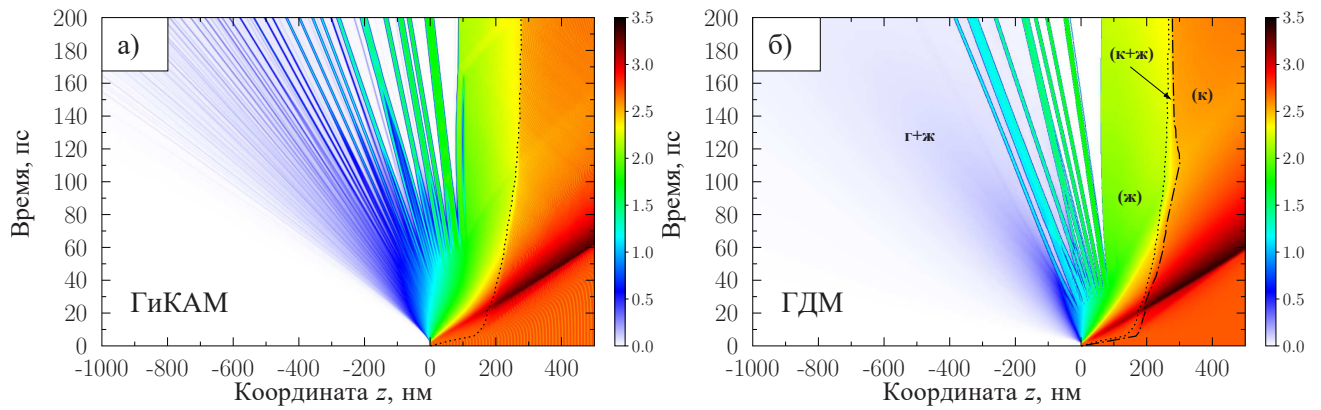


Рис. 2.5. То же самое, что на рис. 2.1, только  $F = 2.0$  Дж/см<sup>2</sup>.

моделях амплитуда зарождающейся УВ около 7 ГПа, а затем давление падает до  $-3$  ГПа.

## 2.4. Абляция при высоких интенсивностях

Если интегральная плотность излучения достигает значений  $2.0$  Дж/см<sup>2</sup> ( $F_{\text{abs}} = 0.4$  Дж/см<sup>2</sup>), то передние слои аблированного вещества (рис. 2.5, область **г+ж**) находятся в состоянии «газ+жидкость», что согласуется с ПЭ-УрС. На диаграмме, полученной по ГиКАМ, явно различимы отдельные наночастицы — они выглядят как тонкие линии на рис. 2.5 (а), тогда как результаты по ГДМ не содержат информации о размере капелек в двухфазной смеси «газ+жидкость», описывается лишь распределение плотности. В более глубоких слоях абляция происходит в жидкой фазе, таким образом, полная глубина абляции возрастает до 80-100 нм (на рис. 2.5 (а) и (б) видно, как к моменту времени 200 пс образуется новый слой). Надо отметить, что глубина проплавленного слоя достигает 300 нм в обеих моделях, но переходная область плавления («кристалл+жидкость») просматривается только на рис. 2.5 (б) (она обозначена как **(к+ж)**); в ГиКАМ площадь поперечного сечения образца недостаточна для отслеживания динамики гомогенного плавления. Оба метода воспроизводят сходную амплитуду УВ (около 25 ГПа), а



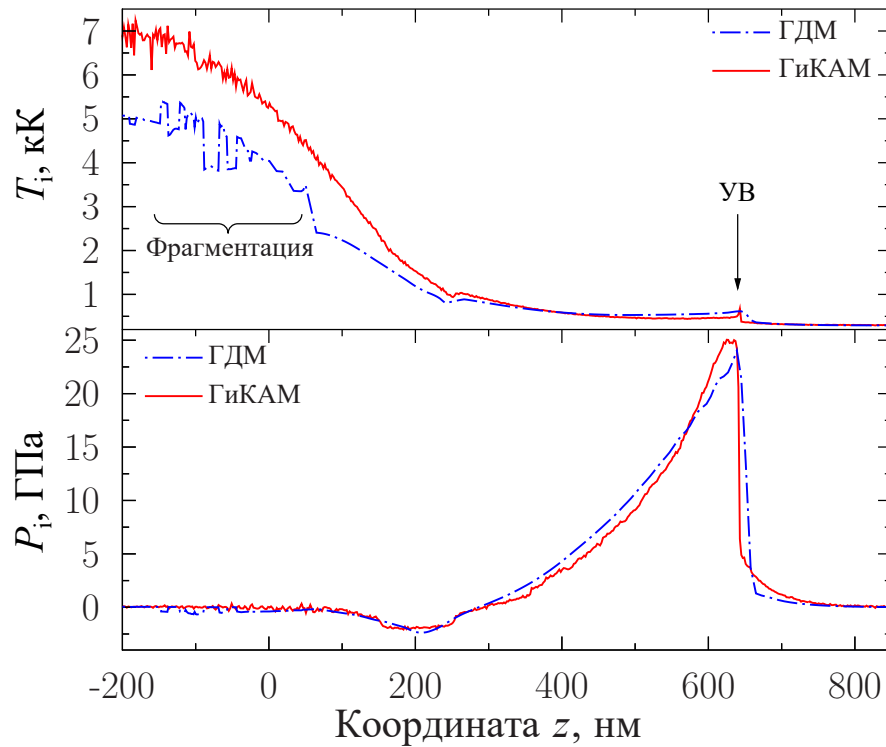


Рис. 2.6. То же самое, что на рис. 2.2, только  $F = 2.0 \text{ Дж/см}^2$  и  $t = 80 \text{ пс}$ .

также заметно, что профили давления в обоих методах в момент времени 80 пс близки друг к другу (рис. 2.6). Координата фронта плавления примерно 250 нм, а УВ — 650 нм. На профиле температуры, полученном по ГиКАМ, заметен пик за фронтом УВ, который связан с процессом релаксации сжатой кристаллической решетки [166]. Разница в температуре плюма возникает из-за несоответствия значений теплоемкости ионной подсистемы, получаемой из ПЭ-УрС, и рассчитываемой по ЕАМ-потенциалу межчастичного взаимодействия.

Дальнейшее увеличение интегральной плотности излучения до  $20 \text{ Дж/см}^2$  приводит к более интенсивному процессу абляции. Глубина проплавленной зоны также растет с 400 нм для  $4 \text{ Дж/см}^2$  до 700 нм для  $20 \text{ Дж/см}^2$  (рис. 2.7, маркеры «★»). ГиКАМ, будучи более точной моделью, учитывает динамику нуклеации, и динамика роста пустот показывает более высокую прочность на разрыв [153, 167].

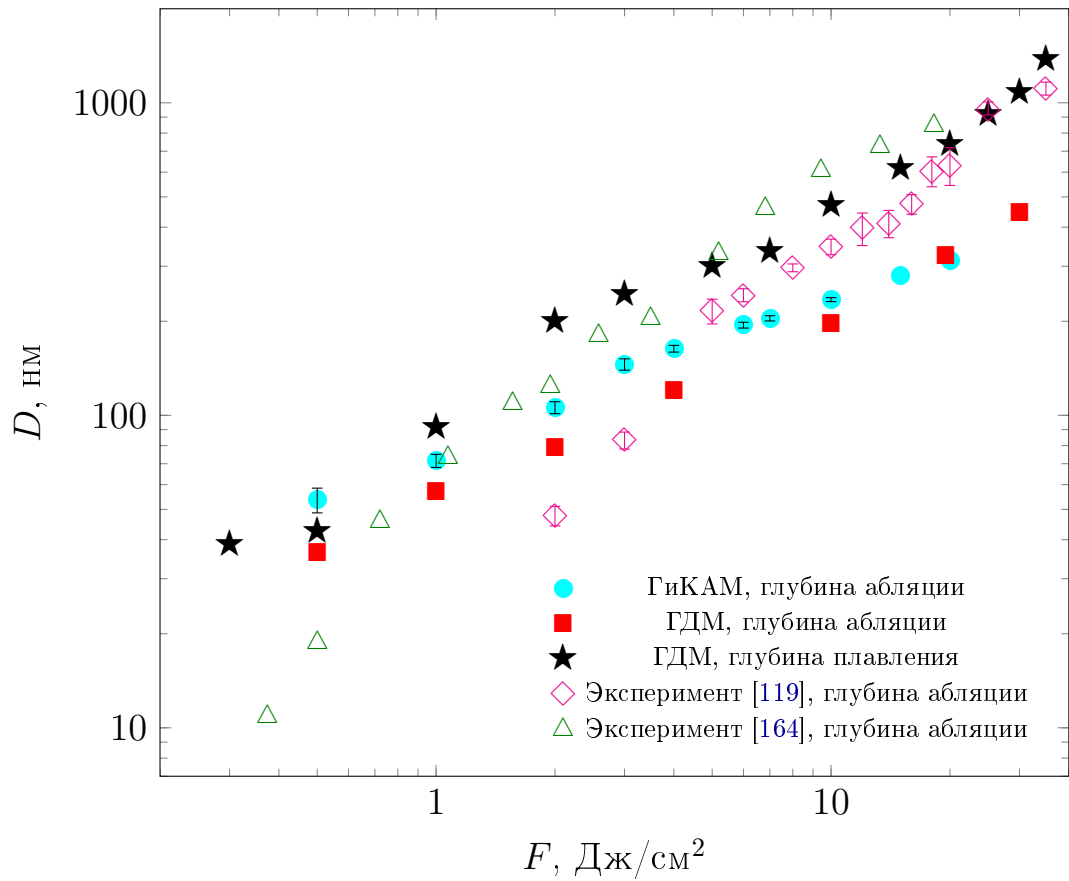


Рис. 2.7. Зависимость глубины абляции алюминия  $D$  от интегральной плотности падающего излучения  $F$ : ● — ГиКАМ, ■ — ГДМ, ◇ — эксперимент [119], △ — эксперимент [164]. Маркерами ★ обозначена глубина плавления в ГДМ. При построении данного графика использовались значения, приведенные в таблице Б.1 Приложения Б.

## 2.5. Общий обзор результатов моделирования.

### Сравнение с экспериментом

График зависимости глубины абляции от интегральной плотности падающего излучения представлен на рис. 2.7 (точные значения глубины абляции, полученные с использованием ГиКАМ, приведены в виде таблицы в Приложении Б; в этом же приложении описан способ нахождения статистической погрешности таких значений). Заметно, что модель нуклеации [151, 162], используемая в ГДМ (маркеры «■»), дает глубину абляции, близкую к глубине, предсказываемой ГиКАМ (маркеры «●»). Напротив, эксперимен-

тальные данные по алюминию [119, 164] (маркеры « $\diamond$ », « $\triangle$ ») для интегральной плотности падающего излучения  $\gtrsim 5$  Дж/см<sup>2</sup> демонстрируют бóльшую глубину кратера по сравнению с численными моделями. Объяснить такую недооценку глубины абляции при моделировании можно присутствием физических эффектов, которые невозможно учесть в рамках применяемых численных моделей. В частности, используемые модели квазиодномерные, и из-за этого в них не учитываются поперечные эффекты, возникающие вследствие радиального распределения интенсивности излучения лазера в световом пятне. Поэтому процессы, происходящие из-за остаточного давления расширяющегося плюма, и термокапиллярные эффекты в данной работе учесть невозможно, хотя в эксперименте такие эффекты могут быть причиной смещения вещества от центра кратера [168]. К тому же приведенные вычисления ограничены временем 500 пс, тогда как для описания динамики образования окончательной формы кратера очень важны рекристаллизация, выброс расплавленного вещества из центральной зоны и термокапиллярные эффекты. Как видно из рис. 2.7, глубина проплавленной зоны, полученная в моделировании (маркеры « $\star$ »), близка к экспериментальным значениям глубины кратера (маркеры « $\diamond$ », « $\triangle$ »).

## 2.6. Выводы к главе 2

1. Оба приближения (ГДМ и ГиКАМ) дают удовлетворительное согласие с экспериментальными данными в широком диапазоне интегральной плотности падающего излучения лазера, от 0.1 до 20 Дж/см<sup>2</sup>.
2. ГДМ с широкодиапазонным многофазным ПЭ-УрС качественно описывает динамику фазовых переходов, включая плавление, нуклеацию метастабильной жидкости и процессы откола, что позволяет быстро по-

лучить предварительную картину, показывающую развитие основных процессов лазерной абляции.

3. ГиКАМ требует значительных вычислительных ресурсов, но эта модель точно воспроизводит все процессы на атомарном уровне, в том числе нуклеацию в метастабильной жидкой фазе и динамику формирования смеси жидкость–газ с учетом эффектов поверхностного натяжения.
4. Оба приближения обеспечивают лучшее понимание динамики лазерной абляции, и рассматривается вопрос их объединения в один гибридный код в будущем.

Результаты главы 2 опубликованы в работе [162].

## Глава 3

### Абляция алюминия двойным импульсом

В данной главе излагаются результаты моделирования воздействия двойного лазерного импульса на алюминиевую мишень и приводится описание абляции алюминия в результате такого воздействия. Моделирование производилось с применением ГиКАМ.

#### 3.1. Постановка задачи

В данной главе будет рассматриваться следующая задача.

Производится моделирование воздействия двойного фемтосекундного лазерного импульса на алюминиевую мишень. Использовались параметры титан-сапфирового лазера с длиной волны 800 нм, характерная длительность каждого из двух следующих друг за другом импульсов  $\tau = 100$  фс. Временной профиль интенсивности каждого импульса имеет гауссову форму, таким образом, общий профиль интенсивности двойного импульса описывается как

$$I(t) = I_0 \left( 16^{-(t-t_0)^2/\tau^2} + 16^{-(t-t_0-\tau_D)^2/\tau^2} \right),$$

где  $I_0 = 1.88 \times 10^{13}$  Вт/см<sup>2</sup> — пиковая интенсивность, которая, согласно формуле (10) **Обзора литературы**, соответствует интегральной плотности падающего излучения  $F = 2$  Дж/см<sup>2</sup> для каждого из двух импульсов. Значение задержки между импульсами  $\tau_D$  в различных запусках устанавливалось из интервала от 0 до 200 пс.

Моделирование начинается в момент времени 0 пс, максимум интенсивности первого импульса приходится на момент времени  $t_0 = 2$  пс.

Изначально левая свободная поверхность мишени находится в точке с координатой  $z = 0$  нм, сама мишень занимает область пространства при

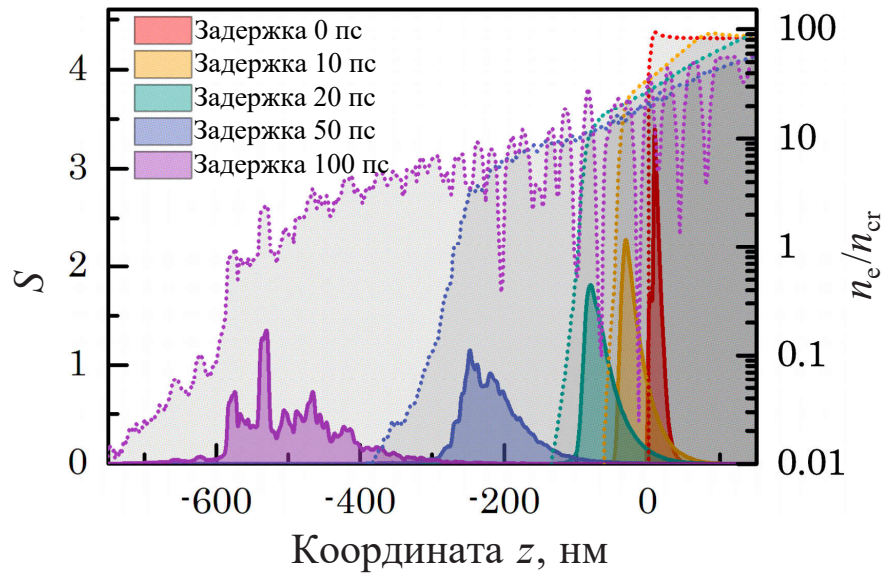


Рис. 3.1. Зона поглощения второго импульса в алюминиевой мишени (левая ось, сплошные линии, единицы измерения — произвольные) и нормированная концентрация электронов (правая ось, точечные линии) для различных задержек между импульсами. Цвета линий соответствуют различным значениям времени задержки  $\tau_D$ , от 0 до 100 пс.

$0 \leq z \leq L_z$  (1.11), а лазерный луч падает слева направо, в положительном направлении оси  $z$  (рис. 1.4), нормально к начальной поверхности мишени. Начальная толщина мишени  $L_z$  при моделировании составляла 4 мкм, а площадь поперечного сечения  $L_x \times L_y = 8 \times 8$  нм (1.10) ( $20 \times 20$  периодов ГЦК-решетки алюминия). Выбранной толщины мишени в 4 мкм достаточно, чтобы исследовать начальную стадию лазерной абляции с передней поверхности мишени вплоть до времен около 1000 пс, при этом волны давления, отраженные от задней поверхности мишени, не успевают достигнуть ее нагреваемой поверхности. Общее количество атомов в одном запуске составляло около 16 млн.

## 3.2. Различия в поглощении первого и второго импульсов

На рис. 3.1 показано местоположение поглощения энергии от второго импульса лазера для различных задержек  $\tau_D$  между импульсами. Если задержка  $\tau_D = 0$  пс, то динамика абляции соответствует случаю одиночного импульса с интегральной плотностью падающего излучения  $4 \text{ Дж/см}^2$ . Поглощение лазерной энергии в зоне проводимости электронов происходит в скин-слое толщиной около 30 нм. Затем, в случае задержки 10 и 20 пс можно наблюдать сдвиг и уширение области поглощения второго импульса из-за того, что вещество мишени начинает расширяться после прохождения первого импульса. В случае этих задержек, границы мишени в момент прохождения второго импульса расположены на расстоянии 50 и 100 нм, соответственно, от начального положения поверхности. Стоит отметить, что поглощение второго импульса в случае задержки  $\lesssim 20$  пс соответствует сверхкритическому режиму ( $n_e/n_{cr} \gtrsim 10$ ,  $n_{cr} = \omega_L^2 m_e / (4\pi e^2)$ ), и качественно соответствует закону Бугера–Ламберта–Бера. Для бóльших задержек наблюдается дальнейшее расширение мишени, и местоположение поглощения второго импульса смещается в область  $-300 \lesssim z \lesssim -100$  нм для 50-пс задежки и  $-600 \lesssim z \lesssim -300$  нм для 100-пикосекундной. При таких задержках возникающий плазменный плюм полностью экранирует поверхность мишени от воздействия второго импульса, как показано в результате экспериментальных исследований [97]. Расчет поглощения лазерной энергии на таких немонотонных пространственных профилях концентрации свободных электронов требует решения уравнений для электромагнитного поля (§1.5.4). В результате того, что меняется как пространственное положение, так и эффективность поглощения второго импульса, динамика абляции мишени под воздействием двойного импульса изменяется с ростом задержки между импульсами.

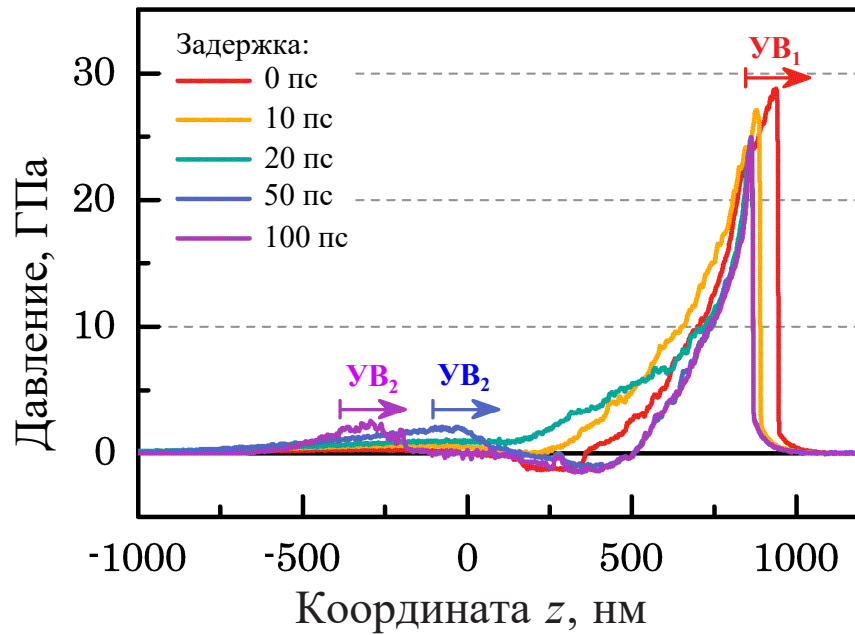


Рис. 3.2. Профили давления в мишени в момент времени  $t = 110$  пс для различных задержек между импульсами.

### 3.3. Анализ динамики абляции при различных задержках

Эволюция нагретого вещества для различных задержек может быть рассмотрена на профилях давления, которые представлены на рис. 3.2. Для задержки 0 пс к моменту времени 110 пс возникает только одна УВ (УВ<sub>1</sub>) с амплитудой около 30 ГПа (рис. 3.2). Когда задержка возрастает до 100 пс, амплитуда УВ<sub>1</sub> уменьшается до 25 ГПа. Вместе с тем, область отрицательного давления, являющаяся причиной фрагментации вещества, исчезает в случае задержек от 10 до 20 пс. Подавление этой области является причиной наблюдаемого в эксперименте уменьшения глубины кратера на коротких задержках между импульсами. Напротив, в случае длинных задержек ( $\gtrsim 50$  пс) можно заметить возникновение второй УВ (УВ<sub>2</sub>), которую генерирует второй импульс в возникающем плазменном плюме. Как будет показано



позднее, формирование этой  $УВ_2$  приводит к дальнейшему уменьшению глубины абляционного кратера.

### 3.3.1. 0 пс между импульсами

В работе динамика абляции изучается путем анализа диаграмм основных термодинамических параметров вещества мишени в координатах  $z-t$  для различных задержек между импульсами.

$z-t$  диаграммы плотности, температуры ионов и давления в случае задержки 0 пс (т. е. фактически один импульс удвоенной интегральной плотности) представлены на рис. 3.3. В этом случае энергия лазера поглощается в скин-слое толщиной около 30 нм, а температура электронов зоны проводимости за время действия импульса возрастает до 75 кК. Электронная теплопроводность приводит к размытию крутого градиента электронной температуры; передача решетке электронной энергии приводит к гомогенному плавлению мишени, и в момент времени  $t \approx 100$  пс глубина плавления достигает 350 нм (рис. 3.3 (а)).  $УВ$  двигается внутрь мишени со скоростью 8 км/с. Из рис. 3.3 (б) заметно, что длина плазменного плюма в этот момент времени составляет примерно 1 мкм, температура ионов достигает 15 кК (электронная температура примерно такая же, т.к. к этому времени релаксация уже завершена), что соответствует сверхкритическому состоянию (температура критической точки, согласно используемому потенциалу (рис. 1.1), составляет около 8 кК).  $ВР$  (голубая область на рис. 3.3 (в)) следует за  $УВ$  (красная и черная области); она инициирует процесс нуклеации в жидком слое, поэтому в интервале 100–150 пс формирование слоев абляции завершается.

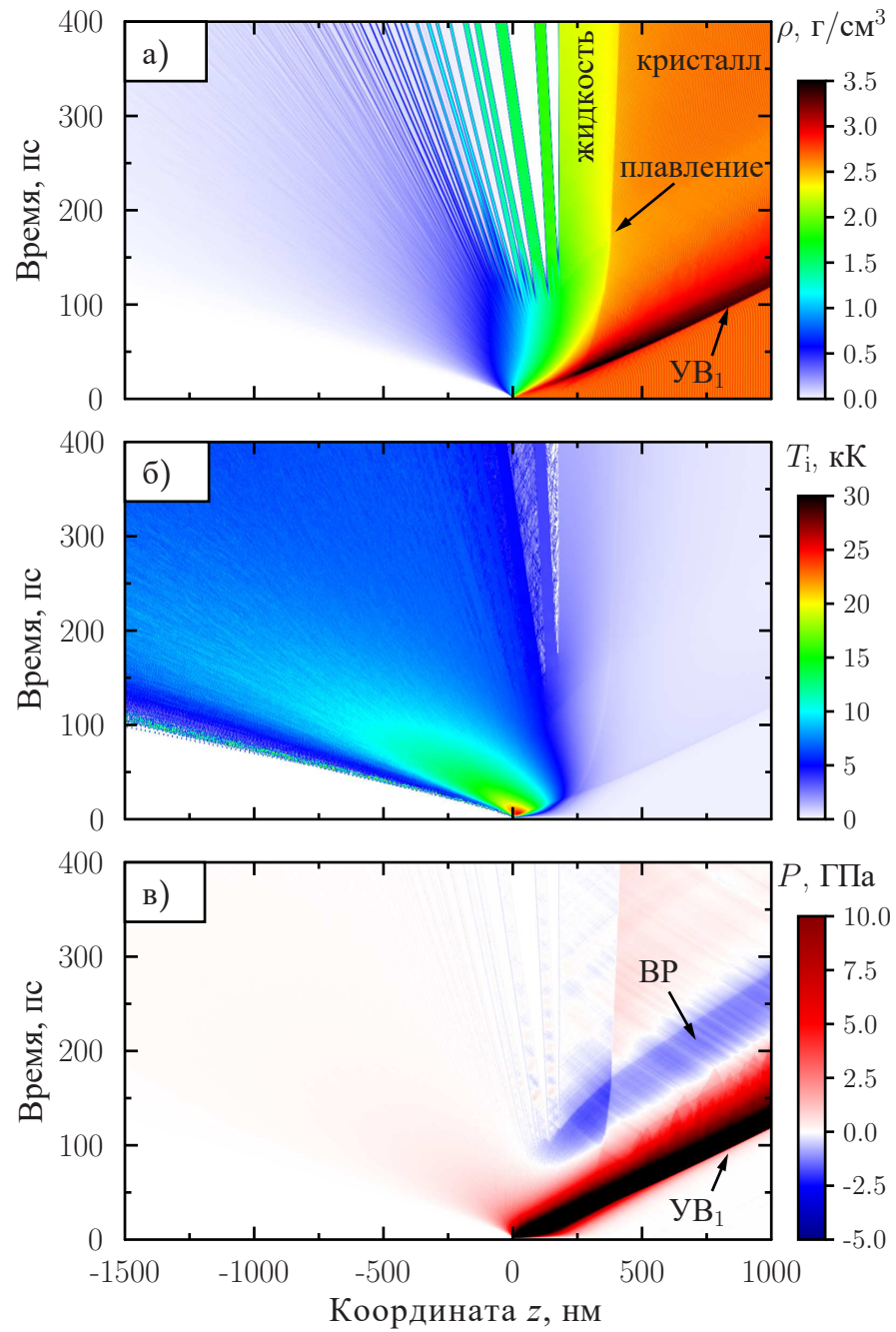


Рис. 3.3. Диаграммы: а) плотности алюминия  $\rho$ , б) температуры ионов  $T_i$  и в) давления  $P$  в координатах  $z-t$  в случае задержки между импульсами 0 пс.

### 3.3.2. 10 пс между импульсами

Динамика абляции изменяется, когда задержка между импульсами достигает 10 пс. Как видно из рис. 3.4 (а), в этом случае момент откола в жидкой фазе наступает позднее (при  $t \approx 150$  пс). К моменту времени 100 пс температура плюма выше и достигает 20 кК, длина плюма также возрастает и становится около 1.5 мкм (по сравнению с задержкой 0 пс, ср. рис. 3.3 (б) и рис. 3.4 (б)). Можно наблюдать уменьшение толщины абляционного слоя, тогда как глубина проплавленного слоя остается той же самой — около 350 нм (ср. рис. 3.3 (а) и рис. 3.4 (а)).

### 3.3.3. 20 пс между импульсами

В случае более длинной задержки, 20 пс, можно наблюдать последующее ослабление динамики фрагментации, которая теперь начинается в момент времени около 200 пс (рис. 3.5 (а)). Из рис. 3.5 (в) видно, что волна давления расщепляется на две волны. Как следует из рис. 3.1, зона поглощения второго импульса составляет  $-100 \lesssim z \lesssim 0$  нм. Такое расширение зоны поглощения является причиной формирования более слабой ВР. В результате интенсивность фрагментации уменьшается, а также уменьшается масса аблированного вещества, но толщина расплавленного слоя остается той же самой (350 нм), что и в случае 0- и 10-пс задержки.

### 3.3.4. 50 пс между импульсами

Когда задержка между импульсами возрастает до 50 пс, подключается второй механизм подавления лазерной абляции. Как видно из рис. 3.1, второй импульс поглощается в области  $-300 \lesssim z \lesssim -100$  нм, и в этот момент ВР (возникшая после прохождения первого импульса) проходит сквозь приповерхностный слой расплавленного вещества и вызывает в нем фрагментацию

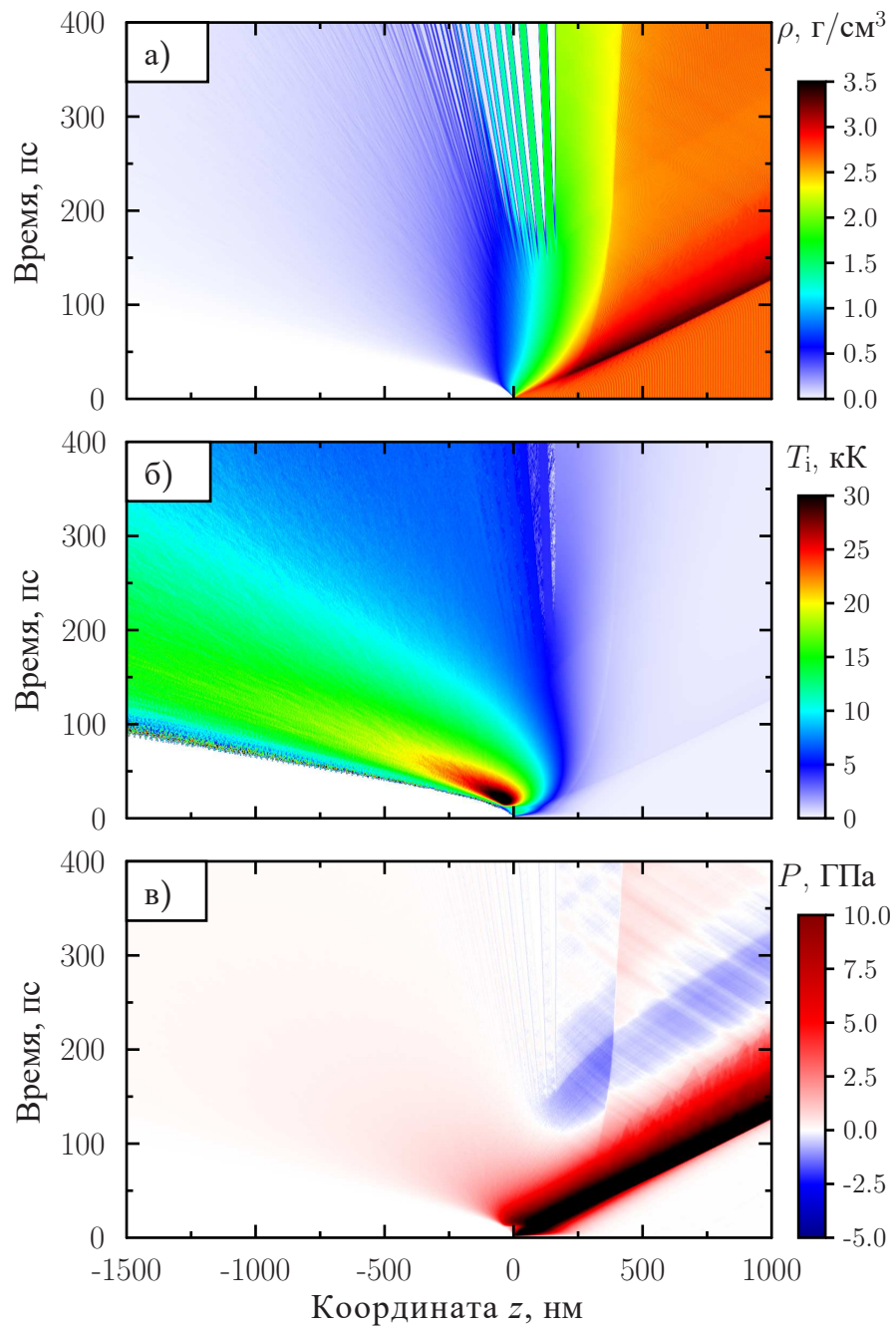


Рис. 3.4. То же самое, что на рис. 3.3, только задержка между импульсами 10 пс.

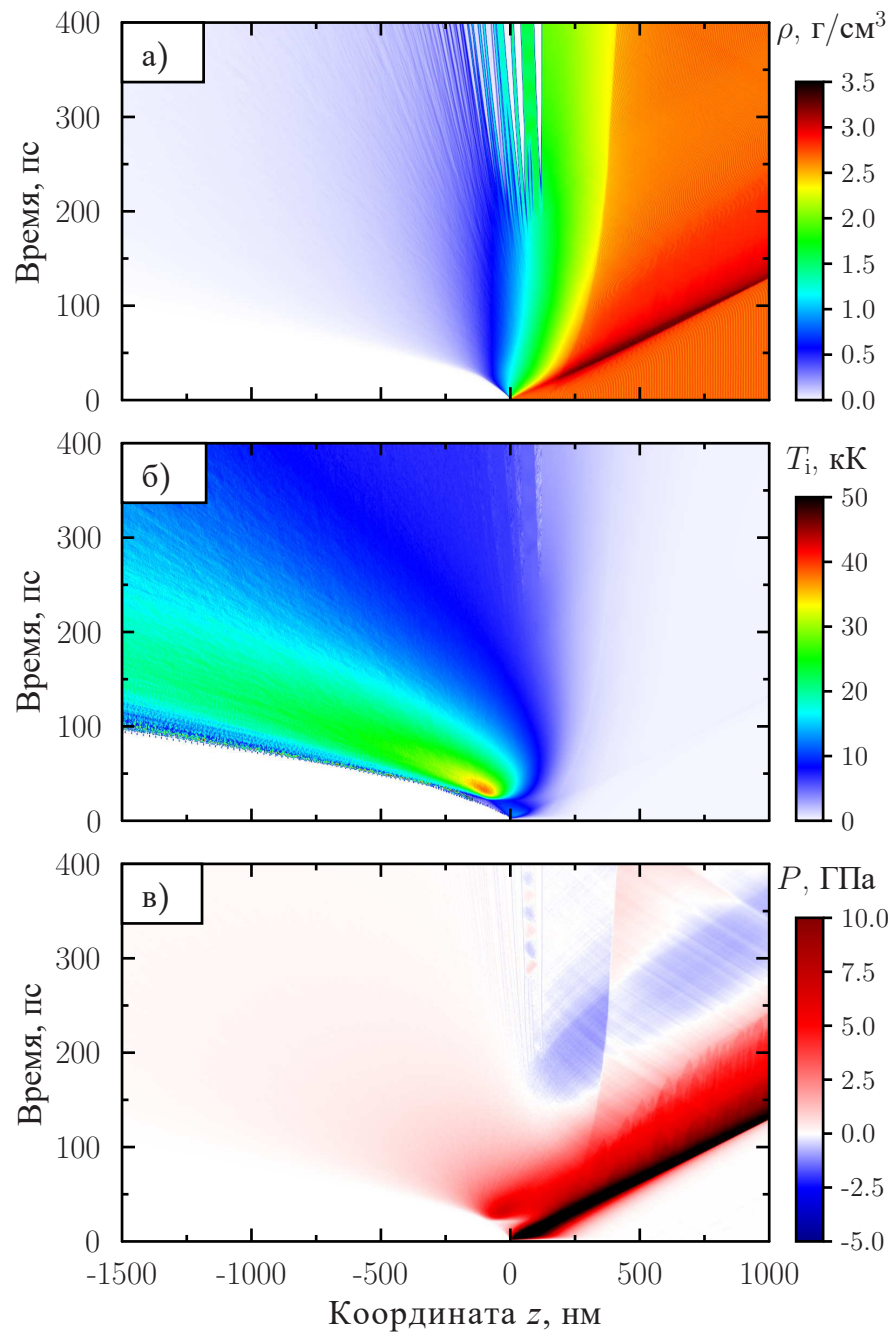


Рис. 3.5. То же самое, что на рис. 3.3, только задержка между импульсами 20 пс.

в жидкой фазе (рис. 3.6 (а) и (в), момент времени  $t \approx 50$  пс). Температура плазмы в зоне поглощения энергии от второго импульса достигает значений 50 кК. В этой зоне формируется вторая УВ, которая проходит сквозь аблированные слои и вызывает схлопывание возникающих между нанослоями пор. При  $t \gtrsim 400$  пс слои приходят в контакт с мишенью, и начинают происходить процессы осаждения плюма и его частичной конденсации (рис. 3.6 (а)). Из области плюма вглубь мишени распространяется волна давления с амплитудой около 2 ГПа (рис. 3.6 (в)). За этой волной следует вторая ВР, но ее интенсивности недостаточно, чтобы вызвать откол в жидком слое. Стоит отметить, что при  $\tau_D = 50$  пс толщина проплавленной области увеличивается и достигает 450 нм (рис. 3.6 (а)).

### 3.3.5. 100 пс между импульсами

При задержке между импульсами 100 пс наблюдается поглощение энергии от второго импульса в области  $z \approx -500$  нм (рис. 3.1), где температура ионов в плюме достигает максимального значения 60–70 кК (рис. 3.7 (б)). Замедление вещества между зоной поглощения и мишенью на рис. 3.7 (б) отчетливо видно в промежутке времени  $100 \lesssim t \lesssim 350$  пс. Интенсивности УВ<sub>2</sub> достаточно, чтобы полностью ликвидировать фрагментацию, вызванную первым импульсом (рис. 3.7 (а) и (в)). Поскольку поглощение второго импульса происходит достаточно далеко от первоначальной поверхности мишени (ближе к переднему краю возникающего абляционного плюма), процесс закрытия пустот занимает довольно длительное время и завершается к моменту времени  $t \approx 350$  пс. С этого момента также начинается дополнительное плавление мишени, возникающее из-за того, что осаждающиеся обратно на мишень слои имеют температуру, превышающую температуру плавления алюминия (среднюю толщину расплавленного слоя при 350 пс и 1000 пс, рис. 3.7 (а)).

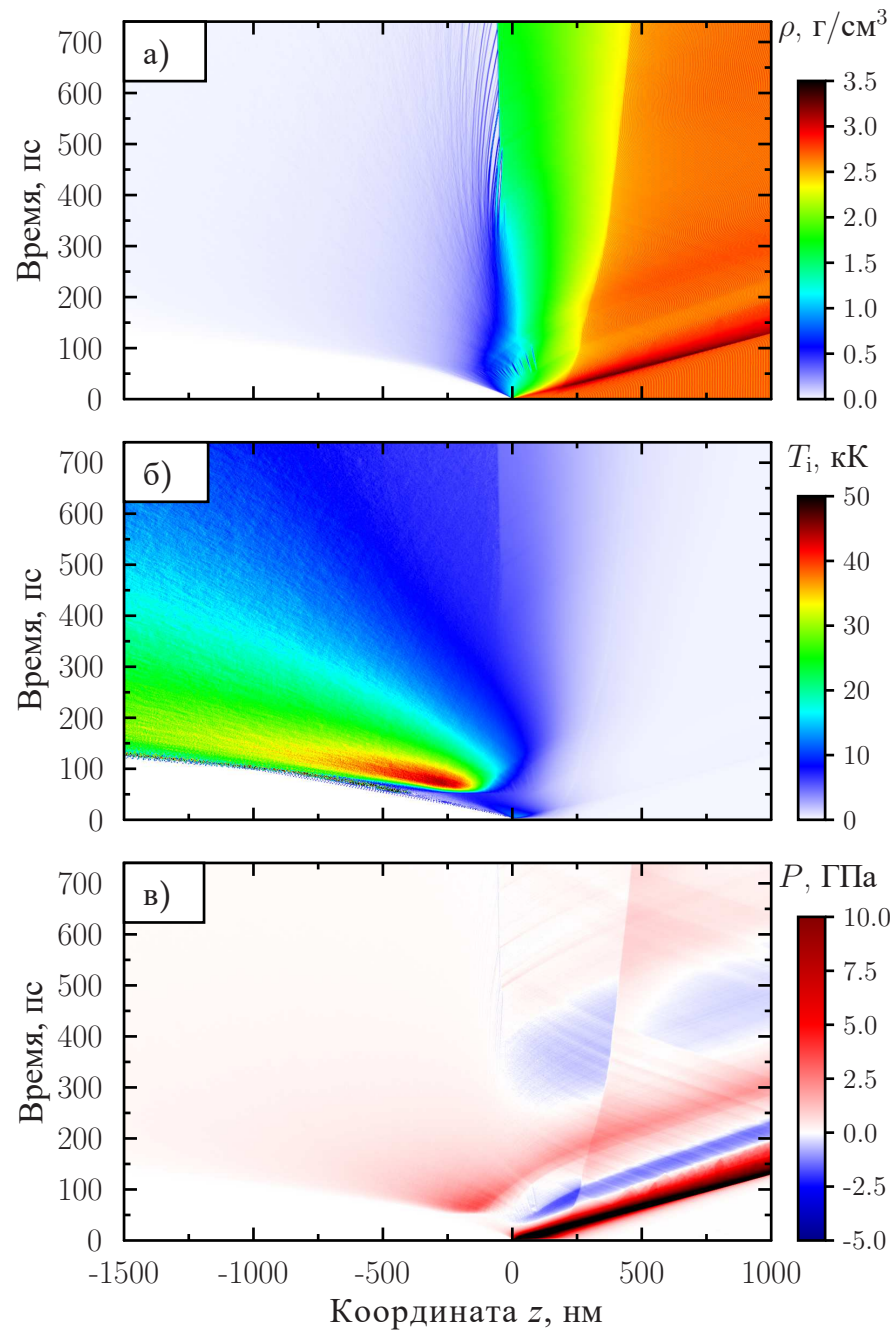


Рис. 3.6. То же самое, что на рис. 3.3, только задержка между импульсами 50 пс.

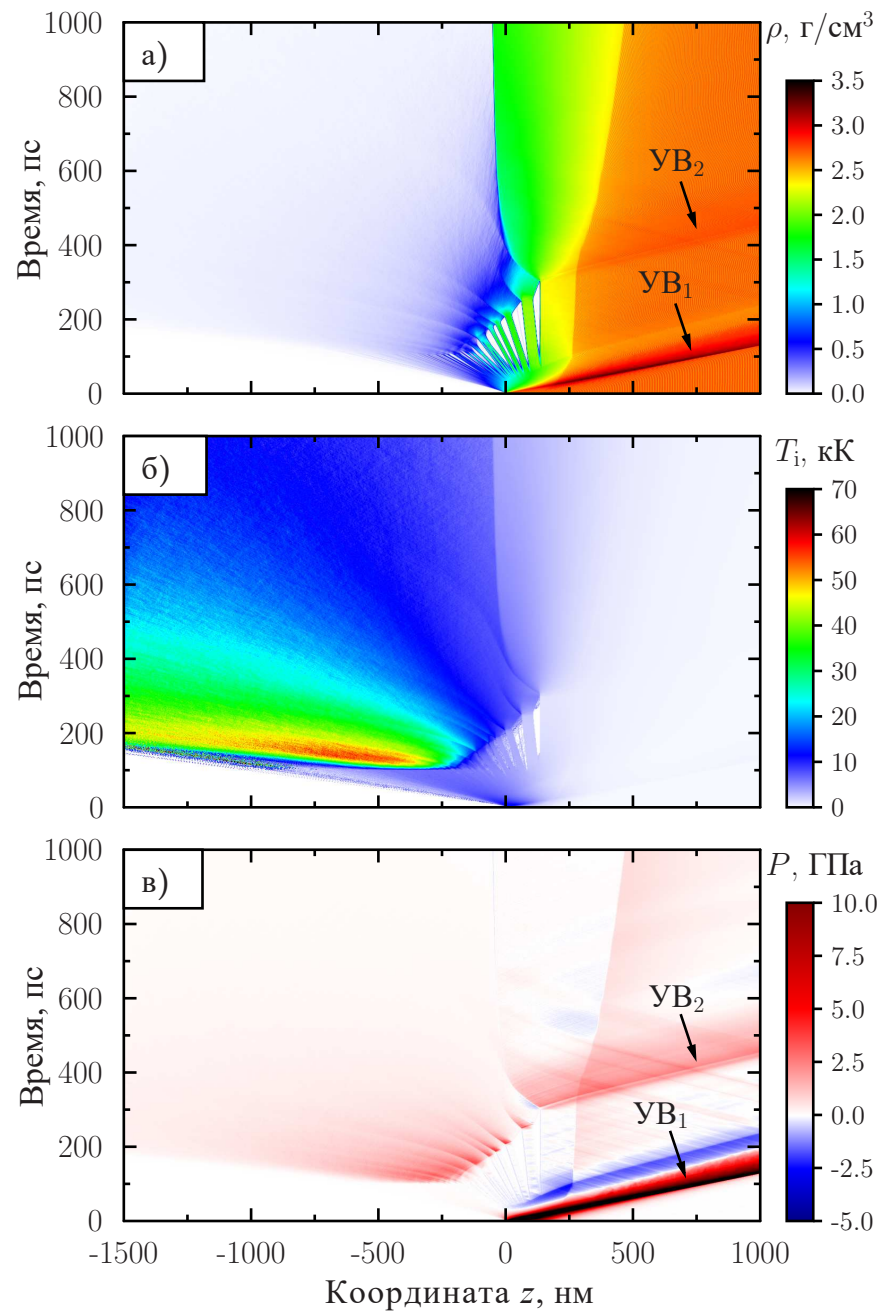


Рис. 3.7. То же самое, что на рис. 3.3, только задержка между импульсами 100 пс.



Можно более детально проследить динамику абляции, изучая конфигурации МД-системы, представленные на рис. 3.8, для случая задержки между импульсами 100 пс. Как видно из рис. 3.8 (а), в момент времени  $t = 7$  пс первым импульсом в мишени формируется область высокого давления  $0 \lesssim z \lesssim 150$  нм. На глубине около 40 нм располагается неподвижная область, в которой  $z$ -компонента дрейфовой скорости  $w \approx 0$  (ионы белого цвета), это примерно соответствует максимуму давления. Более глубокие ионы имеют дрейфовую скорость порядка 1 км/с (они имеют цвет оттенков красного), соответствующую начальной стадии формирования УВ, а ионы, близкие к свободной поверхности ( $z \lesssim 40$  нм), двигаются в противоположную сторону со скоростью около  $-3$  км/с (они имеют цвет оттенков синего), и эти ионы формируют ВР (поверхностный слой мишени толщиной 25 нм — ионы с наиболее интенсивной синей окраской — двигаются с более высокой скоростью,  $w \approx -5$  км/с). На рис. 3.8 (б), при  $t = 47$  пс, можно наблюдать режим разгрузки, когда область  $-300 \lesssim z \lesssim 200$  нм перемещается из толщи мишени в отрицательном направлении оси  $z$ , и минимум давления достигается при  $z \approx 100$  нм. В этот момент в рассматриваемой области завершается релаксация давления, и его амплитуда ниже 1 ГПа. Следующая конфигурация (рис. 3.8 (в)) соответствует моменту времени  $t = 93$  пс, близкому к приходу второго импульса (второй импульс воздействует 100 пс спустя после первого импульса), а взаимодействие второго лазерного импульса с размытым профилем плотности происходит более эффективно по сравнению с первым импульсом, который взаимодействует с твердой мишенью при нормальных условиях. Также на рис. 3.8 (в), видно формирование пор внутри «растянутого» расплава в области  $-300 \lesssim z \lesssim 150$  нм в результате взаимодействия двух ВР. Максимум поглощения второго импульса располагается на расстоянии около 500 нм от первоначальной свободной поверхности (рис. 3.1, также см. рост температуры на рис. 3.7 (б), при  $t \approx 100$  пс). Эта зона высокого дав-

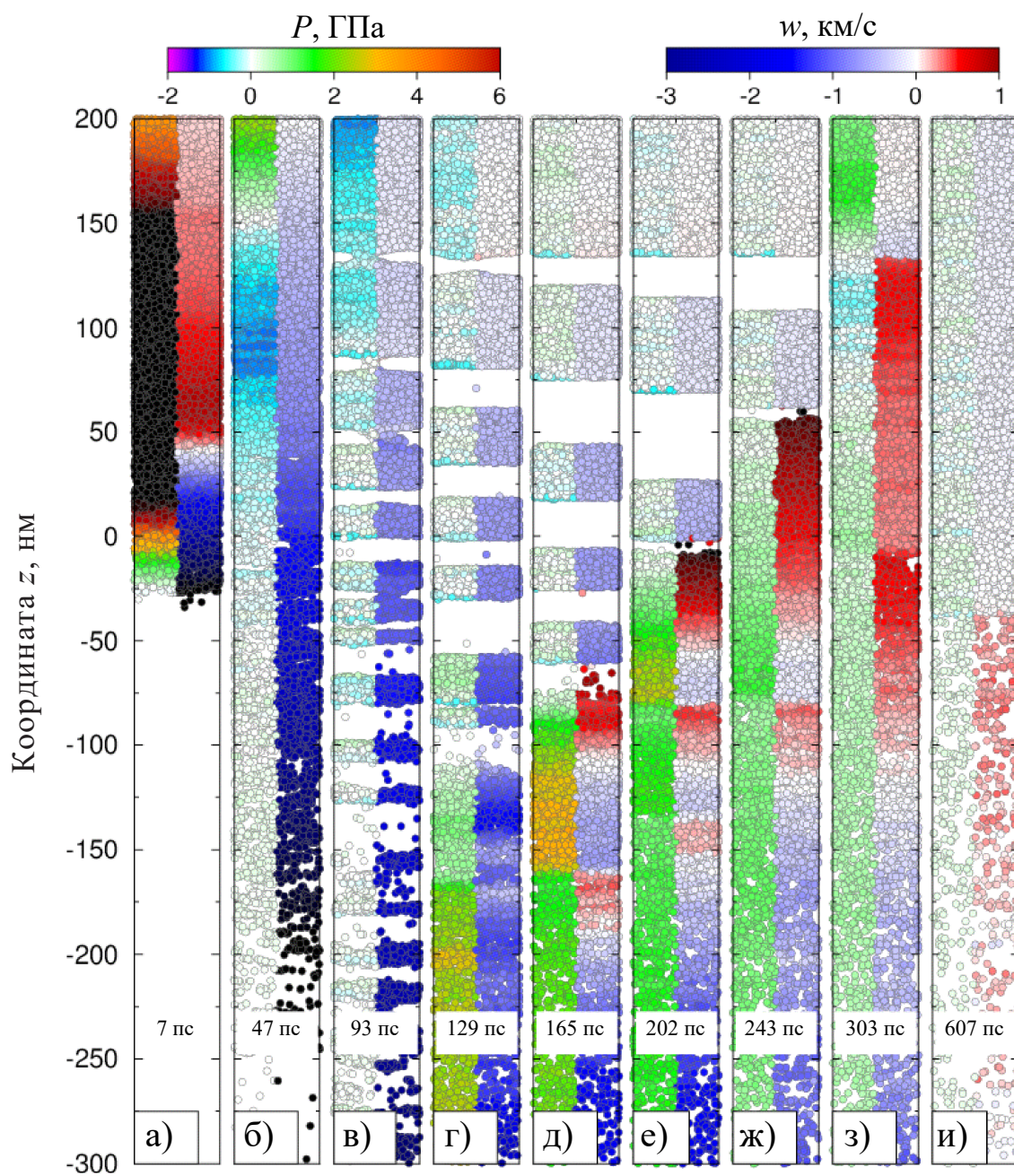


Рис. 3.8. Конфигурации системы ионов для случая 100 пс задержки между импульсами: а) 7 пс; б) 47 пс; в) 93 пс; г) 129 пс; д) 165 пс; е) 202 пс; ж) 243 пс; з) 303 пс; и) 607 пс. Цвета ионов в левой половине каждого рисунка соответствуют значениям давления  $P$ , цвета ионов справа соответствуют значениям их гидродинамической (дрейфовой) скорости  $w$  в направлении оси  $z$ .

ления порождает  $УВ_2$  и  $ВР_2$ . Продвижение  $УВ_2$  в момент времени  $t = 129$  пс можно наблюдать на рис. 3.8 (г), ее фронт располагается при  $z \approx -200$  нм. На этом рисунке можно увидеть начальную стадию закрытия пор под воздействием  $УВ_2$ . Поскольку вещество получает дополнительный импульс в положительном направлении оси  $z$  из-за воздействия  $УВ_2$ , на рис. 3.8 (д),  $t = 165$  пс, можно увидеть, как ионы замедляются, также заметны две группы ионов, имеющие дрейфовую скорость в положительном направлении (при  $z \approx -170$  нм и  $z \approx -70$  нм). Продвижение  $УВ_2$  по направлению к мишени в конечном счете генерирует вытянутую область, в которой ионы двигаются в положительном направлении оси  $z$  со скоростями  $w \approx 1$  км/с, что приводит к схлопыванию пор (рис. 3.8 (е),  $t = 202$  пс, и (ж),  $t = 243$  пс). Затем, при  $t = 303$  пс  $УВ_2$  достигает координаты  $z \approx 150$  нм, и поры, появившиеся в результате воздействия первого импульса, исчезают (рис. 3.8 (з)). Наконец, после тепловой и механической релаксации наблюдается формирование новой поверхности мишени при  $z \approx -50$  нм, хотя процесс осаждения ионов в это время все еще продолжается (ионы, имеющие красный цвет на рис. 3.8 (и),  $t = 607$  пс), хотя основная стадия формирования кратера уже завершена.

### 3.3.6. 200 пс между импульсами

При задержке между импульсами 200 пс энергия второго импульса поглощается в плюме при  $-1300 \lesssim z \lesssim -700$  нм. В этой же области берет начало  $УВ_2$ , ее распространение отчетливо видно на рис. 3.9 (а). Скорость этого возмущения во временном интервале 200–500 пс составляет примерно 1.7 км/с, и последующий повторный нагрев вещества, слой за слоем, приводит к разрушению всех жидких слоев. Ко времени 500 пс плюм состоит из плазмы при температуре  $T_i \approx T_e \gtrsim 10$  кК. В это время происходит объединение плюма с жидким слоем мишени толщиной  $\approx 150$  нм (рис. 3.9 (а)),

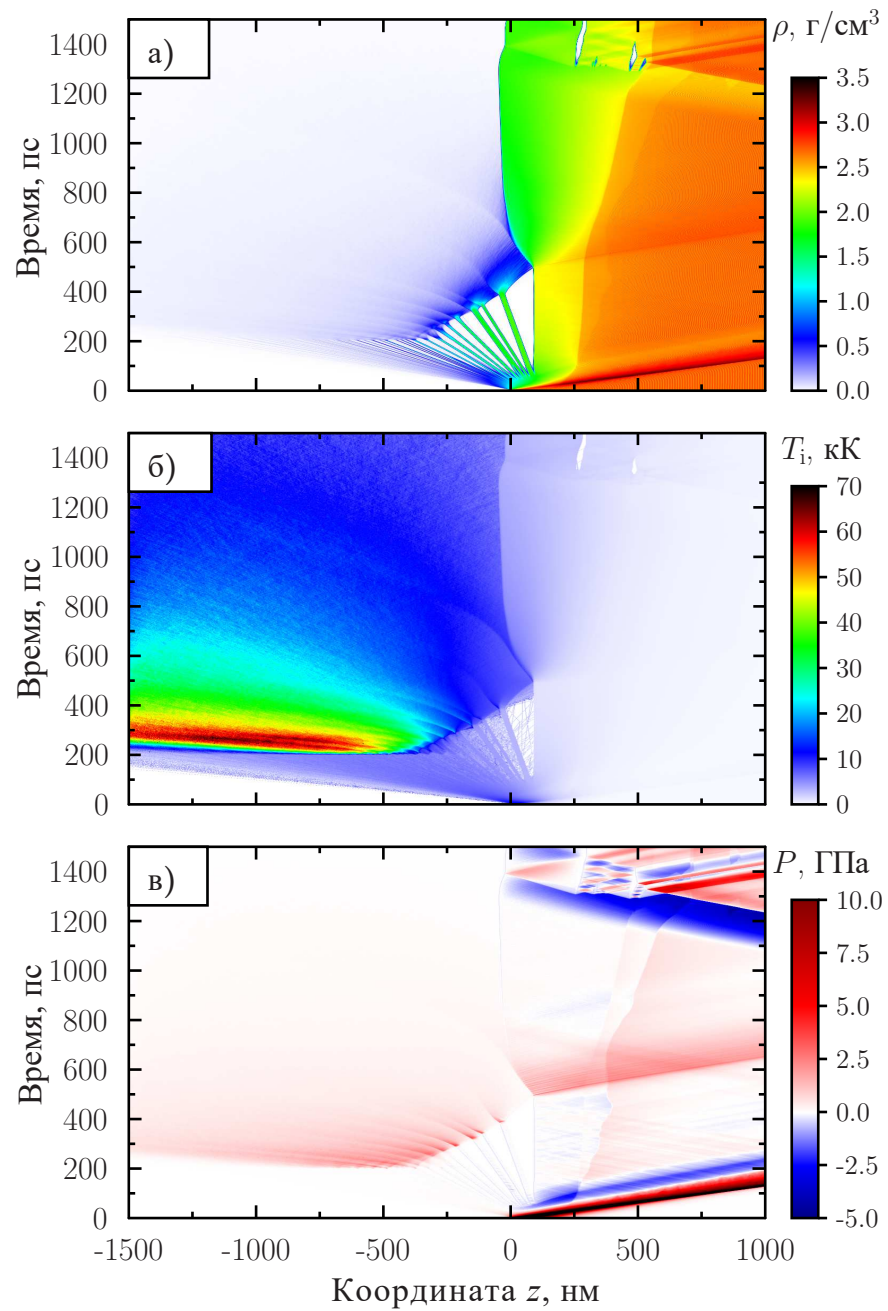


Рис. 3.9. То же самое, что на рис. 3.3, только задержка между импульсами 200 пс.

момент времени 500 пс). Гетерогенное плавление наблюдается вплоть до момента 1200 пс, после которого картина течения возмущается из-за прихода ВР, которая образовалась на правой границе мишени при  $z = 4$  мкм.

### 3.4. Общий обзор результатов моделирования

Таким образом, можно прийти к выводу, что существуют два механизма, которые ответственны за подавление абляции при двухимпульсном облучении металлической мишени. Первый механизм связан с подавлением ВР<sub>1</sub>, он отвечает за процесс гомогенной нуклеации в жидком слое мишени под действием растягивающего напряжения. Этот механизм доминирует при задержках  $\tau_D \lesssim 20$  пс, и он приводит к монотонному уменьшению глубины кратера. В случае задержек, больших, чем 50 пс, успевают произойти механическая фрагментация вещества из-за воздействия первого импульса, а второй импульс создает плазму высокого давления перед аблированными жидкими слоями, что вызывает осаждение большей части аблированного вещества обратно на мишень. В этом случае глубина абляции получается даже меньше, чем в случае одиночного импульса. Стоит отметить, что второй механизм может также инициировать «эффект разбрызгивания»<sup>1</sup> на более поздних временах, но его невозможно воспроизвести в рамках используемой квазиодномерной модели.

Динамика повторного нагрева плазмы важна для повышения интенсивности спектральных линий в методе ЛИЭС (раздел 5 **Обзора литературы**). На рис. 3.10 показана зависимость интегрального поглощения плазменным плюмом энергии второго импульса от задержки между импульсами. Замет-

---

<sup>1</sup> Под «эффектом разбрызгивания» здесь понимается то, что в экспериментальной постановке давление вещества в центре получившегося кратера больше, чем по краям, и из-за этого расплав движется к краям и может выплескиваться наружу.

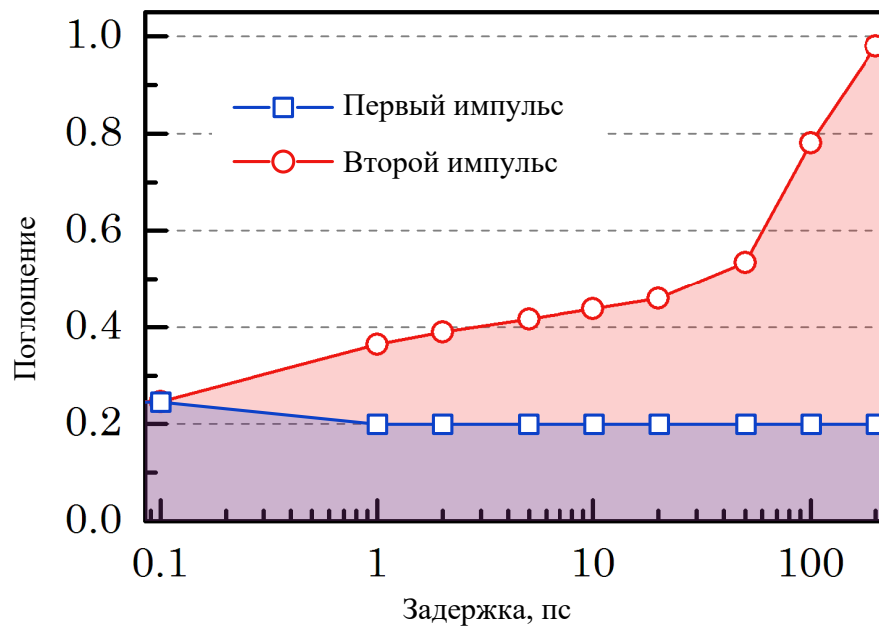


Рис. 3.10. Зависимость интегрального поглощения первого ( $\square$ ) и второго ( $\circ$ ) импульсов от задержки между импульсами. Интегральная плотность излучения каждого импульса  $2 \text{ Дж/см}^2$ .

но, что с ростом задержки от 0 до 200 пс растет доля поглощенной энергии с  $\approx 25\%$  до  $98\%$ . В результате более полного поглощения с ростом задержки можно ожидать роста максимальной температуры. На рис. 3.11 представлена максимальная температура электронов, которая достигается сразу после воздействия второго импульса (маркеры « $\circ$ »). На этом же рис. 3.11 показана электронная температура через 100 пс после прохождения второго импульса (маркеры « $\bullet$ »), заметно, что при изменении задержки между импульсами от 0 до 200 пс электронная температура в плюме возрастает почти в три раза.

На рис. 3.12 приведена зависимость глубины абляции от длины задержки между импульсами (точные значения глубины абляции, полученные с использованием ГиКАМ, приведены в виде таблицы в **Приложении В**). Случай для  $\tau_D = 0$  пс соответствует одиночному импульсу с интегральной плотностью излучения  $2 \times F = 4 \text{ Дж/см}^2$ . Далее, с ростом задержки глубина абляции начинает уменьшаться, и при задержке  $\approx 30$  пс глубина абляции

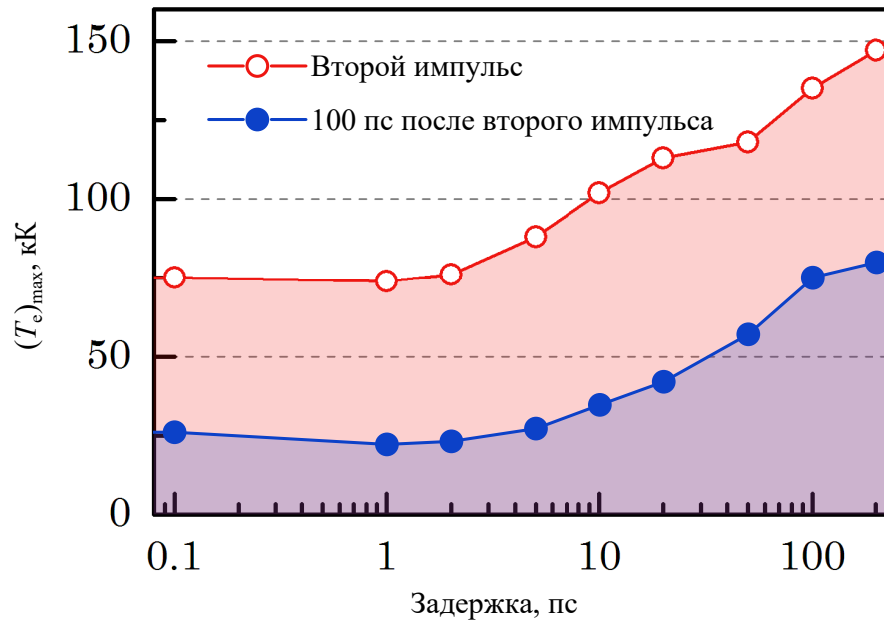


Рис. 3.11.  $\circ$  — максимум электронной температуры,  $\bullet$  — электронная температура через 100 пс после прохождения второго импульса для различных задержек между импульсами. Интегральная плотность излучения каждого импульса  $2 \text{ Дж/см}^2$ .

становится сравнимой с глубиной, которая получается при воздействии однократного импульса с интегральной плотностью  $F = 2 \text{ Дж/см}^2$ . При более длинных задержках глубина абляции продолжает монотонно уменьшаться и достигает значений, меньших, чем глубина абляции при одноимпульсном воздействии, что и наблюдалось в экспериментах [97, 99]. Следует отметить, глубина абляции определялась после окончания моделирования путем точного вычисления количества ионов, покинувших мишень; таким образом, осаждение ионов обратно на поверхность мишени учитывалось автоматически (см. Приложение Б и формулу (Б.1)). ГиКАМ является квазиодномерной и не учитывает поперечных эффектов, таких как распределение интенсивности лазерного излучения внутри пятна, неомогенное расширение плюма, поверхностные волны. Помимо этого, вычисления ограничены временем 1 нс. В эксперименте во время формирования кратера очень важна роль трехмерных эффектов; окончательная форма и глубина кратера зависит от рекристалли-

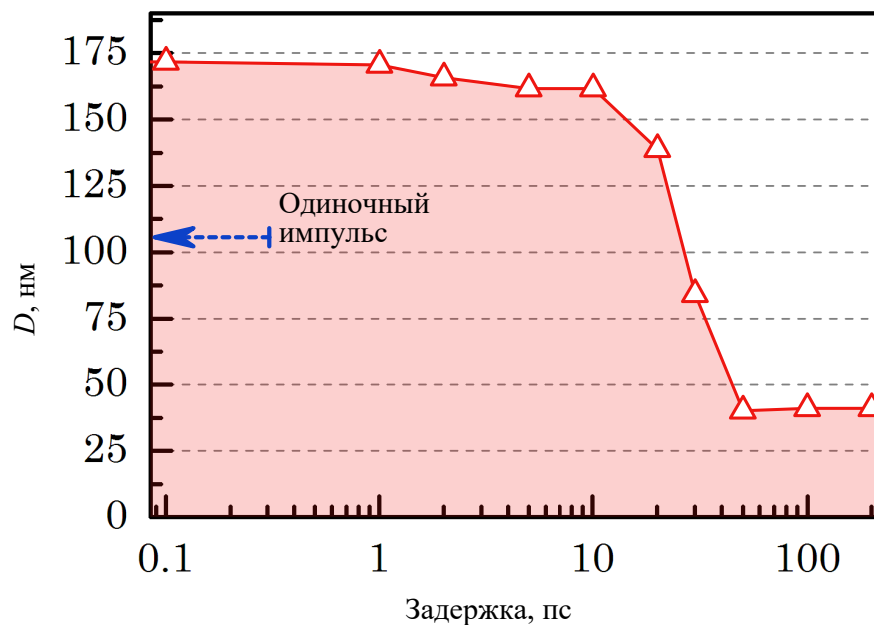


Рис. 3.12.  $\triangle$  — зависимость глубины абляции алюминия  $D$  от задержки между двумя последовательными импульсами с интегральной плотностью излучения каждого  $2 \text{ Дж/см}^2$ . Синей стрелкой показана глубина абляции при одиночном импульсе с той же интегральной плотностью излучения  $2 \text{ Дж/см}^2$ . При построении данного графика использовались значения, приведенные в таблице В.1 Приложения В.

зации расплава, выброса расплава из центра кратера и термокапиллярных эффектов [168].

### 3.5. Выводы к главе 3

1. Произведен ряд моделирований воздействия двойного импульса на алюминиевую мишень, и в результате анализа полученных данных показано, что вторичный нагрев плазмы достигает максимума при задержках между импульсами  $\gtrsim 100$  пс, тогда как эффективность поглощения второго импульса изменяется от 25% при задержке 0 пс до 98% при задержке 200 пс.
2. При задержках  $\gtrsim 20$  пс наблюдается эффект экранирования плазмой,



и второй импульс не достигает мишени — этот результат близок к результату, наблюдаемому в экспериментах [97, 103].

3. С ростом задержки от минимальной до 100–200 пс наблюдается трехкратное увеличение электронной температуры плюма, что объясняет рост светимости плюма, зафиксированный в эксперименте.
4. Уменьшение глубины кратера, наблюдаемое и в экспериментах, и в настоящем моделировании, происходит в случае задержек  $\lesssim 20$  пс из-за подавления фрагментации в ВР, вызванной первым импульсом, а в случае задержек  $\gtrsim 50$  пс — из-за осаждения внутренних аблированных слоев ионов вещества обратно на мишень.
5. Полученные результаты можно использовать при дальнейшем развитии таких приложений, как ЛИЭС (раздел 5 **Обзора литературы**) и MALDI (Matrix-assisted laser desorption/ionization, Матрично-активированная лазерная десорбция/ионизация), при разработке методов лазерного наноструктурирования поверхностей или применения лазера для получения наночастиц вещества.

Результаты главы 3 опубликованы в работах [163, 169].

## Заключение

В настоящей диссертационной работе были получены следующие основные результаты:

1. Создана улучшенная версия гибридного метода — ГиКАМ — путем развития модели Иванова–Жигиля. ГиКАМ позволяет более реалистично моделировать воздействие на металл как одиночного импульса высокой интенсивности (по сравнению с порогом абляции), так и двойного импульса.
2. ГиКАМ удовлетворительно согласуется как с гидродинамическим моделированием, так и с экспериментальными данными в широком диапазоне интегральной плотности падающего излучения лазера, от 0.1 до 20 Дж/см<sup>2</sup>.
3. ГиКАМ требует значительных вычислительных ресурсов, но эта модель точно воспроизводит все процессы на атомарном уровне, в том числе динамику фрагментации мишени и нуклеацию в метастабильной жидкой фазе.
4. При двухимпульсном воздействии эффективность поглощения второго импульса изменяется от 25% при задержке между импульсами 0 пс до 98% при задержке 200 пс.
5. При задержках  $\gtrsim 20$  пс наблюдается эффект экранирования плазмой, и второй импульс не достигает мишени, что подтверждается в эксперименте.
6. С ростом задержки между импульсами от минимальной до 100–200 пс наблюдается увеличение электронной температуры плюма, что объясняет рост светимости плюма, зафиксированный в эксперименте.

7. Уменьшение глубины кратера, наблюдаемое и в эксперименте, и в моделировании, происходит в случае задержек  $\lesssim 20$  пс из-за подавления фрагментации в волне разгрузки, вызванной первым импульсом, а в случае задержек  $\gtrsim 50$  пс — из-за осаждения внутренних аблированных слоев ионов вещества обратно на мишень.

Материалы диссертации опубликованы в работах: [1–29, 160–163, 169, 170].

## Приложение А

### Алгоритм моделирования ГиКАМ

Для моделирования электронной жидкости в одномерном приближении вводится равномерная одномерная сетка по оси  $z$ . Ячейки этой сетки нумеруются  $j = 1, \dots, M$  (всего  $M$  ячеек)<sup>1</sup>. В каждой ячейке с номером  $j$  присутствует  $N_j \geq 0$  ионов, размеры ячейки по осям  $x$  и  $y$  (в поперечном направлении) равны соответствующим размерам области моделирования, объем всех ячеек равен  $V$ , температура ионов в ячейке  $(T_i)_j$ , электронов —  $(T_e)_j$ , скорость движения центра масс ионов в ячейке  $\mathbf{v}_j^c$ .

Для практической реализации модели использовалась свободно распространяемый программный комплекс МД-моделирования LAMMPS [146], написанный на языке C++, в который вносились необходимые модификации в соответствии с алгоритмом. Вначале создавалась последовательная версия алгоритма, затем, после проведения тестовых расчетов, была разработана параллельная версия. Далее в данном приложении будет приведено описание параллельного алгоритма моделирования.

#### А.1. Параллельный алгоритм

Однопроцессорные шаги выполняются на процессе с номером 0 (`pid=0`). Если в однопроцессорном шаге задается или вычисляется распределение какой-либо величины по ячейкам (что в реальности соответствует профилю этой величины по оси  $z$ ), то это распределение заносится в соответствующий

---

<sup>1</sup> Хотя в языке C++ предусмотрена нумерация элементов массивов от 0, для удобства восприятия формул в настоящем описании алгоритма, как и в основном тексте диссертации, применяется нумерация элементов массива ячеек сетки от 1. В вычислительной программе элементы всех массивов нумеруются от 0.

массив, он хранится и используется только в процессе с номером 0.

Ниже приведена полная версия параллельного алгоритма моделирования, в которой присутствуют все имеющиеся на данный момент особенности ГиКАМ. В алгоритме учтено, что могут существовать вычислительные ячейки, попадающие на несколько подобластей, и, следовательно, сбор статистики по атомам внутри них требует пересылки информации между процессами.

1. Запускаются локальные копии кода на всех выделенных под задачу узлах/процессорах, общее количество процессов `proc_size`, их идентификаторы `pid=0, \dots, (proc_size-1)`. Задается размер области моделирования (1.10)  $0 \leq x \leq L_x, 0 \leq y \leq L_y, L_{\text{left}} \leq z \leq L_{\text{right}}$ . Задается толщина мишени  $L_z$ . Подобласть (1.11)  $0 \leq x \leq L_x, 0 \leq y \leq L_y, 0 \leq z \leq L_z$  заполняется атомами металла, расставленными в кристаллическую решетку с заданными параметрами. Производится дискретизация пространства вдоль направления  $z$  — вводится пространственная сетка с нумерацией ячеек  $j = 1, \dots, M$  с шагом  $\Delta z = (L_{\text{right}} - L_{\text{left}})/M$ . Задается максимальное и минимальное ограничение на переменный временной шаг  $\Delta t_{\text{MD}}$  (§1.5.5). Задается полное время моделирования  $t_{\text{END}}$ . Задается потенциал взаимодействия атомов в форме ЕАМ (раздел 1.3). Задаются параметры импульсов лазера и другие параметры, требуемые в данной постановке задачи (разделы 2.1, 3.1). Производится инициализация переменных, установка размеров массивов во всех процессах, чтение и пересылка различных настроек программы и вычисленных констант (например, шага пространственной сетки) на все процессы.
2. Параллельный шаг. Задается начальное распределение ионов массой  $m_i$  каждый, их координат  $\mathbf{r}_i$  и скоростей  $\mathbf{v}_i = (u_i, v_i, w_i)$ . Производится разбиение области моделирования на подобласти для равномерной загрузки процессов. Производится максвеллизация скоростей таким об-

разом, чтобы средняя ионная температура по всему образцу была равна заданному значению  $(T_i)^0$  (все процедуры внутри данного шага 2 реализованы средствами LAMMPS [146]).

3. Параллельный шаг. Вычисляются значения скоростей центров масс  $\mathbf{v}_j^c$  ионов в ячейках (1.14), затем вычисляются тепловые скорости ионов  $\mathbf{v}_i^T$  (1.13) и суммируются величины  $m_i(\mathbf{v}_i^T)^2$  в каждой ячейке. Поскольку одна ячейка может иметь пересечения с подобластями нескольких процессов, то для суммирования в ячейках применяется процедура библиотеки MPI

`MPI_Allreduce(&arrayLocal[0], &arrayAll[0], ...MPI_SUM...)`.

Первый массив `arrayLocal` заполняется локальным процессом, второй массив `arrayAll` получается суммированием соответствующих элементов всех массивов `arrayLocal`. На данном шаге последовательно выполняются следующие процедуры:

- 3.1. Вычисляется количество ионов в ячейках  $N_j$ , используются массивы `nAtomsLocal[M]`, `nAtomsAll[M]`.
- 3.2. Заполняются значения массивы компонент суммарного импульса в ячейках  $\sum_{i=1}^{N_j} m_i u_i$ ,  $\sum_{i=1}^{N_j} m_i v_i$ ,  $\sum_{i=1}^{N_j} m_i w_i$  и массив масс ячеек  $\sum_{i=1}^{N_j} m_i$  (используются массивы `muLocal[M]`, `muAll[M]`, `mvLocal[M]`, `mvAll[M]`, `mwLocal[M]`, `mwAll[M]`, `mLocal[M]` и `mAll[M]`).
- 3.3. Вычисляются  $\mathbf{v}_j^c = (u_j^c, v_j^c, w_j^c) = \sum_{i=1}^{N_j} (m_i \mathbf{v}_i) / \sum_{i=1}^{N_j} m_i$  — скорости центров масс ячеек (1.14).
- 3.4. Поскольку известны скорости центров масс ячеек, с использованием выражения (1.13) для тепловых скоростей ионов вычисляется

распределение по ячейкам величин

$$\sum_{i=1}^{N_j} m_i (\mathbf{v}_i^T)^2 = \sum_{i=1}^{N_j} m_i ((u_i - u_j^c)^2 + (v_i - v_j^c)^2 + (w_i - w_j^c)^2)$$

(заполняются массивы `mvT2Local [M]` и `mvT2All [M]`), это распределение понадобится для расчета распределения температур по ячейкам на шаге 5.

4. Однопроцессорный шаг. Задается начальное распределение температуры электронов  $(T_e)_j$  по ячейкам. Температура электронов в каждой ячейке, где есть ионы вещества, соответствует начальной ионной температуре образца:  $(T_e)_j = (T_i)^0$  (шаг 2). Если в какой-либо ячейке вещество отсутствует, то в этой ячейке устанавливается  $(T_e)_j = 0$ .
5. Однопроцессорный шаг. С использованием результатов шага 3 вычисляется распределение ионной температуры (1.15) по ячейкам:

$$(T_i)_j = \frac{1}{3k_B N_j} \sum_{i=1}^{N_j} m_i (\mathbf{v}_i^T)^2.$$

Если в какой-либо ячейке вещество отсутствует, то в этой ячейке устанавливается  $(T_i)_j = 0$ .

6. Однопроцессорный шаг. С использованием распределения массы по ячейкам, полученного после шага 3, вычисляется распределение плотности по ячейкам (1.17):  $\rho_j = \sum_{i=1}^{N_j} m_i / V$ , где  $V$  — объем одной ячейки.
7. Однопроцессорный шаг. Вычисляется<sup>2</sup> начальное распределение энергии электронов по ячейкам:  $(\rho_j, (T_e)_j) \rightarrow (\epsilon_e)_j$ .

---

<sup>2</sup> В данном приложении при описании параллельного алгоритма будет использоваться следующее обозначение:  $(\rho_j, (T_e)_j) \rightarrow (\epsilon_e)_j$  означает, что во всех ячейках вычисляется величина  $(\epsilon_e)_j$  по известным величинам  $\rho_j$  и  $(T_e)_j$  согласно ПЭ-УрС (раздел 1.3, описание УрС), и значения в массиве, соответствующем этой вычисляемой величине, заменяются новыми значениями, вычисленными на текущем шаге.

8. Начало главного цикла моделирования, каждая итерация которого соответствует одному временному шагу.
- 8.1. Однопроцессорный шаг. В каждой ячейке вычисляется средний заряд ионов:  $(\rho_j, (T_e)_j) \rightarrow Z_j$ , затем согласно широкодиапазонной модели (§1.5.3) вычисляется распределение по ячейкам коэффициента электрон-ионного обмена  $\gamma_j(\rho_j, (T_i)_j, (T_e)_j, Z_j)$  (1.31).
- 8.2. Однопроцессорный шаг. Вычисляется распределение по ячейкам коэффициента трения, входящего в поправку к силе  $\xi_j$  (§1.5.1). Если в ячейке более одного иона, то  $\xi_j$  рассчитывается согласно (1.16); если в ячейке один ион или ячейка пустая, то в ней устанавливается  $\xi_j = 0$  (понятие термодинамической температуры, от которой зависит  $\xi_j$ , в ячейке с одним ионом лишено смысла).
- 8.3. Однопроцессорный шаг. Производится вывод в файлы распределения по ячейкам следующих величин: температуры ионов  $(T_i)_j$ , температуры электронов  $(T_e)_j$ , плотности  $\rho_j$ .
- 8.4. Однопроцессорный шаг.  $(\rho_j, (T_e)_j) \rightarrow Z_j$ , затем согласно широкодиапазонной модели (§1.5.3) вычисляется распределение по ячейкам комплексного значения диэлектрической проницаемости  $\varepsilon_j(\omega_L, \rho_j, (T_i)_j, (T_e)_j, Z_j)$  (1.27),  $\omega_L$  — частота лазерного излучения, затем, с использованием заданных на шаге 1 параметров лазерного импульса (частоты, интенсивности, поляризации<sup>3</sup>), вычисляется поглощение энергии от лазерного импульса в каждой ячейке  $S_j$  согласно (1.39) на рассчитанном профиле диэлектрической проницаемости.

---

<sup>3</sup> Хотя в настоящей диссертационной работе поляризация не важна, поскольку излучение падает на поверхность мишени нормально, в программе предусмотрена возможность задания и учета в расчетах как угла падения излучения, так и его поляризации для реализации возможных планов на будущее.



- 8.5. Однопроцессорный шаг. Рассчитывается временной шаг моделирования  $\Delta t_{\text{MD}}$  (§1.5.5). На текущей итерации цикла временной шаг моделирования будет общим для интегрирования уравнений (1.12) движения ионов (шаг 8.9) и уравнения (1.18) энергии электронов (шаги 8.7, 8.18).
- 8.6. Однопроцессорный шаг. Производится вывод в файлы поглощенной энергии от лазера, а также энергии ионной и электронной подсистем для контроля сохранения энергии путем сравнения полной энергии системы на текущей итерации (на текущем временном шаге моделирования) с начальной энергией системы. Расчет энергии ионов реализован средствами LAMMPS [146]; расчет энергии электронов производится путем суммирования значений их энергии, полученных на шаге 7 либо 8.18, по всем ячейкам; а расчет общей энергии, поглощенной от лазера, производится путем суммирования вычисленных на шаге 8.4 значений  $S_j$  по всем ячейкам и итерациям главного цикла моделирования (временным шагам), сделанным на текущий момент.
- 8.7. Однопроцессорный шаг. В каждой ячейке энергия электронов корректируется из-за энергообмена с ионами и из-за поглощения энергии от лазерного импульса согласно уравнению (1.22):

$$(\epsilon_e)_j^* = (\epsilon_e)_j - \frac{\Delta t_{\text{MD}}}{\rho_j} (\gamma_j ((T_e)_j - (T_i)_j) - S_j).$$

- 8.8. Параллельный шаг. Производится пересылка вычисленного на шаге 8.2 распределения величины  $\xi_j$  по ячейкам из нулевого процесса во все остальные для последующего расчета полных сил.
- 8.9. Параллельный шаг. На каждом процессе для каждого иона вычисляются силы  $\mathbf{f}_i$  (1.9), действующие на него, определяемые потенци-

алом взаимодействия (раздел 1.3). Для вычисления всех сил к списку «своих» ионов добавлены «чужие» ионы, окружающие подобласть и принадлежащие другим подобластям (другим процессам). Этот метод аналогичен использованию «ghost cells»<sup>4</sup> в ГДМ. Производится корректировка сил на величину  $\xi_j m_i \mathbf{v}_i^T$ , производится интегрирование уравнений движения ионов (1.12) с шагом по времени  $\Delta t_{\text{MD}}$ , в результате вычисляются новые координаты и скорости ионов (вычисление сил по потенциалу, а также координат и скоростей ионов согласно алгоритму Верле [145] реализовано средствами LAMMPS [146]). Определяется и суммируется по всем процессам (с использованием массивов, аналогично тому, как это сделано на шаге 3) количество ионов, переместившихся через границы ячеек — величины  $N_{j-1/2}^+$ ,  $N_{j-1/2}^-$ ,  $N_{j+1/2}^+$ ,  $N_{j+1/2}^-$  (см. обозначения к формуле (1.23)).

8.10. Производится вывод диагональных компонент тензора напряжений  $\sigma_j^{11}$ ,  $\sigma_j^{22}$ ,  $\sigma_j^{33}$  в каждой ячейке (данная процедура реализована средствами LAMMPS [146]), что требуется для подсчета распределения давления ионов по ячейкам. Холодная компонента давления ионов определяется как  $P_j^C = -\frac{1}{3}(\sigma_j^{11} + \sigma_j^{22} + \sigma_j^{33})$ . Для получения полного ионного давления к ней необходимо прибавить тепловую компоненту:  $P_j = P_j^C + P_j^H$ , где  $P_j^H = N_j k_B (T_i)_j / V$  — тепловая компонента.

---

<sup>4</sup> Под методом «ghost cells» в ГДМ понимается добавление «виртуальных» ячеек, например, на границе области, в которых будет применен определенный заранее вычислительный шаблон. Например, есть жесткая стенка. Есть самая левая ячейка внутри области, с номером 0. Давление на границе рассчитывается как полусумма давлений в соседних ячейках, а слева нет «реальной» ячейки. Чтобы избежать неоправданного усложнения вычислительного алгоритма путем введения в него дополнительных условий, можно создать слева «виртуальную» ячейку, в нее скопировать данные из ячейки 0, и далее выполнять процедуры согласно текущему алгоритму.

- 8.11. Параллельный шаг. Выполняются все те же операции, что и на шаге 3 (вычисляется распределение по ячейкам сумм масс ионов  $\sum_{i=1}^{N_j} m_i$  и величин  $\sum_{i=1}^{N_j} m_i (\mathbf{v}_i^T)^2$ , а также осуществляется суммирование соответствующих элементов массивов по всем процессам).
- 8.12. Однопроцессорный шаг. Выполняются все те же операции, что и на шаге 5 (с использованием результатов шага 8.11 вычисляется распределение ионной температуры  $(T_i)_j$  по ячейкам).
- 8.13. Однопроцессорный шаг. Корректируется энергия электронов, с учетом движения ионов: вычисляется  $(\epsilon_e)_j^*$  согласно уравнению (1.23), в котором эта величина обозначена как  $\epsilon_j^*$ .
- 8.14. Однопроцессорный шаг. Выполняются все те же операции, что и на шаге 6 (с использованием результатов шага 8.11, вычисляется распределение плотности  $\rho_j$  по ячейкам).
- 8.15. Однопроцессорный шаг.  $(\rho_j, (\epsilon_e)_j) \rightarrow (T_e)_j$ .
- 8.16. Однопроцессорный шаг. Вычисляется распределение электронной теплоемкости по ячейкам:  $(\rho_j, (T_e)_j) \rightarrow (c_e)_j$ .
- 8.17. Однопроцессорный шаг.  $(\rho_j, (T_e)_j) \rightarrow Z_j$ , затем согласно широкодиапазонной модели (§1.5.3) вычисляется распределение по ячейкам электронной теплопроводности  $(\kappa_e)_j(\rho_j, (T_i)_j, (T_e)_j, Z_j)$  (1.30).
- 8.18. Однопроцессорный шаг. Поскольку известны электронные теплоемкость (шаг 8.16) и теплопроводность (шаг 8.17), а также текущее распределение электронных температур по ячейкам  $(T_e)_j$  (шаг 8.15), производится решение уравнения теплопроводности для электронов (1.24) методом прогонки [144] с шагом по времени  $\Delta t_{\text{MD}}$ , определяется распределение новых значений электронных температур по ячейкам  $(T_e)_j^*$ . Поскольку температура электронов из-

менилась, то необходимо скорректировать их энергию таким образом, чтобы закон сохранения энергии соблюдался, поэтому в массиве распределения энергии электронов по ячейкам значения энергии электронов  $(\epsilon_e)_j$  заменяются новыми значениями  $(\epsilon_e)_j^* = (\epsilon_e)_j + (c_e)_j((T_e)_j^* - (T_e)_j)/\rho_j$ . Затем  $(\rho_j, (\epsilon_e)_j^*) \rightarrow (T_e)_j$ .

- 8.19. Промоделированное время эволюции системы  $t$  приращивается на величину временного шага  $\Delta t_{\text{MD}}$  и его значение заменяется новым значением:  $t^* = t + \Delta t_{\text{MD}}$ . Если  $t^* < t_{\text{END}}$ , начинается следующая итерация главного цикла моделирования: происходит возврат к шагу 8.1.

9. Конец программы.

## A.2. Тест масштабируемости параллельного алгоритма

При параллельном расчете в рабочем режиме между процессами осуществлялась динамическая балансировка (процедура балансировки реализована средствами LAMMPS [146]), т.е. программно отслеживалось, чтобы все ионы были распределены между всеми процессами примерно поровну, такое перераспределение осуществлялось каждые 50-100 шагов по времени. При увеличении количества используемых ядер увеличивается скорость работы алгоритма моделирования. Для проверки увеличения скорости расчета в зависимости от количества ядер/процессов была произведена серия тестовых расчетов: на разном количестве ядер запускалась одна и та же задача, моделирующая алюминиевую мишень из 6251250 атомов со свободным пространством (вакуумом) с обеих сторон от мишени (рис. 1.4), с динамической балансировкой и без нее. В случае отсутствия динамической балансировки атомы распределялись по процессам примерно так, как показано на рис. A.1 (в дан-

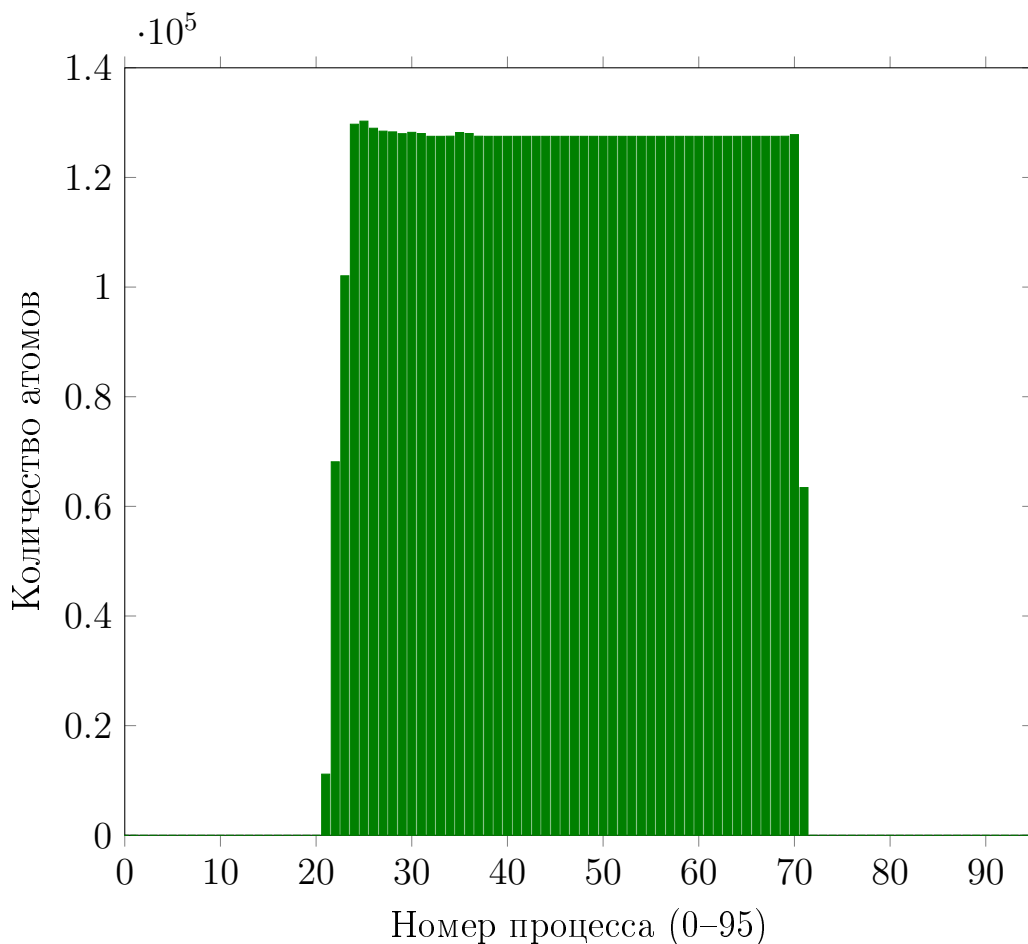


Рис. А.1. Гистограмма распределения атомов по процессам в случае запуска тестовой задачи по моделированию системы из 6251250 атомов алюминия на 96 процессах. Динамическая балансировка отсутствует.

ной постановке задача по моделированию системы, содержащей указанное количество атомов, запущена на 96 процессах), т.е. некоторые процессы простаивали или выполняли относительно малый объем вычислений, поэтому без динамической балансировки расчеты происходили медленнее. График зависимости скорости расчетов от количества используемых процессов для такой задачи, с применением балансировки и без нее, приведен на рис. А.2 (единица измерения скорости расчетов — количество МД-шагов, производимых за одну минуту времени расчетов).

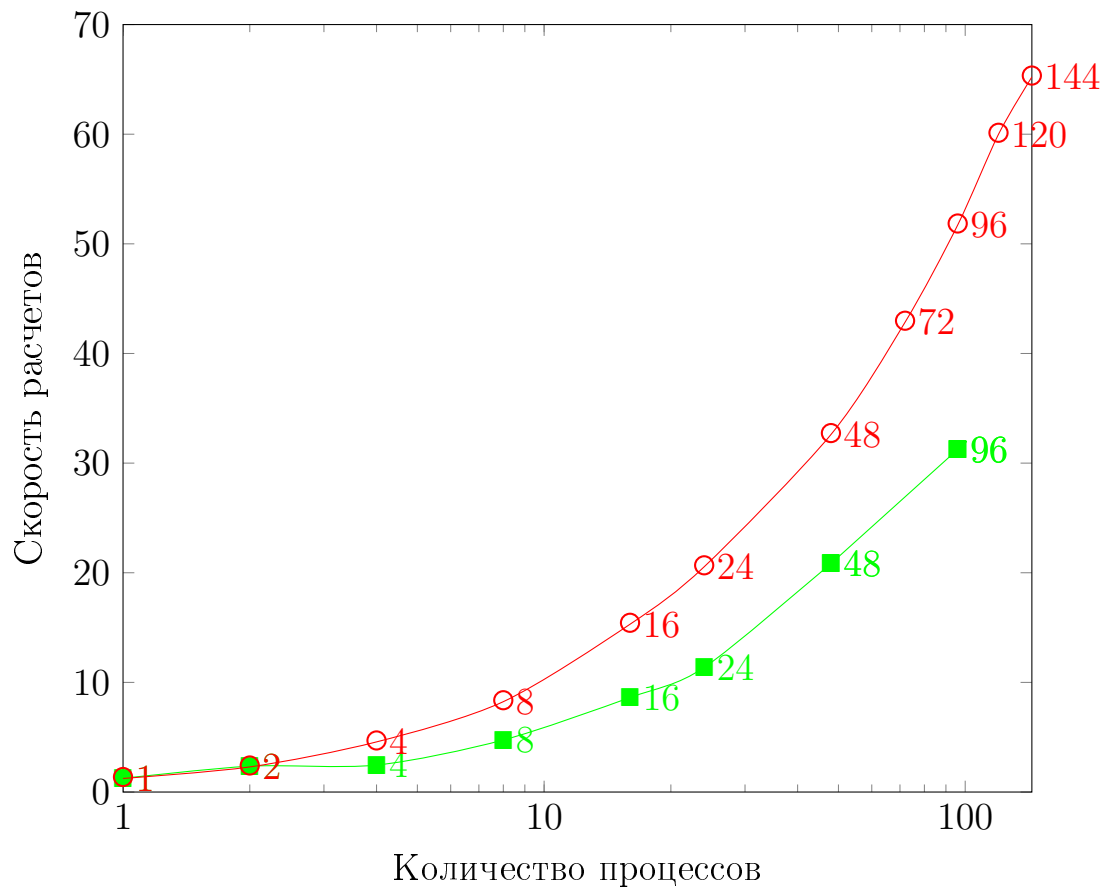


Рис. А.2. Зависимость скорости работы алгоритма ГиКАМ от количества используемых процессов, с динамической балансировкой и без балансировки: ■ — балансировка отсутствует, ○ — балансировка присутствует. Число около каждой точки — количество процессов.

## Приложение Б

### Зависимость глубины абляции алюминия от интегральной плотности падающего излучения при одноимпульсном воздействии

Значения зависимости глубины абляции алюминия от интегральной плотности падающего излучения при одноимпульсном воздействии приведены в таблице Б.1. Эти значения были получены с применением ГиКАМ.

Таблица Б.1. Значения зависимости глубины абляции алюминия  $D$  от интегральной плотности падающего излучения  $F$  при одноимпульсном воздействии.

$F$ , Дж/см <sup>2</sup>	$K$ , количество прогонов	$\langle D \rangle$ , нм	$\Delta D$ , нм
1	2	3	4
0.5	5	54	5
1.0	5	72	3
2.0	5	106	5
3.0	5	146	6
4.0	5	163	4
6.0	5	194	4
7.0	5	204	4
10.0	5	235	3
15.0	1	280	–
20.0	1	312	–

В столбце №1 таблицы указаны рассматриваемые в настоящей диссертационной работе значения интегральной плотности падающего на мишень излучения  $F$  (раздел 2.1), превышающие порог абляции.

Для каждого  $F \leq 10.0$  Дж/см<sup>2</sup> производилось  $K = 5$  прогонов моделирования (столбец №2 таблицы), для которых постановка задачи отличалась лишь одним параметром — временем  $t_0$  достижения максимума интенсивности лазерного импульса, считая от начала моделирования:  $t_0$  варьировалось от 2 до 6 пс, все остальные начальные условия были абсолютно идентичными. Результатом вариации  $t_0$  являлась стохастически изменяющаяся глубина абляции  $D$ , которая флуктуировала в окрестности некоторого среднего значения. Такая стохастическая зависимость поведения системы от большинства параметров при малом их возмущении является общим свойством любых классических МД-систем (§1.2.2). В столбце №3 таблицы указаны значения  $\langle D \rangle$ . Усреднение производилось по всем пяти прогонам для каждого из указанных выше  $F$ , эти средние значения глубины абляции использовались при построении графика, приведенного на рис. 2.7 (маркеры «●»). Величина  $\Delta D = \sigma / \sqrt{K}$  является значением статистической погрешности теоретического расчета глубины абляции, и эта погрешность приведена в столбце №4 таблицы ( $\sigma$  — среднеквадратическое отклонение, определенное по  $K$  прогонам:  $\sigma^2 = \langle D^2 \rangle - \langle D \rangle^2$ ). Погрешность  $\Delta D$  также нанесена на график на рис. 2.7 в виде черных меток поверх маркеров «●».

Для  $F = 15$  Дж/см<sup>2</sup> и  $F = 20$  Дж/см<sup>2</sup> проводилось одно моделирование, при котором максимум интенсивности импульса приходился на момент времени 2 пс.

Глубину абляции  $D$ , которую можно отождествлять с глубиной кратера, получаемого в эксперименте, можно определить, подсчитав после окончания моделирования количество атомов, покинувших мишень с облучаемой стороны:

$$D = \frac{m_{\text{abl}}}{\rho_0 s}, \quad (\text{Б.1})$$

где  $m_{\text{abl}}$  — аблированная масса (общая масса всех таких атомов),  $\rho_0$  — на-



чальная плотность алюминия,  $s$  — значение площади поперечного сечения моделируемого образца.

## Приложение В

### Зависимость глубины абляции алюминия при воздействии двойным импульсом от задержки между импульсами

Значения зависимости глубины абляции алюминия от задержки между двумя последовательными импульсами с интегральной плотностью излучения каждого 2 Дж/см<sup>2</sup> приведены в таблице В.1. Эти значения были получены с применением ГиКАМ и использовались при построении графика, приведенного на рис. 3.12 (маркеры « $\Delta$ »).

Таблица В.1. Значения зависимости глубины абляции алюминия при воздействии двойным импульсом от задержки между двумя импульсами.

Задержка $\tau_D$ , пс	Глубина абляции $D$ , нм
1	2
0	172
1	171
2	166
5	161
10	162
20	140
30	84
50	40
100	41
200	42

В столбце №1 таблицы указаны рассматриваемые в настоящей диссертации

ционной работе значения задержки  $\tau_D$  между двумя импульсами при двухимпульсном воздействии на мишень (раздел 3.1).

Для каждого значения  $\tau_D$  проводился один прогон моделирования.

Глубина абляции  $D$  (столбец №2 таблицы) определяется аналогично тому, как это делается в задаче по изучению одноимпульсного воздействия излучения на мишень (см. Приложение Б и формулу (Б.1)). При этом индуцированное вторым импульсом частичное осаждение аблированного вещества обратно на мишень учитывается автоматически, поскольку количество атомов, покинувших мишень с облучаемой стороны, определяется в конце моделирования, спустя длительное время после завершения основной стадии формирования новой поверхности.

## Список литературы

1. Фокин В. Б., Левашов П. Р., Поварницын М. Е., Хищенко К. В. Численное моделирование воздействия фемтосекундных лазерных импульсов на металлическую фольгу: гидродинамический и комбинированный подходы // Сборник тезисов 8-го Российского симпозиума «Проблемы физики ультракоротких процессов в сильно-неравновесных средах». Новый Афон, Абхазия: 2010. С. 22–23.
2. Фокин В. Б., Левашов П. Р., Хищенко К. В. Численное моделирование воздействия фемтосекундных лазерных импульсов на металлическую фольгу: гидродинамический и комбинированный подходы // Труды 53-й научной конференции МФТИ «Современные проблемы фундаментальных и прикладных наук». Часть IV. Молекулярная и биологическая физика. Москва–Долгопрудный: МФТИ, 2010. С. 165–166.
3. Fokin V. B., Levashov P. R., Povarnitsyn M. E., Khishchenko K. V. Action of femtosecond single and double pulses on metallic foils: hydrodynamic and combined approaches // XXVI International Conference on Interaction of Intense Energy Fluxes with Matter: Book of Abstracts. Moscow & Chernogolovka & Nalchik: 2011. P. 25.
4. Левашов П. Р., Фокин В. Б., Поварницын М. Е., Хищенко К. В. Численное моделирование воздействия фемтосекундных лазерных импульсов на металл: гидродинамический и комбинированный подходы // Труды 54-й научной конференции МФТИ «Проблемы фундаментальных и прикладных естественных и технических наук в современном информационном обществе»: секция «Молекулярная и биологическая физика». Москва–Долгопрудный–Жуковский: МФТИ, 2011. С. 164–165.
5. Fokin V. B., Levashov P. R., Povarnitsyn M. E., Khishchenko K. V. Combined molecular and hydrodynamic modelling of metals irradiated by ultra-

- short laser pulses // XXVII International Conference on Equations of State for Matter: Book of Abstracts. Moscow & Chernogolovka & Nalchik: 2012. P. 96–97.
6. Fokin V. B., Levashov P. R., Povarnitsyn M. E., Khishchenko K. V. Combined molecular and hydrodynamic modelling of metals irradiated by ultrashort laser pulses // Tenth International Seminar on Mathematical Models & Modeling in Laser-Plasma Processes & Advanced Science Technologies (LPpM3): Abstracts. Petrovac, Montenegro: 2012. P. 5–6.
  7. Фокин В. Б., Левашов П. Р., Поварницын М. Е., Хищенко К. В. Молекулярное моделирование взаимодействия ультракороткого лазерного импульса с металлами // XIV Международная конференция «Супервычисления и математическое моделирование»: тезисы. Саров: ФГУП «РФЯЦ–ВНИИЭФ», 2012. С. 156.
  8. Фокин В. Б., Левашов П. Р., Поварницын М. Е., Хищенко К. В. Молекулярное моделирование абляции металла под воздействием фемтосекундных лазерных импульсов // Труды 55-й научной конференции МФТИ, Всероссийской научной конференции «Проблемы фундаментальных и прикладных естественных и технических наук в современном информационном обществе», Научной конференции «Современные проблемы фундаментальных и прикладных наук в области физики и астрономии», Всероссийской молодежной научной конференции «Современные проблемы фундаментальных и прикладных наук»: секция «Молекулярная и биологическая физика». Москва–Долгопрудный–Жуковский: МФТИ, 2012. С. 133.
  9. Fokin V. B., Levashov P. R., Povarnitsyn M. E., Khishchenko K. V. The comparison of hydrodynamic and atomistic approaches for modeling of laser ablation of metals // XXVIII International Conference on Interaction of Intense Energy Fluxes with Matter: Book of Abstracts. Moscow & Chernogolovka

- & Nalchik: 2013. P. 20–21.
10. Fokin V. B., Levashov P. R., Povarnitsyn M. E., Khishchenko K. V. Continuum-Atomistic Simulation of Nanoparticle Formation under Femtosecond Laser Ablation of Metals // XV Liquid and Amorphous Metals Conference (LAM-15). Beijing, China: 2013. P. 31.
  11. Povarnitsyn M. E., Fokin V. B., Levashov P. R., Khishchenko K. V. Comparison of continuum and molecular dynamics approaches for simulation of laser ablation of metals // Eleventh International Seminar on Mathematical Models & Modeling in Laser-Plasma Processes & Advanced Science Technologies (LPpM3): Abstracts. Budva, Montenegro: 2013. P. 36.
  12. Itina T. E., Hermann J., Voloshko A. et al. Nanoparticle Formation by Laser Ablation in Gases and Liquids: Modelling and Computational Approaches // 12th International Conference on Laser Ablation (COLA 2013): Book of Abstracts. Ischia, Italy: 2013. P. 59.
  13. Фокин В. Б., Левашов П. Р., Поварницын М. Е., Хищенко К. В. Континуально-атомистическое моделирование формирования наночастиц при абляции металлов под воздействием фемтосекундных лазерных импульсов // Труды 56-й научной конференции МФТИ, Всероссийской научной конференции «Актуальные проблемы фундаментальных и прикладных наук в современном информационном обществе», Всероссийской молодежной научно-инновационной конференции «Физико-математические науки: актуальные проблемы и их решения»: секция «Молекулярная и химическая физика». Москва–Долгопрудный–Жуковский: МФТИ, 2013. С. 28–29.
  14. Fokin V. B., Levashov P. R., Povarnitsyn M. E., Khishchenko K. V. Continual-atomistic modelling of femtosecond laser ablation of metals // XXIX International Conference on Equations of State for Matter: Book of Abstracts. Moscow & Chernogolovka & Nalchik: 2014. P. 116.

15. Фокин В. Б., Левашов П. Р., Поварницын М. Е., Хищенко К. В. Молекулярное моделирование абляции металлов под воздействием мощных фемтосекундных лазерных импульсов // XVI Харитоновские чтения «Мощная импульсная электрофизика»: сборник аннотаций. Саров: РФЯЦ–ВНИИЭФ, 2014. С. 24–26.
16. Povarnitsyn M. E., Fokin V. B., Voloshko A. et al. Numerical analysis of ultrashort laser ablation: application for fabrication of nanoparticles and nanostructures // High Power Laser Ablation and Beamed Energy Propulsion. Santa Fe, NM, USA: 2014.
17. Фокин В. Б., Левашов П. Р., Поварницын М. Е., Хищенко К. В. Моделирование свойств металлов при воздействии интенсивных фемтосекундных лазерных импульсов // Забабахинские научные чтения: сборник материалов XII Международной конференции. Снежинск: Издательство РФЯЦ–ВНИИТФ, 2014. С. 141–142.
18. Fokin V. B., Levashov P. R., Povarnitsyn M. E., Khishchenko K. V. A hybrid atomistic-continual simulation of ablation of metals under the action of powerful femtosecond laser pulses // ALT'14: International Conference on Advanced Laser Technologies 2014: Book of Abstracts. Cassis, France: 2014. P. P17.
19. Фокин В. Б., Левашов П. Р., Поварницын М. Е., Хищенко К. В. Континуально-атомистическое моделирование абляции металлов под воздействием фемтосекундных лазерных импульсов // XV Международная конференция «Супервычисления и математическое моделирование»: тезисы. Саров: ФГУП «РФЯЦ–ВНИИЭФ», 2014. С. 131–132.
20. Фокин В. Б., Левашов П. Р., Поварницын М. Е., Хищенко К. В. Континуально-атомистическое моделирование абляции металлов под воздействием фемтосекундных лазерных импульсов // XIV Российская конференция (с международным участием) по теплофизическим свойствам

- веществ (РКТС-14): материалы конференции в 2-х томах. Т. 1: Пленарные и устные доклады. Казань: Издательство «Отечество», 2014. С. 277.
21. Fokin V. B., Povarnitsyn M. E., Levashov P. R. Continual atomistic simulation of metal targets irradiated by femtosecond double-pulses // XXX International Conference on Interaction of Intense Energy Fluxes with Matter: Book of Abstracts. Moscow & Chernogolovka & Nalchik: 2015. P. 28–29.
  22. Povarnitsyn M. E., Fokin V. B., Levashov P. R., Khishchenko K. V. Implementation of nucleation model into hydrocode for simulation of laser ablation // XXX International Conference on Interaction of Intense Energy Fluxes with Matter: Book of Abstracts. Moscow & Chernogolovka & Nalchik: 2015. P. 28.
  23. Povarnitsyn M. E., Fokin V. B., Levashov P. R., Khishchenko K. V. Two approaches for modeling of laser ablation of metals: hydrocode with a model of nucleation and hybrid molecular-dynamic method // Thirteenth International Seminar on Mathematical Models & Modeling in Laser Plasma Processes & Advanced Science Technologies (LPpM3): Program and Abstracts. Petrovac, Montenegro: 2015. P. 34.
  24. Fokin V. B., Levashov P. R., Povarnitsyn M. E. Continual-Atomistic Simulation of the Behaviour of Metal under the Action of Double Femtosecond Laser Pulses // 15th International Conference on the Physics of Non-Ideal Plasmas (PNP15): Book of Abstracts. Almaty, Kazakhstan: 2015. P. 130.
  25. Povarnitsyn M. E., Fokin V. B., Levashov P. R., Itina T. E. Hybrid model for simulation of ultrashort double-pulse laser ablation of metals // Scientific-Coordination Workshop on Non-Ideal Plasma Physics (NPP2015): Book of Abstracts. Moscow: 2015. P. 66.
  26. Fokin V. B., Povarnitsyn M. E., Levashov P. R. A comparison of atomistic and continual simulation of ablation dynamics under femtosecond double-pulse laser irradiation of metals // XXXI International Conference on



- Equations of State for Matter: Book of Abstracts. Moscow & Chernogolovka & Nalchik: 2016. P. 232.
27. Фокин В. Б., Левашов П. Р., Поварницын М. Е. Континуально-атомистическое моделирование абляции металлов вследствие воздействия двойного мощного фемтосекундного лазерного импульса // XVIII Харитоновские чтения «Проблемы физики высоких плотностей энергии»: тезисы. Саров: ФГУП «РФЯЦ–ВНИИЭФ», 2016. С. 128–129.
  28. Fokin V. B., Levashov P. R., Povarnitsyn M. E. Numerical analysis of nanoparticles formation during femtosecond laser ablation of aluminum // XXXII International Conference on Interaction of Intense Energy Fluxes with Matter: Book of Abstracts. Moscow & Chernogolovka & Nalchik: 2017. P. 58.
  29. Фокин В. Б., Левашов П. Р., Поварницын М. Е. Численное моделирование формирования наночастиц при фемтосекундной лазерной абляции алюминия // Забабахинские научные чтения: сборник материалов XIII Международной конференции. Снежинск: Издательство РФЯЦ–ВНИИТФ, 2017. С. 150.
  30. Анисимов С. И., Капелиович Б. Л., Перельман Т. Л. Электронная эмиссия с поверхности металлов под действием ультракоротких лазерных импульсов // Журнал Экспериментальной и Теоретической Физики. 1974. Т. 66. С. 776–781.
  31. Eidmann K., Meyer-ter-Vehn J., Schlegel T., Hüller S. Hydrodynamic simulation of subpicosecond laser interaction with solid-density matter // [Physical Review E](#). 2000. Vol. 62, no. 1. P. 1202–1214.
  32. Ivanov D. S., Zhigilei L. V. Combined atomistic-continuum modeling of short-pulse laser melting and disintegration of metal films // [Physical Review B](#). 2003. Vol. 68, no. 6. P. 064114.
  33. Каганов М. И., Лифшиц И. М., Танатаров Л. В. Релаксация между элект-

- тронами и решеткой // Журнал Экспериментальной и Теоретической Физики. 1956. Т. 31. С. 232–237.
34. Лифшиц И. М., Каганов М. И., Танатаров Л. В. К теории радиационных изменений в металлах // [Атомная Энергия](#). 1959. Т. 6. С. 391–402.
35. Гинзбург В. Л. // Доклады Академии Наук СССР. 1955. Т. 100. С. 445–448.
36. Анисимов С. И., Имас Я. А., Романов Г. С., Ходыко Ю. В. Действие излучения большой мощности на металлы / Под ред. А. М. Бонч-Бруевича, М. А. Ельяшевича. Москва: «Наука», Главная редакция физико-математической литературы, 1970.
37. Eesley G. L. Generation of nonequilibrium electron and lattice temperatures in copper by picosecond laser pulses // [Physical Review B](#). 1986. Vol. 33, no. 4. P. 2144–2151.
38. Smith A. N., Norris P. M. Influence of intraband transitions on the electron thermoreflectance response of metals // [Applied Physics Letters](#). 2001. Vol. 78, no. 9. P. 1240–1242.
39. Hostetler J. L., Smith A. N., Morris P. M. Simultaneous Measurement of Thermophysical and Mechanical Properties of Thin Films // [International Journal of Thermophysics](#). 1998. Vol. 19, no. 2. P. 569–577.
40. Norris P. M., Caffrey A. P., Stevens R. J. et al. Femtosecond pump-probe nondestructive examination of materials (invited) // [Review of Scientific Instruments](#). 2003. Vol. 74, no. 1. P. 400–406.
41. Hohlfeld J., Wellershoff S.-S., GÜdde J. et al. Electron and lattice dynamics following optical excitation of metals // [Chemical Physics](#). 2000. Vol. 251, no. 1-3. P. 237–258.
42. Hohlfeld J., Müller J. G., Wellershoff S.-S., Matthias E. Time-resolved thermoreflectivity of thin gold films and its dependence on film thickness // [Applied Physics B: Lasers and Optics](#). 1997. Vol. 64, no. 3. P. 387–390.

43. Wellershoff S.-S., Hohlfeld J., Gdde J., Matthias E. The role of electron-phonon coupling in femtosecond laser damage of metals // [Applied Physics A: Materials Science & Processing](#). 1999. Vol. 69, no. 7. P. S99–S107.
44. Antaki P. J. Importance of nonequilibrium thermal conductivity during short-pulse laser-induced desorption from metals // [International Journal of Heat and Mass Transfer](#). 2002. Vol. 45, no. 19. P. 4063–4067.
45. Schmidt V., Husinsky W., Betz G. Ultrashort laser ablation of metals: pump–probe experiments, the role of ballistic electrons and the two-temperature model // [Applied Surface Science](#). 2002. Vol. 197-198. P. 145–155.
46. Ramis R., Schmalz R., Meyer-Ter-Vehn J. MULTI — A computer code for one-dimensional multigroup radiation hydrodynamics // [Computer Physics Communications](#). 1988. Vol. 49, no. 3. P. 475–505.
47. Povarnitsyn M. E., Itina T. E., Khishchenko K. V., Levashov P. R. Multi-material two-temperature model for simulation of ultra-short laser ablation // [Applied Surface Science](#). 2007. Vol. 253, no. 15. P. 6343–6346.
48. Povarnitsyn M. E., Andreev N. E., Apfelbaum E. M. et al. A wide-range model for simulation of pump-probe experiments with metals // [Applied Surface Science](#). 2012. Vol. 258, no. 23. P. 9480–9483.
49. Sadus R. J. *Molecular Simulation of Fluids. Theory, Algorithms and Object-Oriented*. 1st edition. Sara Burgerhartstraat 25 PO Box 211, 1000 AE Amsterdam, The Netherlands: Elsevier Science B.V., 1999. ISBN: [0444823050](#).
50. Allen M. P., Tildesley D. J. *Computer Simulation of Liquids*. Walton Street, Oxford OX2 6DP: Clarendon Press, 1991. ISBN: [0198553757](#).
51. Jin Z. H., Gumbsch P., Lu K., Ma E. Melting Mechanisms at the Limit of Superheating // [Physical Review Letters](#). 2001. Vol. 87, no. 5. P. 055703.
52. Jin Z. H., Lu K. Melting of surface-free bulk single crystals // [Philosophical Magazine Letters](#). 1998. Vol. 78, no. 1. P. 29–35.

53. Kluge M. D., Ray J. R., Rahman A. Pulsed laser melting of silicon: A molecular dynamics study // [The Journal of Chemical Physics](#). 1987. Vol. 87, no. 4. P. 2336–2339.
54. Abraham F. F., Broughton J. Q. Pulsed melting of silicon (111) and (100) surfaces simulated by molecular dynamics // [Physical Review Letters](#). 1986. Vol. 56, no. 7. P. 734–737.
55. Hakkinen H., Landman U. Superheating, melting, and annealing of copper surfaces // [Physical Review Letters](#). 1993. Vol. 71, no. 7. P. 1023–1026.
56. Abraham F. F., Schreiber D. E., Mruzik M. R., Pound G. M. Phase Separation in Fluid Systems by Spinodal Decomposition: A Molecular-Dynamics Simulation // [Physical Review Letters](#). 1976. Vol. 36, no. 5. P. 261–264.
57. Blink J. A., Hoover W. G. Fragmentation of suddenly heated liquids // [Physical Review A](#). 1985. Vol. 32, no. 2. P. 1027–1035.
58. Ashurst W. T., Holian B. L. Droplet formation by rapid expansion of a liquid // [Physical Review E](#). 1999. Vol. 59, no. 6. P. 6742–6752.
59. Zhigilei V., Garrison B. J. [Pressure Waves in Microscopic Simulations of Laser Ablation](#) // Materials Research Society (MRS) Proceedings. Vol. 538. Cambridge University Press, 1998. P. 491–496.
60. Etcheverry J. I., Mesaros M. Molecular dynamics simulation of the production of acoustic waves by pulsed laser irradiation // [Physical Review B](#). 1999. Vol. 60, no. 13. P. 9430–9434.
61. Herrmann R. F. W., Gerlach J., Campbell E. E. B. Ultrashort pulse laser ablation of silicon: an MD simulation study // [Applied Physics A: Materials Science & Processing](#). 1998. Vol. 66, no. 1. P. 35–42.
62. Zhigilei L. V., Garrison B. J. Microscopic mechanisms of laser ablation of organic solids in the thermal and stress confinement irradiation regimes // [Journal of Applied Physics](#). 2000. Vol. 88, no. 3. P. 1281–1298.
63. Zhigilei L. V. Dynamics of the plume formation and parameters of the ejected

- clusters in short-pulse laser ablation // [Applied Physics A: Materials Science & Processing](#). 2003. Vol. 76, no. 3. P. 339–350.
64. Alder B. J., Wainwright T. E. Phase Transition for a Hard Sphere System // [The Journal of Chemical Physics](#). 1957. Vol. 27, no. 5. P. 1208–1209.
65. Alder B. J., Wainwright T. E. Studies in Molecular Dynamics. I. General Method // [The Journal of Chemical Physics](#). 1959. Vol. 31, no. 2. P. 459–466.
66. Niethammer C., Becker S., Bernreuther M. et al. ls1 mardyn: The massively parallel molecular dynamics code for large systems // [CoRR](#). 2014. Vol. abs/1408.4599. URL: <http://arxiv.org/abs/1408.4599>.
67. Upadhyay A. K., Urbassek H. M. Melting and fragmentation of ultra-thin metal films due to ultrafast laser irradiation: a molecular-dynamics study // [Journal of Physics D: Applied Physics](#). 2005. Vol. 38, no. 16. P. 2933–2941.
68. Inogamov N. A., Zhakhovskii V. V., Ashitkov S. I. et al. Two-temperature relaxation and melting after absorption of femtosecond laser pulse // [Applied Surface Science](#). 2009. Vol. 255, no. 24. P. 9712–9716.
69. Demaske B. J., Zhakhovsky V. V., Inogamov N. A., Oleynik I. I. Ablation and spallation of gold films irradiated by ultrashort laser pulses // [Physical Review B](#). 2010. Vol. 82, no. 6. P. 064113.
70. Daw M. S., Baskes M. I. Embedded-atom method: Derivation and application to impurities, surfaces, and other defects in metals // [Physical Review B](#). 1984. Vol. 29, no. 12. P. 6443–6453.
71. Daw M. S., Foiles S. M., Baskes M. I. The embedded-atom method: a review of theory and applications // [Materials Science Reports](#). 1993. Vol. 9, no. 7-8. P. 251–310.
72. Lu K., Li Y. Homogeneous Nucleation Catastrophe as a Kinetic Stability Limit for Superheated Crystal // [Physical Review Letters](#). 1998. Vol. 80, no. 20. P. 4474–4477.
73. Rethfeld B., Sokolowski-Tinten K., von der Linde D., Anisimov S. I. Ultra-

- fast thermal melting of laser-excited solids by homogeneous nucleation // [Physical Review B](#). 2002. Vol. 65, no. 9. P. 092103.
74. Spaepen F., Turnbull D. [Kinetics of motion of crystal-melt interfaces](#) // [Laser-Solid Interactions and Laser Processing](#) / Ed. by S. D. Ferris, H. J. Leamy, J. M. Poate. No. 50. New York: AIP Conference Proceedings, 1979. P. 73–83.
75. Кудряшов С. И., Емельянов В. И. Уплотнение электронного газа и кулоновский взрыв в поверхностном слое проводника, нагреваемого фемтосекундным лазерным импульсом // [Письма в ЖЭТФ](#). 2001. Т. 73, № 12. С. 751–755.
76. Miotello A., Kelly R. Laser-induced phase explosion: new physical problems when a condensed phase approaches the thermodynamic critical temperature // [Applied Physics A: Materials Science & Processing](#). 1999. Vol. 69, no. 7. P. S67–S73.
77. Kelly R., Miotello A. Does normal boiling exist due to laser-pulse or ion bombardment? // [Journal of Applied Physics](#). 2000. Vol. 87, no. 6. P. 3177–3179.
78. Bulgakova N. M., Bulgakov A. V. Pulsed laser ablation of solids: transition from normal vaporization to phase explosion // [Applied Physics A: Materials Science & Processing](#). 2001. Vol. 73, no. 2. P. 199–208.
79. Vidal F., Johnston T. W., Laville S. et al. Critical-Point Phase Separation in Laser Ablation of Conductors // [Physical Review Letters](#). 2001. Vol. 86, no. 12. P. 2573–2576.
80. Sokolowski-Tinten K., Bialkowski J., Cavalleri A. et al. Transient States of Matter during Short Pulse Laser Ablation // [Physical Review Letters](#). 1998. Vol. 81, no. 1. P. 224–227.
81. Finnis M. W., Agnew P., Foreman A. J. E. Thermal excitation of electrons in energetic displacement cascades // [Physical Review B](#). 1991. Vol. 44, no. 2. P. 567–574.

82. Schäfer C., Urbassek H. M., Zhigilei L. V. Metal ablation by picosecond laser pulses: A hybrid simulation // [Physical Review B](#). 2002. Vol. 66, no. 11. P. 115404.
83. Caro A., Victoria M. Ion-electron interaction in molecular-dynamics cascades // [Physical Review A](#). 1989. Vol. 40, no. 5. P. 2287–2291.
84. Хеерман Д. В. Методы компьютерного эксперимента в теоретической физике: пер. с англ. / Под ред. С. А. Ахманова. Москва: «Наука», Главная редакция физико-математической литературы, 1990. ISBN: [5020143472](#).
85. Киттель Ч. Введение в физику твердого тела. Москва: «Наука», 2012. ISBN: [9785458336567](#).
86. Duffy D. M., Rutherford A. M. Including the effects of electronic stopping and electron–ion interactions in radiation damage simulations // [Journal of Physics: Condensed Matter](#). 2006. Vol. 19, no. 1. P. 016207.
87. Rutherford A. M., Duffy D. M. The effect of electron–ion interactions on radiation damage simulations // [Journal of Physics: Condensed Matter](#). 2007. Vol. 19, no. 49. P. 496201.
88. Phillips C. L., Crozier P. S. An energy-conserving two-temperature model of radiation damage in single-component and binary Lennard-Jones crystals // [The Journal of Chemical Physics](#). 2009. Vol. 131, no. 7. P. 074701.
89. Chen J. K., Tzou D. Y., Beraun J. E. A semiclassical two-temperature model for ultrafast laser heating // [International Journal of Heat and Mass Transfer](#). 2006. Vol. 49, no. 1-2. P. 307–316.
90. Chen J. K., Beraun J. E. Numerical study of ultrashort laser pulse interactions with metal films // [Numerical Heat Transfer, Part A: Applications](#). 2001. Vol. 40, no. 1. P. 1–20.
91. Фальковский Л. А., Мищенко Е. Ж. // [Журнал Экспериментальной и Теоретической Физики](#). 1999. Т. 115. С. 149–157.

92. Chimier B., Tikhonchuk V. T., Hallo L. Effect of pressure relaxation during the laser heating and electron–ion relaxation stages // [Applied Physics A](#). 2008. Vol. 92, no. 4. P. 843–848.
93. Gan Y., Chen J. K. Integrated continuum-atomistic modeling of nonthermal ablation of gold nanofilms by femtosecond lasers // [Applied Physics Letters](#). 2009. Vol. 94, no. 20. P. 201116.
94. Recoules V., Clérouin J., Zérah G. et al. Effect of Intense Laser Irradiation on the Lattice Stability of Semiconductors and Metals // [Physical Review Letters](#). 2006. Vol. 96, no. 5. P. 055503.
95. The ABINIT code is a common project of the Universite' Catholique de Louvain, Corning Incorporated, and other contributors. URL: <http://www.abinit.org>.
96. Ernstorfer R., Harb M., Hebeisen C. T. et al. The Formation of Warm Dense Matter: Experimental Evidence for Electronic Bond Hardening in Gold // [Science](#). 2009. Vol. 323, no. 5917. P. 1033–1037.
97. Semerok A., Dutouquet C. Ultrashort double pulse laser ablation of metals // [Thin Solid Films](#). 2004. Vol. 453-454. P. 501–505.
98. Scuderi D., Albert O., Moreau D. et al. Interaction of a laser-produced plume with a second time delayed femtosecond pulse // [Applied Physics Letters](#). 2005. Vol. 86, no. 7. P. 071502.
99. Donnelly T., Lunney J. G., Amoruso S. et al. Double pulse ultrafast laser ablation of nickel in vacuum // [Journal of Applied Physics](#). 2009. Vol. 106, no. 1. P. 013304.
100. Abrosimov S. A., Bazhulin A. P., Voronov V. V. et al. Specific features of the behaviour of targets under negative pressures created by a picosecond laser pulse // [Quantum Electronics](#). 2013. Vol. 43, no. 3. P. 246–251.
101. Krasnyuk I. K., Pashinin P. P., Semenov A. Y. et al. Study of extreme states of matter at high energy densities and high strain rates with powerful lasers //



- [Laser Physics](#). 2016. Vol. 26, no. 9. P. 094001.
102. Piñon V., Fotakis C., Nicolas G., Anglos D. Double pulse laser-induced breakdown spectroscopy with femtosecond laser pulses // [Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy](#). 2008. Vol. 63, no. 10. P. 1006–1010.
103. Mildner J., Sarpe C., Götte N. et al. Emission signal enhancement of laser ablation of metals (aluminum and titanium) by time delayed femtosecond double pulses from femtoseconds to nanoseconds // [Applied Surface Science](#). 2014. Vol. 302. P. 291–298.
104. Noël S., Hermann J. Reducing nanoparticles in metal ablation plumes produced by two delayed short laser pulses // [Applied Physics Letters](#). 2009. Vol. 94, no. 5. P. 053120.
105. Локтионов Е. Ю., Овчинников А. В., Протасов Ю. С. и др. Газово-плазменные потоки при фемтосекундной лазерной абляции металлов в вакууме // [Теплофизика Высоких Температур](#). 2014. Т. 52, № 1. С. 141–144.
106. Muto H., Miyajima K., Mafuné F. Mechanism of Laser-Induced Size Reduction of Gold Nanoparticles As Studied by Single and Double Laser Pulse Excitation // [The Journal of Physical Chemistry C](#). 2008. Vol. 112, no. 15. P. 5810–5815.
107. Карпухин В. Т., Маликов М. М., Бородина Т. И. и др. Образование полых микро- и наноструктур диоксида циркония при лазерной абляции металла в жидкости // [Теплофизика Высоких Температур](#). 2015. Т. 53, № 1. С. 98–104.
108. Rohloff M., Das S. K., Höhm S. et al. Formation of laser-induced periodic surface structures on fused silica upon multiple cross-polarized double-femtosecond-laser-pulse irradiation sequences // [Journal of Applied Physics](#). 2011. Vol. 110, no. 1. P. 014910.
109. Semerok A. F., Salle B., Wagner J.-F. et al. [Microablation of pure metals: laser plasma and crater investigations](#) // [Nonresonant Laser-Matter Inter-](#)

- action (NLMI-10) / Ed. by M. N. Libenson. Vol. 4423. The International Society for Optical Engineering (SPIE), 2001. P. 153–164.
110. Laser-Induced Breakdown Spectroscopy / Ed. by J. P. Singh, S. N. Thakur. 1st edition. Radarweg 29, PO Box 211, 1000 AE Amsterdam, The Netherlands: Elsevier Science & Technology, 2007. ISBN: 9780444517340.
111. Zweiback J., Ditmire T., Perry M. D. Femtosecond time-resolved studies of the dynamics of noble-gas cluster explosions // [Physical Review A](#). 1999. Vol. 59, no. 5. P. R3166–R3169.
112. Glover T. E. Hydrodynamics of particle formation following femtosecond laser ablation // [Journal of the Optical Society of America B](#). 2003. Vol. 20, no. 1. P. 125–131.
113. Стариков С. В., Стегайлов В. В., Норман Г. Э. и др. Лазерная абляция золота: эксперимент и атомистическое моделирование // [Письма в ЖЭТФ](#). 2011. Т. 93, № 11. С. 719–725.
114. Starikov S. V., Faenov A. Y., Pikuz T. A. et al. Soft picosecond X-ray laser nanomodification of gold and aluminum surfaces // [Applied Physics B](#). 2014. Vol. 116, no. 4. P. 1005–1016.
115. Cherednikov Y., Inogamov N. A., Urbassek H. M. Influence of defects on extreme ultraviolet laser ablation of LiF // [Physical Review B](#). 2013. Vol. 88, no. 13. P. 134109.
116. Wu C., Christensen M. S., Savolainen J.-M. et al. Generation of subsurface voids and a nanocrystalline surface layer in femtosecond laser irradiation of a single-crystal Ag target // [Physical Review B](#). 2015. Vol. 91, no. 3. P. 035413.
117. Baffou G., Rigneault H. Femtosecond-pulsed optical heating of gold nanoparticles // [Physical Review B](#). 2011. Vol. 84, no. 3. P. 035415.
118. Colombier J. P., Combis P., Audouard E., Stoian R. Guiding heat in laser ablation of metals on ultrafast timescales: an adaptive modeling approach

- on aluminum // [New Journal of Physics](#). 2012. Vol. 14, no. 1. P. 013039.
119. Colombier J. P., Combis P., Bonneau F. et al. Hydrodynamic simulations of metal ablation by femtosecond laser irradiation // [Physical Review B](#). 2005. Vol. 71, no. 16. P. 165406.
120. Chimier B., Tikhonchuk V. T., Hallo L. Heating model for metals irradiated by a subpicosecond laser pulse // [Physical Review B](#). 2007. Vol. 75, no. 19. P. 195124.
121. Povarnitsyn M. E., Itina T. E., Khishchenko K. V., Levashov P. R. Suppression of Ablation in Femtosecond Double-Pulse Experiments // [Physical Review Letters](#). 2009. Vol. 103, no. 19. P. 195002.
122. Povarnitsyn M. E., Itina T. E., Levashov P. R., Khishchenko K. V. Simulation of ultrashort double-pulse laser ablation // [Applied Surface Science](#). 2011. Vol. 257, no. 12. P. 5168–5171.
123. Perez D., Lewis L. J. Molecular-dynamics study of ablation of solids under femtosecond laser pulses // [Physical Review B](#). 2003. Vol. 67, no. 18. P. 184102.
124. Norman G. E., Starikov S. V., Stegailov V. V. et al. Nanomodification of gold surface by picosecond soft x-ray laser pulse // [Journal of Applied Physics](#). 2012. Vol. 112, no. 1. P. 013104.
125. Starikov S. V., Pisarev V. V. Atomistic simulation of laser-pulse surface modification: Predictions of models with various length and time scales // [Journal of Applied Physics](#). 2015. Vol. 117, no. 13. P. 135901.
126. Roth J., Krauß A., Lotze J., Trebin H.-R. Simulation of laser ablation in aluminum: the effectivity of double pulses // [Applied Physics A](#). 2014. Vol. 117, no. 4. P. 2207–2216.
127. Perez D., Béland L. K., Deryng D. et al. Numerical study of the thermal ablation of wet solids by ultrashort laser pulses // [Physical Review B](#). 2008. Vol. 77, no. 1. P. 014108.

128. Inogamov N. A., Zhakhovsky V. V., Ashitkov S. I. et al. Laser Acoustic Probing of Two-Temperature Zone Created by Femtosecond Pulse // [Contributions to Plasma Physics](#). 2011. Vol. 51, no. 4. P. 367–374.
129. Petrov Y. V., Khokhlov V. A., Inogamov N. A. et al. Reflectance of thin silver film on the glass substrate at the interaction with femtosecond laser pulses // [Journal of Physics: Conference Series](#). 2016. Vol. 774. P. 012099.
130. Khakshouri S., Alfè D., Duffy D. M. Development of an electron-temperature-dependent interatomic potential for molecular dynamics simulation of tungsten under electronic excitation // [Physical Review B](#). 2008. Vol. 78, no. 22. P. 224304.
131. Иногамов Н. А., Жаховский В. В., Хохлов В. А. и др. Роль геометрических параметров при фемтосекундной лазерной абляции // [Физико-химическая кинетика в газовой динамике](#). 2014. Т. 15, № 5.
132. Ilnitsky D. K., Khokhlov V. A., Zhakhovsky V. V. et al. Dynamics of laser ablation at the early stage during and after ultrashort pulse // [Journal of Physics: Conference Series](#). 2016. Vol. 774. P. 012101.
133. Inogamov N. A., Petrov Y. V., Zhakhovsky V. V. et al. [Two-temperature thermodynamic and kinetic properties of transition metals irradiated by femtosecond lasers](#) // [International Symposium High Power Laser Ablation](#). Vol. 1464. AIP Conference Proceedings, 2012. P. 593–608.
134. Inogamov N. A., Zhakhovsky V. V., Khokhlov V. A. et al. Ultrafast lasers and solids in highly excited states: results of hydrodynamics and molecular dynamics simulations // [Journal of Physics: Conference Series](#). 2014. Vol. 510. P. 012041.
135. Inogamov N. A., Zhakhovsky V. V., Khokhlov V. A. et al. Two-temperature hydrodynamic expansion and coupling of strong elastic shock with supersonic melting front produced by ultrashort laser pulse // [Journal of Physics: Conference Series](#). 2014. Vol. 500, no. 19. P. 192023.

136. Ilnitsky D. K., Khokhlov V. A., Inogamov N. A. et al. Two-temperature hydrodynamics of laser-generated ultrashort shock waves in elasto-plastic solids // [Journal of Physics: Conference Series](#). 2014. Vol. 500, no. 3. P. 032021.
137. Ashitkov S. I., Komarov P. S., Zhakhovsky V. V. et al. Ablation of gold irradiated by femtosecond laser pulse: Experiment and modeling // [Journal of Physics: Conference Series](#). 2016. Vol. 774. P. 012097.
138. Miller G. H., Puckett E. G. A High-Order Godunov Method for Multiple Condensed Phases // [Journal of Computational Physics](#). 1996. Vol. 128, no. 1. P. 134–164.
139. Khishchenko K. V. Equations of state for two alkali metals at high temperatures // [Journal of Physics: Conference Series](#). 2008. Vol. 98, no. 3. P. 032023.
140. Shemyakin O. P., Levashov P. R., Obruchkova L. R., Khishchenko K. V. Thermal contribution to thermodynamic functions in the Thomas–Fermi model // [Journal of Physics A: Mathematical and Theoretical](#). 2010. Vol. 43, no. 33. P. 335003.
141. Gear C. W. Numerical Initial Value Problems in Ordinary Differential Equations. Englewood Cliffs, New Jersey, USA: Prentice-Hall, Inc., 1971. ISBN: [0136266061](#).
142. Van Gunsteren W. F., Berendsen H. J. C. Algorithms for macromolecular dynamics and constraint dynamics // [Molecular Physics](#). 1977. Vol. 34, no. 5. P. 1311–1327.
143. Berendsen H. J. C., van Gunsteren W. F. Practical Algorithms for Dynamic Simulation // [Molecular-Dynamics Simulations of Statistical-Mechanical Systems](#). Enrico Fermi Summer School, Varenna, Italy: 1986. P. 43–65.
144. Федоренко Р. П. Введение в вычислительную физику: Учебное пособие: Для вузов. Москва: Издательство Московского физико-технического ин-

- ститута, 1994. ISBN: [5741700020](#).
145. Verlet L. Computer "Experiments" on Classical Fluids. I. Thermodynamical Properties of Lennard-Jones Molecules // [Physical Review](#). 1967. Vol. 159, no. 1. P. 98–103.
  146. LAMMPS Molecular Dynamics Simulator. URL: <http://lammps.sandia.gov>.
  147. Bushman A. V., Kanel G. I., Ni A. L., Fortov V. E. Thermophysics and dynamics of intense pulse loadings. London, UK: Taylor & Francis, 1993.
  148. Zhakhovskii V. V., Inogamov N. A., Petrov Y. V. et al. Molecular dynamics simulation of femtosecond ablation and spallation with different interatomic potentials // [Applied Surface Science](#). 2009. Vol. 255, no. 24. P. 9592–9596.
  149. Liu X.-Y., Ercolessi F., Adams J. B. Aluminium interatomic potential from density functional theory calculations with improved stacking fault energy // [Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering](#). 2004. Vol. 12, no. 4. P. 665–670.
  150. Povarnitsyn M. E., Andreev N. E., Levashov P. R. et al. Dynamics of thin metal foils irradiated by moderate-contrast high-intensity laser beams // [Physics of Plasmas](#). 2012. Vol. 19, no. 2. P. 023110.
  151. Povarnitsyn M. E., Itina T. E., Sentis M. et al. Material decomposition mechanisms in femtosecond laser interactions with metals // [Physical Review B](#). 2007. Vol. 75, no. 23. P. 235414.
  152. Levashov P. R., Sin'ko G. V., Smirnov N. A. et al. Pseudopotential and full-electron DFT calculations of thermodynamic properties of electrons in metals and semiempirical equations of state // [Journal of Physics: Condensed Matter](#). 2010. Vol. 22, no. 50. P. 505501.
  153. Ашитков С. И., Агранат М. Б., Канель Г. И. и др. Поведение алюминия вблизи предельной теоретической прочности в экспериментах с фемто-секундным лазерным воздействием // [Письма в ЖЭТФ](#). 2010. Т. 92,

- № 8. С. 568–573.
154. Файзуллин М. З., Скрипов В. П. Модифицированное уравнение Симона и некоторые свойства вещества на линии плавления // [Теплофизика Высоких Температур](#). 2007. Т. 45, № 5. С. 688–695.
155. Iosilevski I. L., Chigvintsev A. Y. [Anomalous Phase Diagram in Simplest Plasma Model](#) // *Strongly Coupled Coulomb Systems* / Ed. by G. J. Kalman, J. M. Rommel, K. Blagoev. Springer Nature, 2002. P. 135–138.
156. Zhigilei L. V., Ivanov D. S., Leveugle E. et al. [Computer modeling of laser melting and spallation of metal targets](#) // *High Power Laser Ablation V* / Ed. by C. R. Phipps. Vol. 5448. The International Society for Optical Engineering (SPIE), 2004. P. 505–519.
157. Foiles S. M., Baskes M. I., Daw M. S. Embedded-atom-method functions for the fcc metals Cu, Ag, Au, Ni, Pd, Pt, and their alloys // [Physical Review B](#). 1986. Vol. 33, no. 12. P. 7983–7991.
158. Hüttner B. A new method for the determination of the optical mass of electrons in metals // [Journal of Physics: Condensed Matter](#). 1996. Vol. 8, no. 50. P. 11041–11052.
159. Veysman M., Cros B., Andreev N. E., Maynard G. Theory and simulation of short intense laser pulse propagation in capillary tubes with wall ablation // [Physics of Plasmas](#). 2006. Vol. 13, no. 5. P. 053114.
160. Фокин В. Б., Поварницын М. Е., Левашов П. Р. Континуально-атомистическое моделирование абляции и образования наночастиц при воздействии фемтосекундного лазерного импульса на тонкие фольги // *Вестник Казанского технологического университета*. 2014. Т. 17, № 22. С. 55–58.
161. Фокин В. Б., Поварницын М. Е., Левашов П. Р., Хищенко К. В. Континуально-атомистическое моделирование лазерной абляции алюминия // *Известия Кабардино-Балкарского государственного университета*. 2014.

- T. 4, № 1. C. 60–65.
162. Povarnitsyn M. E., Fokin V. B., Levashov P. R. Microscopic and macroscopic modeling of femtosecond laser ablation of metals // [Applied Surface Science](#). 2015. Vol. 357. P. 1150–1156.
  163. Povarnitsyn M. E., Fokin V. B., Levashov P. R., Itina T. E. Molecular dynamics simulation of subpicosecond double-pulse laser ablation of metals // [Physical Review B](#). 2015. Vol. 92, no. 17. P. 174104.
  164. Hashida M., Semerok A. F., Gobert O. et al. [Ablation thresholds of metals with femtosecond laser pulses](#) // Nonresonant Laser-Matter Interaction (NLMI-10) / Ed. by M. N. Libenson. Vol. 4423. The International Society for Optical Engineering (SPIE), 2001. P. 178–185.
  165. Kanel G. I., Razorenov S. V., Fortov V. E. Shock-wave compression and tension of solids at elevated temperatures: superheated crystal states, pre-melting, and anomalous growth of the yield strength // [Journal of Physics: Condensed Matter](#). 2004. Vol. 16, no. 14. P. S1007–S1016.
  166. Budzevich M. M., Zhakhovsky V. V., White C. T., Oleynik I. I. Evolution of Shock-Induced Orientation-Dependent Metastable States in Crystalline Aluminum // [Physical Review Letters](#). 2012. Vol. 109, no. 12. P. 125505.
  167. Leveugle E., Ivanov D. S., Zhigilei L. V. Photomechanical spallation of molecular and metal targets: molecular dynamics study // [Applied Physics A](#). 2004. Vol. 79, no. 7. P. 1643–1655.
  168. Ajaev V. S., Willis D. A. Thermocapillary flow and rupture in films of molten metal on a substrate // [Physics of Fluids](#). 2003. Vol. 15, no. 10. P. 3144–3150.
  169. Fokin V. B., Povarnitsyn M. E., Levashov P. R. Simulation of ablation and plume dynamics under femtosecond double-pulse laser irradiation of aluminum: Comparison of atomistic and continual approaches // [Applied Surface Science](#). 2017. Vol. 396. P. 1802–1807.
  170. Minakov D. V., Levashov P. R., Fokin V. B. Vibrational spectrum and en-



tropy in simulation of melting // [Computational Materials Science](#). 2017.  
Vol. 127. P. 42–47.