

УДК 539.422.3, 51-72, 538.935

## СОПОСТАВЛЕНИЕ 1D-, 2D- И 3D- АТОМИСТИЧЕСКИХ МОДЕЛЕЙ ЛАЗЕРНОЙ АБЛЯЦИИ АЛЮМИНИЯ

Писарев В.В.<sup>1,2</sup>, Стариков С.В.<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup> *Объединенный институт высоких температур РАН,  
Москва, 125412, Ижорская ул., 13*

<sup>2</sup> *Московский физико-технический институт (государственный университет),  
Московская область, г. Долгопрудный, 141700, Институтский пер., 9  
pisarevv@gmail.com*

### Аннотация

В работе представлены результаты исследования модификации поверхности алюминия фемтосекундными лазерными импульсами методом двухтемпературного атомистического моделирования. Проведено моделирование на различных масштабах — от квазиодномерной модели до полномасштабных трехмерных атомистических расчетов. Показано, что модификация поверхности может происходить вследствие абляции или плавления. При низкой мощности лазерного импульса на поверхности могут возникать наноразмерные волны при плавлении в отсутствие абляции. В этом случае возникает наномодификация поверхности за счет расплескивания расплава из-за температурного градиента. При больших мощностях лазерного импульса наблюдалась абляция поверхностного слоя с образованием кратера.

**Ключевые слова:** двухтемпературная модель, абляция, наноструктуры, молекулярная динамика, модификация поверхности.

## COMPARISON OF 1D-, 2D- AND 3D- ATOMISTIC MODELS FOR LASER ABLATION OF ALUMINUM

Pisarev V.V.<sup>1,2</sup>, Starikov S.V.<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup> *Joint Institute for High Temperatures of the Russian Academy of Sciences (JIHT RAS)  
Russia, Moscow, 125412, Izhorskaya st., 13*

<sup>2</sup> *Moscow Institute of Physics and Technology (State University)  
Russia, Dolgoprudny, Moscow Region, 1417009 Institutskiy per, 9*

In this work the femtosecond laser pulse modification of surface is studied for aluminum (Al) and gold (Au) by use of two-temperature atomistic simulation. The results are obtained for various atomistic models with different scales: from pseudo-one-dimensional to full-scale three-dimensional atomistic simulation. The surface modification after laser irradiation can be caused by ablation and melting. At low energy of laser pulse, the nanoscale ripples on surface may be induced by the melting without laser ablation. The nanoscale changes of the surface are due to the splash of molten metal under temperature gradient. The laser ablation occurs at a higher pulse energy when a crater is formed on the surface.

**Keywords:** laser ablation, molecular dynamics, two-temperature model.

### 1. Введение

В последние годы возрастает интерес к исследованию взаимодействия лазерных импульсов с веществом, особенно интересны лазерная абляция — унос вещества с поверхности под действием лазерного излучения — и модификация поверхности лазерным излучением. Обработка фемтосекундными импульсами рассматривается как один из методов создания поверхностных наноструктур: кратеров [1–3], наноструй, нанополостей [4], периодических

структур [5] и т.д. Механизмы образования наноструктур при таких воздействиях не до конца изучены, однако известно, что при облучении фемтосекундными лазерами образуются сильнонеравновесные состояния вещества, что необходимо учитывать в возможных моделях.

Поглощение лазерного излучения ведёт к возбуждению электронной подсистемы материала, при этом вещество переходит в двухтемпературное (2Т) состояние, в котором температура электронов ( $T_e$ ) может на порядки превышать температуру ионов решётки ( $T_i$ ). Время электрон-решеточной релаксации может быть сопоставимо с временами релаксационных процессов в ионной подсистеме — теплопереноса, фазовых переходов и т. д., что определяет необходимость явного включения динамики электрон-решеточной релаксации в модель воздействия импульса на вещество.

Требование описания наномасштабного структурирования поверхностей обуславливает недостаточность континуального гидродинамического описания подобных процессов. Большой прогресс в понимании наноструктурирования поверхности может быть достигнут с помощью атомистического моделирования, которое позволяет на уровне движения отдельных атомов описывать быстрые неравновесные процессы, такие как распад метастабильных фазовых состояний.

В последнее время стало появляться значительное число экспериментальных работ, акцентирующих внимание на объёмном характере процесса модификации поверхности при лазерном облучении. Полноценное описание процесса может быть достигнуто только при полномасштабном атомистическом моделировании с размерами порядка микрометров по трём направлениям (3D-моделирование). К настоящему времени, большинство компьютерных симуляций фемтосекундного лазерного воздействия представляют собой одномерное (1D гидродинамическая модель) или квазиодномерное (атомистическое моделирование в периодических граничных условиях) моделирование. Деформация и механическая релаксация поверхности в таких моделях не могут быть учтены, т. е. модели упускают существенные особенности лазерной модификации поверхности. Шаги по направлению к расширению моделей были предприняты в работах [6, 7], но полномасштабные 3D расчеты, на сегодняшний день, никем не проведены.

В данной работе методом двухтемпературного атомистического моделирования была исследована абляция и модификация поверхности алюминия под действием фемтосекундных лазерных импульсов. Моделирование проведено для квазиодномерных, квазидвумерных и трёхмерных систем.

## 2. Вычислительная модель

### 2.1 Атомистическая модель

Атомистическое моделирование проводилось методом молекулярной динамики (МД). Он представляет собой численное интегрирование уравнений движения для системы атомов с выбранным потенциалом взаимодействия:

$$m_i \frac{d\vec{v}_i}{dt} = -\frac{\partial U(\{\vec{r}_k\})}{\partial \vec{r}_i} + \vec{F}_{ext}, \quad (1)$$

где  $m_i$ ,  $\vec{r}_i$ ,  $\vec{v}_i$  — масса, вектор координаты и скорости  $i$ -й частицы, соответственно;  $U(\{\vec{r}_k\})$  — потенциал межчастичного взаимодействия;  $\vec{F}_{ext}$  — сила, отражающее возможное внешнее воздействие на систему. Потенциал взаимодействия может быть как парным, так и многочастичным, и его выбор определяет все динамические свойства моделируемой системы. Для моделирования алюминия использовался потенциал погруженного атома в параметризации, предложенной в [8]

## 2.2 Модель двухтемпературного состояния

Моделирование двухтемпературного состояния проводилось при помощи подхода, предложенного Даффи и Резерфордом [9]. Электронная подсистема рассматривается в рамках континуального подхода и характеризуется распределением температуры  $T_e(x, y, z)$ , температурно-зависимыми теплоемкостью  $C_e(T_e)$  и коэффициентом теплопроводности  $K_e(T_e)$ . Релаксация энергии электронной подсистемы описывается уравнением теплопроводности

$$C_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial t} = \nabla(K_e \nabla T_e) - \xi(T_e, T_i) + \frac{I(t)e^{-x/l}}{l}, \quad (2)$$

где слагаемое  $\xi(T_e, T_i)$  отвечает за электрон-ионную релаксацию,  $I$  – поглощенная интенсивность лазерного излучения,  $l$  – толщина скин-слоя. Для описания релаксации в уравнения движения (1) для ионов добавляется внешняя сила в виде:

$$\vec{F}_{ext} = \vec{F}_{lang}(T_e - T_i) - \frac{\nabla P_e}{n_i}, \quad (3)$$

где  $F_{lang}$  — случайная сила (пространственно неоднородный термостат Ланжевена), отвечающая за электрон-решеточную релаксацию. Последнее слагаемое выражает т.н. «электро-взрывную силу» [10–12]. Подробнее модель описана в работах [11, 12]. Численный код реализован как расширение открытого МД-пакета LAMMPS [13].

## 3 Моделирование

### 3.1 1D моделирование

В квазиодномерной модели размер системы составлял  $2000 \times 4 \times 4$  нм направлениях  $x$ ,  $y$ ,  $z$ , соответственно. По направлениям  $y$  и  $z$  использовались периодические граничные условия, падение лазерного импульса моделировалось вдоль оси  $x$ .

Исследовалось влияние величины поглощенной энергии на поведение материала. Обнаружилось, что абляция алюминия определяется распространением ударных волн и волн разрежения. Пороговая поглощенная мощность для абляции оценивается в  $F_{abl} = 50$  мДж/см<sup>2</sup>. При мощности  $F < F_{abl}$  может происходить плавление поверхности материала при  $F > F_{melt} \approx 10$  мДж/см<sup>2</sup>.

Предположительно, размер области наномодификации поверхности  $r_m$  определяется границей зоны расплава, который в предположении гауссова профиля интенсивности лазерного пятна определяется формулой

$$r_m^2 = R_e^2 \ln(\alpha E / \pi R_e^2 F_{melt}), \quad (4)$$

где  $\alpha$  — коэффициент поглощения;  $E$  – полная энергия лазерного импульса;  $R_e$  – характерный радиус гауссова распределения;  $F_{melt}$  – порог плавления, оцененный в одномерном моделировании.

Аналогичное выражение можно записать и для радиуса абляционного кратера  $r_a$ . Из (4) следует возможность оценить экспериментальной оценки порогов абляции и плавления, измерив зависимость  $r_a(E)$  и  $r_m(E)$ .

### 3.2 2D- и 3D-моделирование

В 2D моделировании размер расчетной области составлял  $2000 \times 1000 \times 4$  нм. Был проведен ряд расчетов для проверки соотношения (4). На рис. 1 показаны снимки расчетной области в различные моменты времени после поглощения лазерного импульса с  $F_0 = 32$  мДж/см<sup>2</sup> и  $R_e = 90$  нм. Несмотря на то, что в экспериментах размер лазерного пятна в не-

сколько раз больше, такие расчеты позволяют уловить основные особенности процесса модификации поверхности.

Проведенные расчеты подтверждают предположение о том, что модификация поверхности может происходить вследствие плавления без абляции. Размер области модификации согласуется с (4), причем наиболее существенная модификация происходит за счет сил межфазного натяжения на границе области расплава.

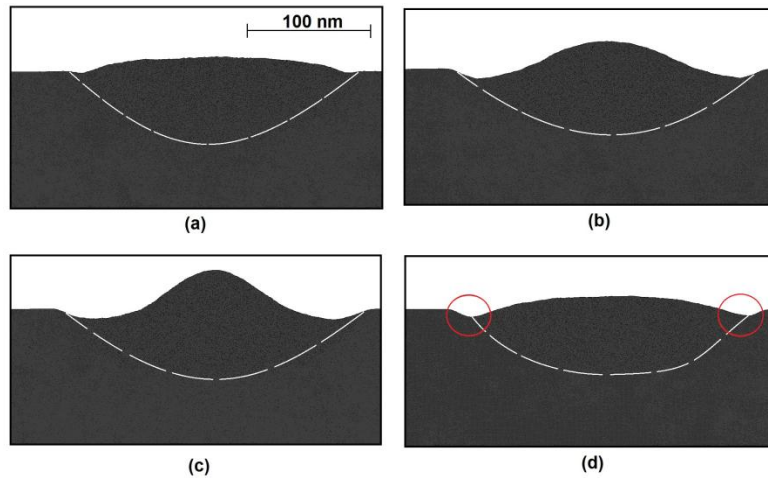


Рис. 1. 2Дстохастическое моделирование модификации поверхности импульсом с  $F_0 = 32$  мДж/см<sup>2</sup> и  $R_e = 90$  нм. (a)  $t = 100$  пс; (b)  $t = 200$  пс; (c)  $t = 500$  пс; (d)  $t = 1300$  пс

3Дмоделирование было проведено для расчетной области размером  $1000 \times 250 \times 250$  нм. В этом случае в моделировании получается наиболее соответствующий экспериментам профиль волны сжатия, затухающий по направлению вглубь образца как  $x^{-2}$ . На модельной системе не удалось получить абляцию с полным отрывом слоя вещества с поверхности даже при энерговыкладе в центре пятна, превышающем порог абляции ( $60$  мДж/см<sup>2</sup>), однако удалось наблюдать нуклеацию и коалесценцию полостей на глубине около  $40$  нм, что приводит к «неполной абляции» (рис. 2).

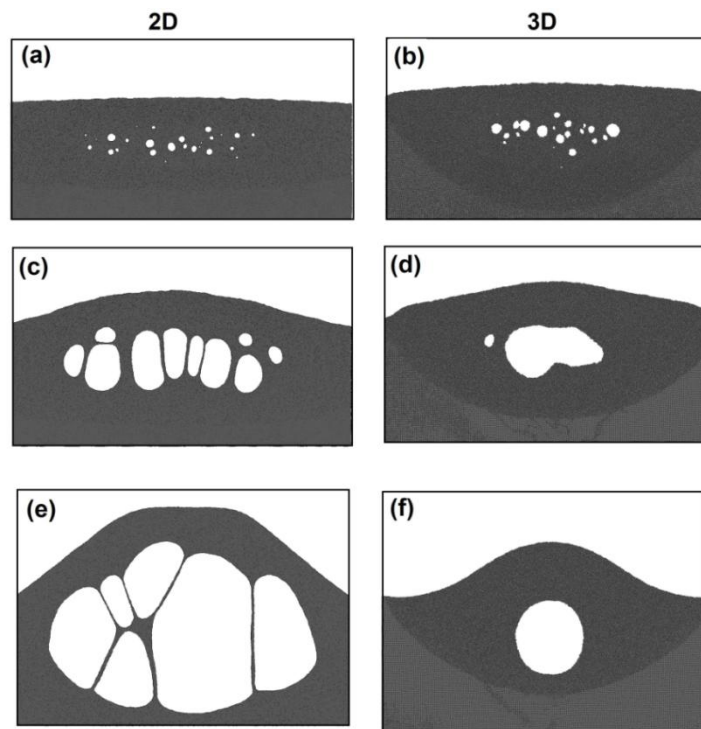


Рис. 2. Сопоставление 2Ди 3Дстохастического моделирования.  $F_0 = 65$  мДж/см<sup>2</sup> и  $R_e = 90$  нм для 2Ди  $F_0 = 60$  мДж/см<sup>2</sup> для 3Дмодели. (a), (b)  $t = 25$  пс; (c), (d)  $t = 70$  пс; (e), (f)  $t = 150$  пс

В недавних экспериментах [4] также наблюдалась «неполная абляция», при этом ТЕМ исследование сохраненных образцов показало образование полостей на глубине около 44 нм. По-видимому, эта характерная глубина образования пор определяется геометрией волн сжатия и разгрузки и особенностями их формирования и прохождения через алюминий.

#### 4. Выводы

В работе представлены результаты крупномасштабного атомистического моделирования лазерного воздействия на металл на примере алюминия. Показана возможность воспроизвести абляцию в простейшей геометрии в одномерных моделях. При переходе к моделям большей размерности удастся показать новые эффекты: модификация поверхности без абляции и «распухание» поверхности за счет формирования нанопор в глубине материала. Эффекты, обнаруженные в двухмерном и трехмерном моделировании, подтверждаются имеющимися экспериментальными данными.

#### Благодарности

МД расчеты выполнены на кластерах МВС-100К и МВС-10П МСЦ РАН, К-100 ИПМ им. Келдыша РАН и «Ломоносов» НИВЦ МГУ. Работа выполнена при поддержке РФФИ (грант № 14-19-01487).

#### Литература

1. Иногамов Н.А., Жаховский В.В., Ашитков С.И., Петров Ю.В., Агранат М.Б., Анисимов С.И., Нишихара К., Фортон В.Е. О нанотрещине после воздействия ультракороткого лазерного импульса // ЖЭТФ, 2008, Т. 134, № 1, С. 5–28.
2. Артюков И.А., Заярный Д.А., Ионин А.А. и др. Релаксационные процессы электронной и решеточной подсистем при абляции поверхности железа ультракороткими лазерными импульсами // Письма в ЖЭТФ, 2014, Т. 99, № 1, С. 54–58.
3. S.V. Starikov, A.Y. Faenov, T.A. Pikuz et al. Soft picosecond X-ray laser nanomodification of gold and aluminum surfaces // Appl. Phys. B, 2014, V. 116, no. 4, Pp. 1005–1016.
4. Ашитков С.И., Иногамов Н.А., Жаховский В.В. и др. Образование нанополостей в поверхностном слое алюминиевой мишени при воздействии фемтосекундных лазерных импульсов // Письма в ЖЭТФ, 2012, Т. 95, № 4, С. 192–197.
5. Ионин А.А., Кудряшов С.И., Лигачев А.Е. и др. Наномасштабная кавитационная неустойчивость поверхности расплава вдоль штрихов одномерных решеток нанорельефа на поверхности алюминия // Письма в ЖЭТФ, 2012, Т. 94, № 4, С. 289–291.
6. D.S. Ivanov, A.I. Kuznetsov, V.P. Lipp et al. Short laser pulse nanostructuring of metals: direct comparison of molecular dynamics modeling and experiment // Appl. Phys. A, 2013, V. 111, No. 3, Pp. 675–687.
7. C. Wu, L. Zhigilei. Microscopic mechanisms of laser spallation and ablation of metal targets from large-scale molecular dynamics simulations // Appl. Phys. A, 2013, V. 114, no. 1, Pp. 11–32.
8. X.-Y. Liu, Wei Xu, S. M. Foiles and J. B. Adams. Atomistic studies of segregation and diffusion in Al-Cu grain boundaries // Appl. Phys. Lett., 1998, V. 72, P. 1578.
9. D.M. Duffy, A.M. Rutherford. Including the effects of electronic stopping and electron-ion interactions in radiation damage simulations // J. Phys.: Condensed Matter, 2007, V. 19, no. 1, P. 016207.
10. D.Y. Tzou, J.K. Chen, J.E. Beraun. Hot-electron blast induced by ultrashort-pulsed lasers in layered media // Int. J. Heat Mass Transfer, 2002, V. 45, no. 16, P. 3369–3382.
11. Norman G.E., Starikov S.V., Stegailov V.V. et al. Atomistic modeling of warm dense matter in the two-temperature state // Contrib. Plasma Phys. 2013. V. 53. Pp. 129–139.
12. Pisarev V.V., Starikov S.V. Atomistic simulation of ion track formation in UO<sub>2</sub> // J. Phys.: Condens. Matter, 2014. V. 26, no. 47, P. 475401.
13. S.J. Plimpton. Fast Parallel Algorithms for Short-Range Molecular Dynamics // J. Comp. Phys., 1995, V. 117, Pp. 1–19.

Статья поступила в редакцию 21 ноября 2014 г.