

# Визуализационный анализ результатов континуально-атомистического моделирования кулоновского взрыва в металлах под влиянием ультракороткого (fs, ps) лазерного воздействия

В.И. Мажукин<sup>1</sup>, А.В. Шапранов<sup>2</sup>, М.М. Дёмин<sup>3</sup>, О.Н. Королёва<sup>4</sup>, А.В. Мажукин<sup>5</sup>

Институт прикладной математики им. М.В. Келдыша РАН

- <sup>1</sup> ORCID: 0000-0001-5590-3731, [vim@modhef.ru](mailto:vim@modhef.ru)  
<sup>2</sup> ORCID: 0000-0001-8851-2286, [ashapranov@modhef.ru](mailto:ashapranov@modhef.ru)  
<sup>3</sup> ORCID: 0000-0001-6662-7699, [mdemin@mail.ru](mailto:mdemin@mail.ru)  
<sup>4</sup> ORCID: 0000-0001-5292-1336, [koroleva.on@mail.ru](mailto:koroleva.on@mail.ru)  
<sup>5</sup> ORCID: 0000-0001-7538-6460, [specimen@mail.ru](mailto:specimen@mail.ru)

## Аннотация

Разработана континуально-атомистическая модель, описывающая неравновесные тепловые, гидродинамические и электронные процессы в металлах, возникающих под воздействием ультракороткого (fs, ps) лазерного излучения. Выполнено детальное исследование двух механизмов ультракороткой лазерной абляции Cu: быстрого - кулоновского, определяемого кулоновскими силами и медленного - теплового, реализующегося в волне разгрузки после окончания лазерного импульса. Моделирование показало, что избыточное неравновесное давление коллективизированных электронов, играет ведущую роль в формировании сильного электрического поля на границе раздела металл – вакуум. Этот эффект может быть положен в основу кулоновского взрыва в металлах. Основной особенностью работы является широкое применение современных средств визуализации для обработки и представления результатов моделирования.

**Ключевые слова:** ультракороткая лазерная абляция, кулоновский взрыв в металле, континуально-атомистическая модель, динамическая визуализация, двойной электрический слой.

## 1. Введение

Ультракороткая лазерная абляция представляет собой одно из наиболее перспективных направлений для широкого спектра новых лазерных приложений в области материаловедения [1], нанотехнологий [2,3], биомедицины [4-6] и др. Большое значение для всех приложений имеет детальное исследование механизмов ультракороткой лазерной абляции металлов [7, 8] и полупроводников [9, 10]. Такие исследования из-за большого разнообразия вовлеченных процессов, отличающихся сильной пространственно-временной многомасштабностью, представляют сложную проблему. На протяжении последних лет, несмотря на сложности, к изучению процессов, инициируемых ультракоротким лазерным воздействием, по-прежнему сохраняется не только практический [11, 12], но и фундаментальный интерес [13, 14].

В экспериментальных исследованиях [15-18] было обнаружено, что в абляцию полупроводников (Si) и металлов (Fe, Au, Cu) вносят вклад, по крайней мере, два различных механизма. Один механизм связан с выбросом высокоскоростных частиц с энергией около 5-7 эВ. Другой механизм приводит к выбросу медленных тепловых частиц с более низкой энергией. С помощью времяпролетной (TOF) масс-спектрометрии в этих работах были экспериментально измерены бимодальные

распределения наночастиц по скоростям и энергиям при фемто- и пикосекундной лазерной абляции металлов и полупроводников. Из экспериментов следует, что определяющим фактором для рассматриваемых процессов является временной масштаб, на котором происходит выделение энергии лазерного импульса в веществе. Наблюдаемые спектры с двухпиковым распределением частиц состояли из двух составляющих - высоко- и низкоэнергетической компоненты. Получение четких бимодальных структур с двумя различными максимумами в распределении наночастиц по скоростям и энергиям, выброшенных с облучаемых металлических поверхностей, свидетельствует о том, что в ультракороткую лазерную абляцию вносят вклад, по крайней мере, два различных механизма. Отличительной чертой ультракороткого лазерного воздействия на металлы наряду с традиционными тепловыми и гидродинамическими процессами является наличие сверхбыстрых электронных процессов.

Преобладание тепловых и гидродинамических процессов составляет основу механизма тепловой абляции, в течение которой происходит основной вынос вещества. Этот механизм относится к медленным, поскольку в нём выделение и преобразование энергии лазерного импульса происходит в пикосекундной шкале времени.

В основе механизма быстрой нетепловой абляции лежат быстрые электронные процессы, связанные с электрическими полями. Нетепловая абляция происходит около порога основной абляции и имеет тенденцию к удалению из тонкого приповерхностного слоя горячих электронов и ускоренных ионов. Быстрые электронные процессы могут приводить к кулоновскому взрыву (CE), представления, о физических механизмах которого для металлов [19,20] и полупроводников [15, 21, 22], окончательно не сформулированы и являются предметом значительного научного интереса [23-25].

В области определения динамических характеристик лазерно-индуцированных неравновесных процессов экспериментальный подход, являющийся традиционным, имеет ограничения. В силу этого актуально использование теоретического подхода, основным инструментом которого является математическое моделирование. В настоящее время наиболее распространены два класса моделей: континуальные, описывающие явления на макроуровне [26-30] и атомистические, дающие представление о явлении на микроуровне [31-38]. В последнее время разработаны гибридные континуально-атомистические модели [39,40], объединяющие достоинства континуальных, позволяющих моделировать электронное возбуждение под действием ультракороткого лазерного излучения и атомистических, позволяющих отслеживать движение каждой молекулы или атома, моделировать детализированную абляцию и фазовые переходы после облучения мишени ультракороткими лазерными импульсами. Особенностью воздействия ультракороткого сверхмощного лазерного излучения на металлы является высокая скорость и объемный характер выделения энергии в электронной компоненте, приводящие к сильному отклонению от состояния локального термодинамического равновесия. Сложность математического описания индуцированных лазерным излучением процессов, лежащих в основе лазерной абляции, обусловлена протеканием этих процессов в условиях сильной неравновесности, которую необходимо адекватно учитывать в теоретических моделях.

В работе [26] на основе разработанной континуальной гидродинамической модели, сочетающей описание неравновесных тепловых, гидродинамических и электронных процессов, выполнено детальное исследование механизмов fs-лазерной абляции Al пленки. Поведение электростатического поля описывалось в рамках двойного электрического слоя (ДЭС) [27]. Основной особенностью постановки ДЭС в гидродинамическом приближении являлось наличие прямой связи градиента электронного давления  $\partial P_{e^{ne}}/\partial x$  с напряженностью электрического поля  $E_x$ , в отличие от дрейф-диффузионных моделей [23,24], позволяющей в рамках единой математической модели исследовать различные механизмы абляции - быстрый

нетепловой, определяемый кулоновскими силами и медленный, реализующийся в гидродинамической волне разгрузки. Моделирование показало, что избыточное неравновесное давление коллективизированных электронов, играет ведущую роль в формировании сильного электрического поля на границе раздела металл – вакуум. Этот эффект может быть положен в основу кулоновского взрыва в металлах.

Валидация полученных результатов показала хорошее качественное совпадение с экспериментальными данными [17,18]. Дальнейшая детализация исследований с целью получения более полной информации, в том числе и о количественной составляющей протекающих явлений, сопряжена с разработкой и применением математических моделей микроскопического уровня, получивших наименование атомистических. Обычно атомистическая модель состоит из  $2N$  классических уравнений движения, где  $N$  количество, порядка  $(1 - 10) \times 10^6$  частиц (атомов, ионов), включенных в исследуемый образец. Численное решение подобных систем уравнений сопряжено с большим объемом вычислений и сложностью обработки и представления получаемых результатов.

Учитывая это обстоятельство, была разработана континуально-атомистическая модель для описания механизмов абляции, кулоновского взрыва и расслоения металлической мишени.

В данной статье представлены результаты математического моделирования возникновения кулоновского взрыва в металлах под воздействием фс-пс-лазерных импульсов на примере меди (Cu), полученные с помощью новой континуально-атомистической модели.

Большая роль в представлении полученных результатов принадлежит визуализации. Качественная визуализация результатов способна усилить ценность полученной информации и начинает выполнять уже не просто функцию отображения (построения) образов, но трансформируется в полноценную компоненту научного исследования. Поскольку результаты математического моделирования, как правило, представляются большим объемом информации, дальнейшее их использование для интеллектуального анализа, демонстрации, обучения связано с необходимостью пространственно-временного отображения сильно неустойчивых режимов фазовых превращений, кулоновского взрыва, расслоения вещества и т.п. В последнее время визуализация научных результатов получила бурное развитие [41]. Ни одно научное сообщение как экспериментальное, так и теоретическое не публикуется без визуализации полученных результатов, в основном с использованием статических иллюстраций. Хотя много большими возможностями располагает динамическая визуализация [42, 43], позволяющая иллюстрировать развитие явления в динамике, тем самым поднимая представление и анализ научных результатов на качественно более высокий уровень. Динамическая визуализация в научных публикациях остается достаточно редкой, поскольку её ключевым отличием от статической является использование анимации, вследствие чего традиционные бумажные носители – книги, журналы уже не соответствуют такому представлению информации. Для использования динамической визуализации в представлении научных результатов в статье требуется современное мультимедийное оснащение, как минимум то, что предлагается наиболее распространенными на сегодняшний день браузерами для работы в Интернет. А для публикации таких статей необходимы специализированные интернет-издания [44,45].

Для представления полученных результатов моделирования в данной статье используется динамическая визуализация, позволяющая показать пространственно-временную эволюцию абляции медной мишени под воздействием ультракороткого (fs, ps) лазерного излучения.

## 2. Математическая постановка задачи

Постановка задачи лазерного воздействия на металл состоит в следующем: на поверхность металлической мишени (Cu), помещенную в вакуум падает поток лазерного излучения (рис.1) гауссовской формы (рис.2) по временной координате  $t$ , длиной волны  $\lambda$ , максимальной интенсивностью  $G_0$  и длительностью  $\tau$ . Часть излучения отражается поверхностью ( $0 < R < 1$ ,  $R$  – коэффициент отражения). Оставшаяся доля излучения  $A = (1-R)$  поглощается электронной компонентой металла. Особенности рассматриваемой проблемы определяются как режимом лазерного воздействия, так и свойствами облучаемого материала (металла).

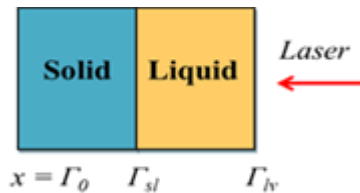


Рис. 1. Схема лазерного воздействия на мишень

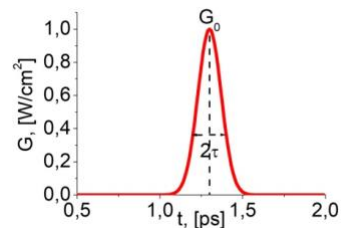


Рис.2. Временной профиль лазерного импульса  $G = G_0 \exp(-(t-t_0/\tau)^2)$

Длительность воздействия ультракоротких импульсов оказывается короче времен релаксации всех основных процессов, и поглощенная энергия лазерного импульса выделяется в электронной компоненте, оставляя решетку холодной на время, необходимое для передачи энергии от нагретых электронов к решетке. По этой причине все процессы, индуцированные лазерным излучением: электронные, тепловые, гидродинамические и в том числе фазовые превращения, лежащие в основе лазерной абляции, протекают в условиях сильной неравновесности, которую необходимо адекватно учитывать в математической модели. Одним из таких эффектов является действие давления коллективизированных электронов в металле в условиях, когда температуры электронной и ионной подсистем отличаются на десятки тысяч градусов. Учет эффекта давления электронной составляющей приводит к необходимости формулировки и решения задачи двойного электрического слоя (ДЭС), подробно рассмотренной ранее в работе [27].

## 3. Моделирование ДЭС

Согласно квантово-механической теории Зоммерфельда [46,47] электронная подсистема представляет собой вырожденный ферми-газ свободных коллективизированных электронов. Ионная подсистема состоит из тяжёлых положительно заряженных ионов, которые считают неподвижными. В начальном состоянии предполагается, что металл находится в состоянии термодинамического равновесия и квазинейтральности. Коллективизированные электроны в толще металла с точностью до квазинейтральности имеют постоянную плотность  $\rho_e$  и свободно перемещаются сквозь решетку образованную связанными ионами. Ионы также имеют постоянную плотность  $\rho_i$  вплоть до границы с вакуумом  $x=L$ , где плотность ионов скачкообразно уменьшается до нуля. Атомы и ионы на границе раздела (поверхности) вакуум-металл проявляют иные свойства, нежели атомы и ионы в объеме фазы или материала, поскольку находятся в другом окружении. Определяется это в первую очередь тем, что поверхность твердого металла всегда заряжена, из-за того, что она образована ионами, входящими в состав твердого вещества.

Под влиянием давления электронной компоненты  $P_e$  коллективизированные электроны выдавливаются за поверхность металла в сторону вакуума, что приводит к нарушению квазинейтральности и возникновению электрического поля. В итоге,

наличие поверхностного заряда приводит к образованию тонкого двойного электрического слоя, сформированного двумя пространственно разделёнными слоями электрических зарядов разного знака. Возникающее при этом электрическое поле, препятствующее уходу электронов на бесконечность, способствует установлению электростатического равновесия, при котором положительный заряд поверхности металла скомпенсирован отрицательным зарядом электронного облака со стороны вакуума.

Внешнее воздействие в виде ультракоротких сверхмощных лазерных импульсов на коллективизированные электроны может приводить к нелинейному отклику электронной компоненты. Этот эффект может быть положен в основу механизма сверхбыстрой (несколько сотен фемтосекунд) лазерной абляции с низкой плотностью, экспериментально наблюдавшейся в исследованиях [15-18]. В подходящих условиях этот же эффект может приводить к кулоновскому взрыву.

Для представления электронных процессов в ДЭС использовалось гидродинамическое описание, разработанное в [27] для континуальной модели [26]. В настоящей работе описание ДЭС адаптировано для новой гибридной модели, что позволило получить связь между градиентом неравновесного электронного давления с напряжённостью электрического поля и явным образом вычислять удельную объёмную силу электрического поля, необходимую для возникновения кулоновского взрыва.

Основное отличие предлагаемой математической постановки задачи о ДЭС от широко используемых дрейф-диффузионных постановок [23,24] состоит в наличии прямой связи градиента электронного давления с электрическим полем. Эта зависимость вытекает из гидродинамического (макроскопического) описания процессов в ДЭС. В квазистационарном приближении математическая формулировка ДЭС сводится к двум задачам, связанным между собой общей границей и условно называемым внутренней и внешней.

**Внутри конденсированной фазы:**

$$\begin{cases} \partial P_e(n_e, T_e) / \partial x = -en_e E_x \\ \varepsilon_0 \partial E_x / \partial x = e(zn_0 - n_e) \end{cases} \quad (1)$$

**Во внешней области:**

$$\begin{cases} \partial P_e(n_e, T_e) / \partial x = -en_e E_x \\ \varepsilon_0 \partial E_x / \partial x = -en_e \end{cases} \quad (2)$$

**Граничные условия:**

$$n_e(-\infty) = zn_0, \quad E_x(-\infty) = 0 \quad (3)$$

На поверхности металла выполняется условие непрерывности:

$$n_e(\Gamma_{lv}^-) = n_e(\Gamma_{lv}^+), \quad E_x(\Gamma_{lv}^-) = E_x(\Gamma_{lv}^+) \quad (4)$$

где соответственно  $-e$ ,  $\varepsilon_0$ ,  $E_x$  – заряд электрона, диэлектрическая постоянная и напряженность электрического поля;  $n_0$ ,  $z$  – концентрация ионов в конденсированной фазе и степень их ионизации;  $P_e(n_e, T_e)$  – полное давление в электронном газе.

#### 4. Неравновесная комбинированная континуально-атомистическая модель

Задача моделирования ультракороткого лазерного воздействия на металл описывается в односкоростном двухтемпературном приближении комбинированной континуально-атомистической моделью. Для электронной подсистемы и двойного электрического слоя (ДЭС), в отличие от постановок других авторов [23, 24], используется континуальное приближение гидродинамического уровня. Молекулярно-

динамическое представление используется для описания движения тяжелых частиц (ионов).

В атомистической постановке расчетная область (рис.3) в форме вытянутого вдоль оси  $X$  параллелепипеда полностью заполнена частицами вдоль  $Y, Z$ - осей и, частично вдоль оси  $X$ , взаимодействующих между собой посредством ЕАМ-потенциала, разработанного для меди в [48]. Частицы образуют монокристалл с соответствующей кристаллической решеткой (ГЦК, ОЦК). Их средняя кинетическая энергия соответствует начальной температуре 300 К. В направлениях  $Y$  и  $Z$  наложены периодические граничные условия, благодаря чему 3-D молекулярная динамика сведена к 1-D задаче по  $X$ .

Справа налево вдоль оси  $X$  воздействует лазерный импульс с интенсивностью  $G$ .

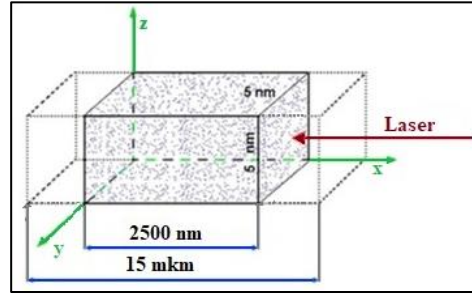


Рис.3. Схема вычислительного эксперимента в начальный момент времени.

Ключевым элементом метода является выбор потенциала (или силы) взаимодействия частиц. К настоящему времени разработаны удовлетворительные потенциалы для целого ряда металлов. Однако в подавляющем большинстве случаев они представляют равновесную ситуацию, так же как и уравнения состояния в континуальном подходе. Поэтому, для корректной формулировки молекулярно-динамической постановки задачи в односкоростном двухтемпературном приближении, в уравнения движения добавляется сила со стороны электронной подсистемы в форме градиента “неравновесной” части электронного давления, аналогично модели непрерывной среды:

$$\frac{\partial(\varepsilon_e^{ne})}{\partial t} + \frac{\partial(\varepsilon_e^{ne} u)}{\partial x} = - \left( P_e^{ne} \frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial W_e}{\partial x} + g(T_e)(T_e - T_a) + \frac{\partial G}{\partial x} \right) \quad (5)$$

$$\begin{cases} m_a \frac{d\vec{v}_j}{dt} = \vec{F}_j^{emb} + \vec{J}_j + \left[ -\frac{1}{n_a} \frac{\partial P_e^{ne}}{\partial x} \right]_j \vec{e}_x + f_j^{ne} \vec{e}_x \\ \frac{d\vec{r}_j}{dt} = \vec{v}_j, \quad j = 1 \dots N \end{cases} \quad (6)$$

*Континуальная компонента, уравнение (5).* Обозначения:  $u = \langle v_x \rangle$  -  $x$ -компонента средней скорости тяжелых частиц,  $W_e = -\lambda_e(T_e, T_i) \cdot \partial T_i / \partial x$  - поток электронной энергии,  $\lambda_e(T_e, T_i)$  - коэффициент теплопроводности электронов;  $\partial G / \partial x + aG = 0$  - уравнение переноса лазерного излучения, (закон Бугера).

Полные энергия и давление электронной подсистемы разбиваются на “равновесную” и “неравновесную” части [27]:

$$\begin{aligned} \varepsilon_e &= \varepsilon_e(\rho_e, T_e) = \varepsilon_e^{eq}(T_i) + \varepsilon_e^{ne}(T_i, T_e) \\ P_e &= P_e(\rho_e, T_e) = P_e^{eq}(T_i) + P_e^{ne}(T_i, T_e) \end{aligned} \quad (7)$$

“Равновесные” (верхний индекс  $eq$ ) части считаются парциально включенными в термическое и калорическое равновесные уравнения состояния металла. “Неравновесные” (верхний индекс  $ne$ ) - входят в уравнение (5).

Атомистическая компонента, система ОДУ (6), описывающая движение тяжелых частиц. Обозначения:  $\vec{r}_j, \vec{v}_j$  – радиус-вектор и скорость  $j$ -го атома,  $m_a, n_a$  – масса и концентрация атомов,  $\vec{F}_j^{emb}$  – сила, действующая на  $j$ -й атом, обусловленная ЕАМ потенциалом,  $\vec{e}_x$  – орт оси  $X$ ;  $\vec{J}_j = m_a(\vec{v}_j - \langle \vec{v} \rangle) g(T_e)(T_e - T_i) / 3k_B T_i n_a$  – сила, обеспечивающая обмен тепловой энергией между электронной и ионной подсистемами,  $T_e, T_i$  – электронная и ионная температуры,  $\langle \vec{v} \rangle$  – средняя скорость атомов (гидродинамическая),  $g(T_e)(T_e - T_i)$  – обменный член;  $b_{xj} = [-1/n_a \cdot \partial P_e^{ne} / \partial x]_j$  – сила увлечения ионов электронами (*blast force*),  $\partial P_e^{ne} / \partial x$  – градиент неравновесной части электронного давления;  $f_j^{ne}$  – сила, действующая на атом со стороны избыточного поля ДЭС у поверхности металла.

Модели, представленные в работах [49-52], решающие двухтемпературную задачу методом молекулярной динамики, в уравнении электронной энергии пренебрегают работой электронного давления, т.е. членом  $P_e \cdot du / dx$ , полагая, что его вклад в общий баланс энергии не существен по сравнению с энергией лазерного импульса. Авторами был проведен ряд расчетов, показавших, что для типовых фемтосекундных режимов лазерного воздействия с энергиями в импульсе  $\sim 10^{-1} \div 10^0$  Дж/см<sup>2</sup> дисбаланс энергии, вносимый не учетом работы электронного давления на временном отрезке, где температурное неравновесие подсистем еще велико (пикосекундный диапазон) составляет порядка 12-18%. По этой причине учет работы сил сжатия обязателен.

## 5. Вычислительный алгоритм

I шаг. Гидродинамическая скорость  $u$ , характеризующая в уравнении (5) процесс переноса электронной энергии, получается усреднением скоростей ионов в каждой расчетной ячейке. Поэтому значение скорости оказывается сильно флуктуирующей величиной, что затрудняет прямое численное решение континуального уравнения (5). Его численное решение осуществлялось методом суммарной аппроксимации. Каждый шаг по времени состоял из двух этапов:

На этапе – 1: конечно-разностным методом (явно-неявная разностная схема Кранка-Николсона на эйлеровой пространственной сетке) решается уравнение

$$\frac{\partial \varepsilon_e^{ne}}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left( \lambda_e(T_e, T_i) \frac{\partial T_e}{\partial x} \right) - P_e^{ne} \frac{\partial u}{\partial x} - g(T_e)(T_e - T_i) - \frac{\partial G}{\partial x} \quad (8)$$

Положения атомов и соответственно электронов при этом считаются замороженными.

На этапе - 2: решается уравнение конвективного переноса, т.е. уравнение непрерывности:

$$\frac{\partial \varepsilon_e^{ne}}{\partial t} + \frac{\partial (\varepsilon_e^{ne} u)}{\partial x} = 0 \quad (9)$$

Решение (9) осуществляется с помощью метода молекулярной динамики. Для этого полученные на первом этапе значения электронной энергии в каждой расчетной ячейке распределяются поровну между всеми атомами, находящимися в данной ячейке. Затем выполняется молекулярно-динамический шаг по времени, в результате которого происходит смещение тяжелых частиц в пространстве. Таким образом, вместе со смещением тяжелых частиц осуществлялся перенос электронной энергии через границы эйлеровых ячеек. Наконец, после суммирования электронных энергий нового состава атомов в каждой ячейке (и деления на объем ячейки) получаются



скорректированные за счет переноса значения  $\varepsilon_e^{ne}$ . На этом завершается двухэтапный шаг по времени для односкоростной модели.

II шаг. Определение пространственной зависимости силы  $f^{ne}$ , действующей на атом со стороны избыточного поля ДЭС у поверхности металла. Входными данными для этой задачи являются  $n_o$ ,  $z$ ,  $T_e$ . В результате ее решения на выходе получается пространственные распределения электрического поля  $E_x$  и электронной концентрации  $n_e$ .

Для определения силы  $f^{ne}$ , задача (1)-(4) решается дважды на каждом временном шаге задачи (5)-(6): первый раз для температуры электронного газа у поверхности  $T = T_e$ , при этом определяется  $E_x(T_e)$ ; второй раз для температуры, равной температуре ионов у поверхности  $T = T_i$ , для того, чтобы определить значение электрического поля  $E_x(T_i)$  в условиях теплового равновесия.

Тогда удельная сила, входящая в уравнение (5) определяется избыточным электрическим полем (по отношению к равновесному) и рассчитывается следующим образом:

$$f^{ne}(T_e, T_i) = z \frac{e}{m_a} [E_x(T_e) - E_x(T_i)] \quad (10)$$

Здесь, как и ранее,  $e$  – заряд электрона,  $m_a$  – масса иона (атома).

При этом в задаче (5)-(6) следует использовать граничное условие для электронной компоненты

$$\left. \frac{\partial P_e^{ne}}{\partial x} \right|_{x=\Gamma_{lv}} = 0 \quad (11)$$

так как передача импульса от электронов тяжелым частицам в приграничной области уже учтена посредством объемной силы  $f^{ne}$ .

## 6. Моделирование кулоновского взрыва и расслоения металлической мишени

Результаты моделирования ультракороткого лазерного воздействия на медную мишень средствами комбинированной континуально-атомистической модели в односкоростном двухтемпературном приближении (5)-(6) с учетом электронного давления (1)-(4) и без его учета представлены на видео 4-7 для режима воздействия лазерного импульса гауссовой формы с длительностью  $\tau = 0.1$  ps и плотностью энергии  $J = 1$  J/cm<sup>2</sup> на ГЦК-кристалл меди вдоль направления (100). Максимум импульса достигался в момент времени  $t = 1.3$  ps. В расчётах для атомистической компоненты использовался потенциал взаимодействия ЕАМ для меди [48].

Динамика процесса абляции визуализирована на представленных видео после момента времени  $t = 1$  ps, то есть развитие процесса абляции представлено после окончания лазерного импульса и до окончания процесса  $t > \tau$ . Для визуализации используется скриншот МДМ, синхронизированный со следующими характеристиками процесса абляции: температурами электронов  $T_e$  и ионов  $T_i$ ; плотностью ионов  $\rho$  и параметром порядка; электронным  $P_e$  и ионным  $P_i$  давлением; гидродинамической скоростью  $u$  частиц и кластеров.

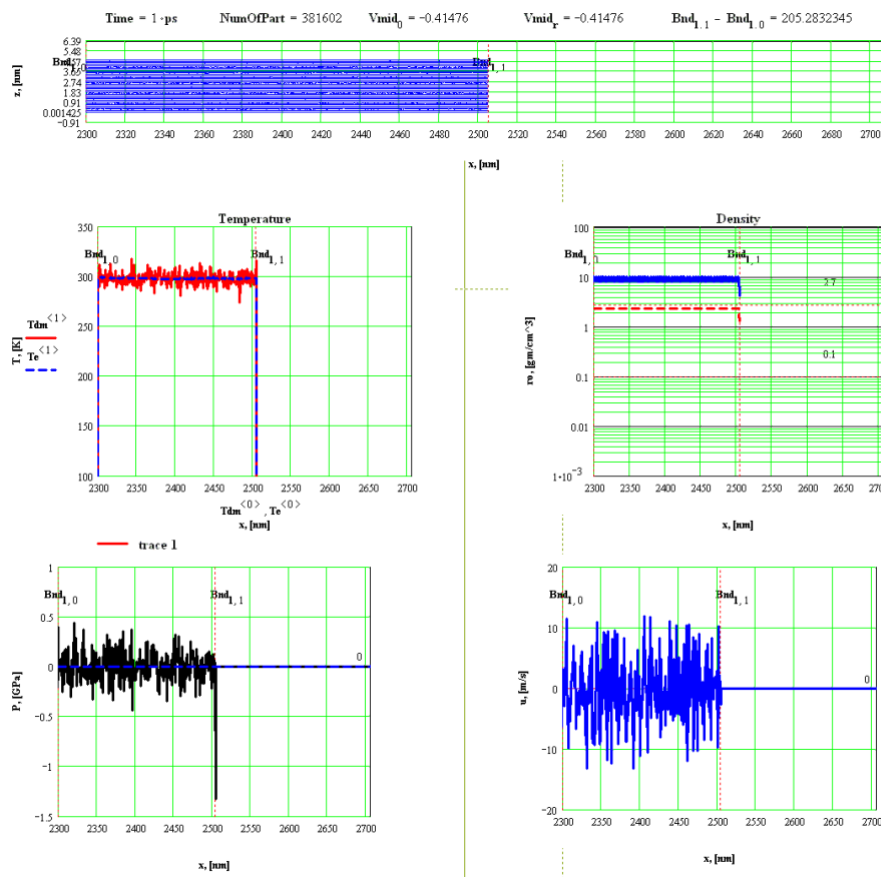
Видео демонстрируют процесс абляции по результатам моделирования с учетом электронного давления (видео 4,5) и без его учета (видео 6).

Моделирование с учетом электронного давления демонстрирует бимодальное распределение частиц, показывающее два механизма абляции: быстрый нетепловой (кулоновский взрыв) и медленный (тепло-гидродинамический), которые экспериментально наблюдались в [15-18] (видео 4).



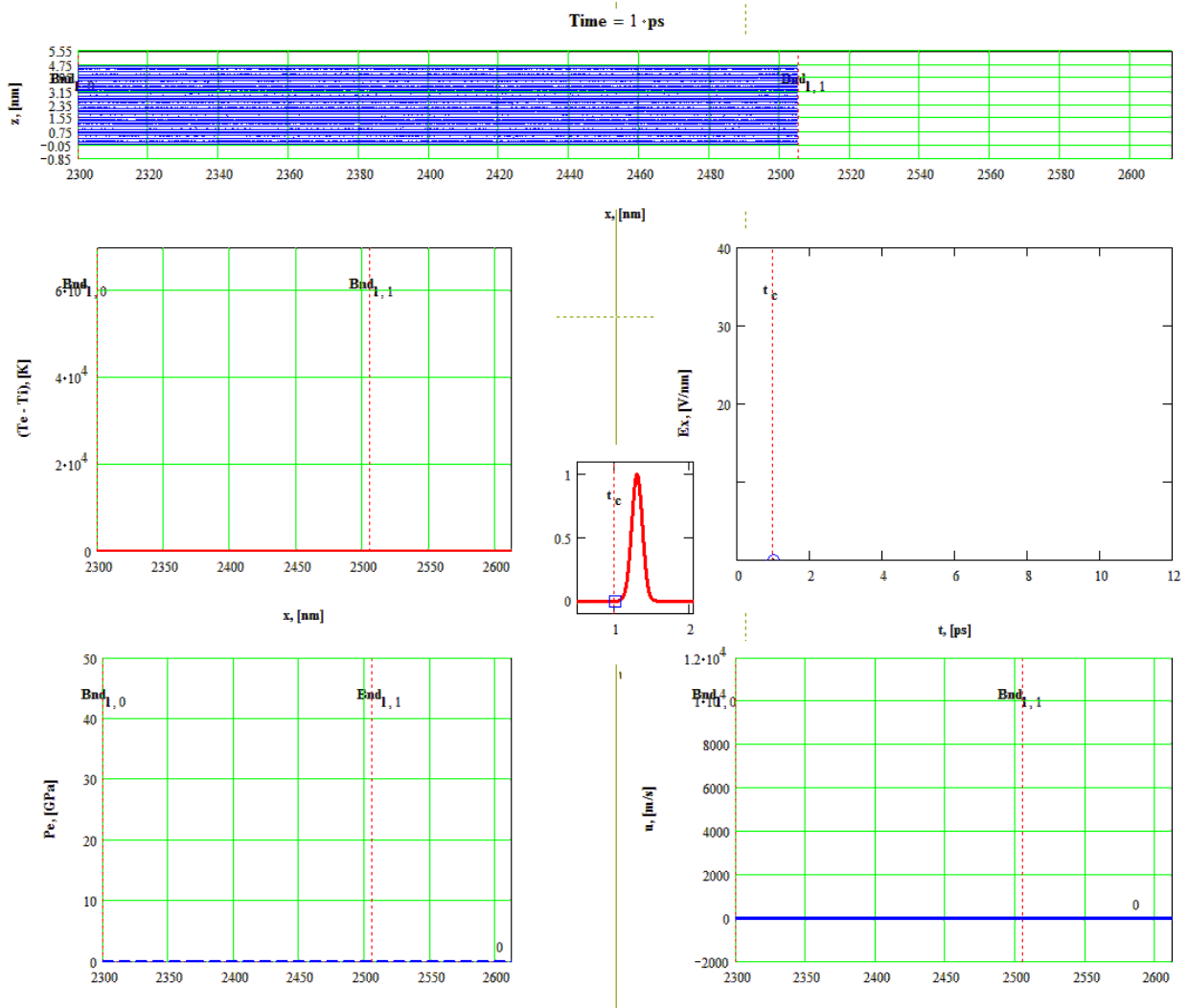
Сверхбыстрые электронные процессы, приводящие к кулоновскому взрыву по результатам моделирования представлены на видео 5. В представленном видео процесс сверхбыстрой лазерной абляции с низкой плотностью протекает очень быстро, в течение времени  $t = 11$  ps, поэтому видео построено с малым шагом по времени  $\Delta t = 0.02-0.04$  ps, что позволяет изучить динамику сверхбыстрых электронных процессов и кулоновского взрыва.

Картина формирования кулоновского взрыва разворачивается стремительно, уже через  $t \approx 0.42$  ps после окончания импульса достигнуто максимальное неравновесие электронной и ионной температур у поверхности мишени  $\Delta T_{max} = T_e - T_i = 6.5 \times 10^4$  K. При этом “неравновесная” часть электронного давления у поверхности мишени также достигает своего максимального значения  $P_e = 47$  ГПа и многократно превосходит ионное давление  $P_i$ . Максимального значения достигает электрическое поле  $E_x(T_e) = 32$  V/nm. Большой градиент электронного давления у поверхности в ранней фазе разлета, уже через  $t \approx 1$  ps после достижения максимальных значений характеристик процесса взрывной абляции ( $t = 2.4$  ps), приводит к срыву тонкого приповерхностного субнанометрового слоя вещества, в виде отдельных ионов и их кластеров, которые летят со скоростью  $u = 9000$  m/s. Таким образом, на поверхности мишени наблюдается кулоновский взрыв, вызванный большим градиентом электронного давления в приповерхностном слое мишени, увеличение которого спровоцировано сверхмощным ультракоротким лазерным излучением. В дальнейшем скорость разлета увеличивается выше  $10000$  m/s.



Видео 4. Результаты моделирования с учетом кулоновского взрыва, 69 ps после окончания импульса. Характеристики процесса абляции (слева направо, сверху вниз): температуры электронов  $T_e$  (синий пунктир) и ионов  $T_i$  (красная сплошная линия); плотность ионов  $\rho$  (синяя сплошная линия) и параметр порядка (красная пунктирная линия); давление “неравновесное” электронное  $P_e$  (синий пунктир), ионное  $P_i$  (черная сплошная линия); гидродинамическая скорость  $u$  частиц и кластеров (синяя сплошная).

Далее (видео 4) по мере уменьшения разности температур подсистем “неравновесная” часть электронного давления быстро падает, и начинается относительно более медленный процесс разгрузки ионного давления. Значения электронной и ионной температур выравниваются,  $T_e \approx T_i \approx 5500$  К, в момент  $t = 26$  ps. В течение этого времени формируется уходящая вглубь металла ударная волна ( $P \approx 28$  GPa), сопровождающаяся волной разрежения (отрицательного давления, достигающего значения  $P \approx -5$  GPa). Эта волна разрежения становится причиной отделения от расплава пленок жидкости характерной толщины 10-15 nm, начало процесса в момент  $t \approx 38$  ps. Максимальная скорость разлета пленок достигает  $u \approx 4000$  m/s.

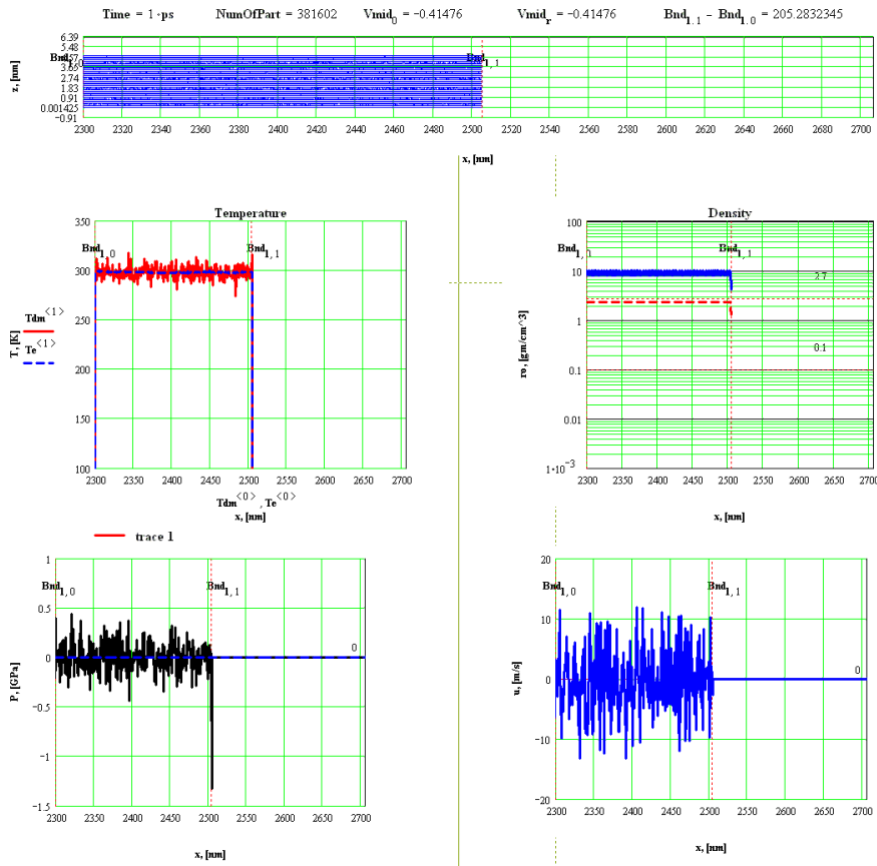


Видео 5. Детализация видео 4. Динамика сверхбыстрых электронных процессов и кулоновского взрыва, 9.4 ps после окончания импульса. Характеристики процесса (слева направо, сверху вниз): разность электронной и ионной температур у поверхности мишени  $\Delta T = T_e - T_i$  (красная сплошная линия); напряженность электрического поля  $E_x(T_e)$  (черная сплошная линия); электронное давление  $P_e$  (синий пунктир); гидродинамическая скорость  $u$  частиц и кластеров (синяя сплошная линия).

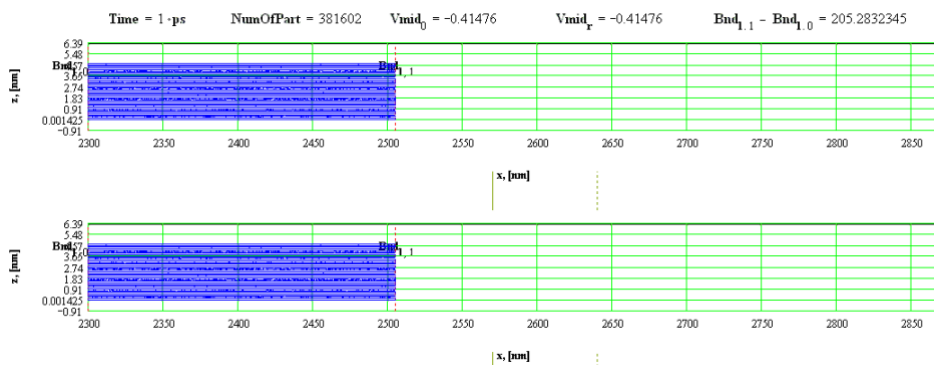
На видео 6 представлены результаты моделирования абляции медной мишени без учета влияния двойного электрического слоя. Как видим в начальной фазе из-за отсутствия действия дополнительной силы, обусловленной большим градиентом электронного давления у поверхности, интенсивный разлет атомарно-ионных кластеров и электронов с поверхности облучаемой мишени и вблизи неё отсутствует.

Наблюдается процесс испарения с поверхности, что подтверждается уменьшением плотности вблизи поверхности до  $\rho \approx 0.008 \text{ cm}^{-3}$  и параметра порядка. Отделяется совсем небольшое количество медленных мелких частиц, скорость которых не превышает  $u \leq 4000 \text{ m/s}$ .

Сравнение результатов моделирования с двойным электрическим слоем и без него, представленных на видео 7, показывает, что вылет вещества с поверхности мишени возможен только с учетом двойного электрического слоя.



Видео 6. Результаты моделирования без учета кулоновского взрыва, 86 ps после начала импульса. Характеристики процесса абляции (слева направо, сверху вниз): температуры электронов  $T_e$  (синий пунктир) и ионов  $T_i$  (красная сплошная линия); плотность ионов  $\rho$  (синяя сплошная линия) и параметр порядка (красная пунктирная линия); давление "неравновесное" электронное  $P_e$  (синий пунктир), ионное  $P_i$  (сплошная черная линия); гидродинамическая скорость  $u$  частиц и кластеров (синяя сплошная линия).



Видео 7. Сравнение результатов моделирования с учетом кулоновского взрыва (верхний скриншот) и без учета кулоновского взрыва (нижний скриншот), 70 ps после окончания импульса.

## 7. Выводы

Кулоновский взрыв является одним из электронных механизмов лазерной абляции, который широко обсуждается в последние несколько десятилетий [19-25] и наблюдался в экспериментах [15-18]. В данной статье для исследования возможности реализации кулоновского взрыва в металлах была предложена и разработана новая комбинированная континуально-атомистическая модель и представлены результаты математического моделирования кулоновского взрыва под воздействием фс-пс-лазерных импульсов в медной мишени.

Новое математическое описание ультракороткого лазерного воздействия на металл осуществляется в односкоростном двухтемпературном приближении комбинированной континуально-атомистической моделью. Для электронной подсистемы и двойного электрического слоя (ДЭС), в отличие от постановок других авторов [23, 24], используется континуальное приближение гидродинамического уровня. Молекулярно-динамическое представление используется для описания движения тяжелых частиц (ионов).

Для представления электронных процессов в ДЭС использовалось гидродинамическое описание, разработанное в [27]. В [26] это описание использовалось в континуальной модели, а в настоящей работе было адаптировано для новой гибридной модели, что позволило получить связь между градиентом неравновесного электронного давления с напряжённостью электрического поля и явным образом вычислять удельную объёмную силу электрического поля, необходимую для возникновения кулоновского взрыва.

С помощью новой континуально-атомистической модели выполнено обширное исследование различных режимов лазерного fs, ps воздействия на Cu мишень. Были получены два механизма абляции, наблюдаемые в экспериментах [15-18] - быстрый нетепловой, определяемый кулоновскими силами и медленный, реализующийся в гидродинамической волне разгрузки.

В исследовании результатов моделирования значительную роль играет их визуализация, дающая наглядное представление об эволюции процесса лазерной абляции медной мишени под воздействием ультракоротких (fs, ps) мощных лазерных импульсов. Понимание и интерпретация результатов моделирования является нетривиальной задачей для любой категории исследователей не только из-за большого объема получаемых результатов, но и из-за большого разнообразия моделируемых процессов, отличающихся сильной пространственно-временной разномасштабностью. Для облегчения понимания полученных результатов, представляющих ряд массивов числовых значений большого объема, была использована анимация, один из методов динамической визуализации.

Использование анимации позволило:

- детально изучить динамику бимодального процесса лазерной абляции медной мишени.
- детально представить как сверхбыстрый механизм лазерной абляции - кулоновский взрыв (видео 5), протекающий в течение очень короткого времени, составляющего  $t = 11$  ps, так и медленный тепловой механизм расслоения мишени (видео 4),
- изучить закономерности, получить количественные характеристики процессов,
- наглядно представить сравнение результатов моделирования с учетом двойного электрического слоя и без него, представленных на видео 4, 6, 7, показавшее, что вылет вещества с поверхности мишени возможен только с учетом двойного электрического слоя.

Использование динамической визуализации, для представления результатов математического моделирования способствовало снижению когнитивной нагрузки, связанной с их сложностью, облегчая понимание, исследование и анализ [42].

В рассматриваемой научной проблеме динамическая визуализация стала не только средством представления результатов моделирования, но и выступила полноценным инструментом научного поиска.

## Благодарности

Результаты получены с использованием оборудования ЦКП ИПМ им. М.В. Келдыша РАН (<http://ckp.kiam.ru>). Работа выполнена при поддержке Российского Научного Фонда, грант № 18-11-00318.

## Список литературы

1. Nanomaterials: Processing and Characterization with Lasers, S. Ch. Singh, H.B. Zeng, Ch. Guo, W. Cai (Eds.), Weinheim:Wiley-VCH, 2012.
2. Zhang Z., Xu Z., Wang C., Liu S., Yang Z., Zhang Q., Xu W. Molecular dynamics-guided quality improvement in the femtosecond laser percussion drilling of microholes using a two-stage pulse energy process. // *Optics & Laser Technology*, Vol. 139, 2021, 106968. (doi:10.1016/j.optlastec.2021.106968)
3. Chichkov B.N. Laser printing: trends and perspectives. // *Appl. Phys. A*, Vol. 128, 2022, 1015. (doi:10.1007/s00339-022-06158-9)
4. Elahi N., Kamali M., Baghersad M.H. Recent biomedical applications of gold nanoparticles: A review. // *Talanta*, Vol. 184, 2018, 537-556. (doi:10.1016/j.talanta.2018.02.088)
5. Fadeeva E., Schlie-Wolter S., Chichkov B.N., Paasche G., Lenarz T. Structuring of biomaterial surfaces with ultrashort pulsed laser radiation. // *Laser Surface Modification of Biomaterials*, 2016, 145–172. (doi:10.1016/b978-0-08-100883-6.00005-8)
6. Jendrzey S., Gökce B., Epple M., Barcikowski S. How Size Determines the Value of Gold: Economic Aspects of Wet Chemical and Laser-Based Metal Colloid Synthesis. // *ChemPhysChem*, Vol. 18, No. 9, 2017, 1012–1019. (doi:10.1002/cphc.201601139)
7. Gamaly E.G. Femtosecond Laser-Matter Interaction: Theory, Experiments and Applications. Boca Raton: CRC Press, 2011. (doi: 10.1201/9789814267809)
8. Mazhukin A.V., Mazhukin V.I., Demin M.M. Modeling of femtosecond laser ablation of Al film by laser pulses. // *Appl. Surf. Sci.*, 2011, No. 257, 5443–5446. (doi:10.1016/j.apsusc.2010.11.154)
9. Ovchinnikov A.V., Chefonov O.V., Agranat M.B., Kudryavtsev A.V., Mishina E.D., Yurkevich A.A. Free-carrier generation dynamics induced by ultrashort intense terahertz pulses in silicon. // *Optics Express*, Vol. 29, No. 16, 2021, 26093-26102. (doi:10.1364/OE.430752)
10. Moser R., Domke M., Winter J., Huber H.P., Marowsky G. Single pulse femtosecond laser ablation of silicon – a comparison between experimental and simulated two-dimensional ablation profiles. // *Adv. Opt. Techn.*, Vol. 7, No. 4, 2018, 1-10. (doi:10.1515/aot-2018-0013)
11. Menéndez-Manjón A., Barcikowski S., Shafeev G.A., Mazhukin V.I., Chichkov B.N. Influence of beam intensity profile on the aerodynamic particle size distributions generated by femtosecond laser ablation. *Laser and Particle Beams*, Vol. 28, No. 1, 2010, 45 - 52. (doi:doi:10.1017/S0263034609990553)
12. Gamaly E.G., Rode A.V. Physics of ultra-short laser interaction with matter: From phonon excitation to ultimate transformations. // *Progress in Quantum Electronics*, Vol. 37, No. 5, 2013, 215–323. (doi: 10.1016/j.pquantelec.2013.05.001)
13. Mazhukin V.I. Kinetics and Dynamics of Phase Transformations in Metals Under Action of Ultra-Short High-Power Laser Pulses. Chapter 8, // *Laser Pulses – Theory, Technology, and Applications*, 2012, I. Peshko (Ed.), InTech, Croatia, 219 -276 (doi:10.5772/50731)

14. Wang B., Wang Y., Song H., Lam Y.C., Shaymaa E.M., Liu S. Threshold effect on the femtosecond laser-induced periodic subwavelength structure: An analytical approach. // *Optics & Laser Technology*, Vol. 158, Part A, 2023, 108804. (doi: 10.1016/j.optlastec.2022.108804).
15. Roeterdink W.G., Juurlink L.B.F., Vaughan O.P.H., Dura Diez J., Bonn M., Kleyn A.W. Coulomb explosion in femtosecond laser ablation of Si(111). // *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 82, No. 23, 2003, 4190–4192. (doi:10.1063/1.1580647)
16. Cheng H.-P., Gillaspay J.D. Nanoscale modification of silicon surfaces via Coulomb explosion. // *Phys. Rev. B*, Vol. 55, No. 4, 1997, 2628–2636. (doi:10.1103/physrevb.55.2628)
17. Dachraoui Hatem, Husinsky Wolfgang. Fast electronic and thermal processes in femtosecond laser ablation of Au. // *Appl. Physics Lett.*, Vol. 89, 2006, 104102.
18. Dachraoui H., Husinsky W., Betz G. Ultra-short laser ablation of metals and semiconductors: evidence of ultra-fast Coulomb explosion. // *Appl. Phys. A*, Vol. 83, 2006, 333–336. (doi: 10.1007/s00339-006-3499-y)
19. Vella A., Deconihout B., Marrucci L., Santamato E., Femtosecond Field Ion Emission by Surface Optical Rectification. // *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 99, No. 4, 2007, 046103-4. (doi:10.1103/physrevlett.99.046103)
20. Shuchang Li, Suyu Li, Fangjian Zhang, Dan Tian, He Li, Dunli Liu, Yuanfei Jiang, Anmin Chen, Mingxing Jin. Possible evidence of Coulomb explosion in the femtosecond laser ablation of metal at low laser fluence. // *App. Surf. Sci.*, Vol. 355, 2015, 681-685. (doi: 10.1016/j.apsusc.2015.07.136)
21. Cheng Hai-Ping, Gillaspay J.D. Nanoscale modification of silicon surfaces via Coulomb explosion. // *Phys. Rev. B*, Vol. 55, No. 4, 1997, 2628 - 2636. (doi:10.1103/PhysRevB.55.2628)
22. Stoian R., Rosenfeld A., Hertel I.V., Bulgakova N.M., Campbell E.E. Comment on “Coulomb explosion in femtosecond laser ablation of Si(111)” [*Appl. Phys. Lett.*, 82, 4190 (2003)]. // *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 85, No. 4, 2004, 694–695. (doi:10.1063/1.1771817)
23. Bulgakova N.M., Stoian R., Rosenfeld A., Marine W., Campbell E.E. A general continuum approach to describe fast electronic transport in pulsed laser irradiated materials: the problem of Coulomb explosion. // *High-Power Laser Ablation V*, Proceedings of SPIE, Vol. 5448, 2004, 121-135. (doi:10.1117/12.548823)
24. Tao Sha, Wu Benxin. The effect of emitted electrons during femtosecond laser–metal interactions: A physical explanation for coulomb explosion in metals. // *App. Surf. Sci.*, Vol. 298, 2014, 90–94.
25. Shugaev M.V., Wu C., Armbruster O., Naghilou A., Brouwer N., Ivanov D.S., Zhigilei L.V. Fundamentals of ultrafast laser–material interaction. // *MRS Bulletin*, Vol. 41, No. 12, 2016, 960–968.
26. Mazhukin V.I., Demin M. M., Shapranov A.V., Mazhukin A.V. Role of electron pressure in the problem of femtosecond laser action on metals. // *App. Surf. Sci.*, Vol. 530, 2020, 147227. (doi: 10.1016/j.apsusc.2020.147227)
27. Mazhukin V.I., Shapranov A.V., Mazhukin A.V. The structure of the electric double layer at the metal-vacuum interface. // *Math. Montis.*, Vol. 44, 2019, 110-121. (doi: 10.20948/mathmon-2019-44-9)
28. Mazhukin V.I., Shapranov A.V., Mazhukin A.V., Koroleva O.N. Mathematical formulation of a kinetic version of Stefan problem for heterogeneous melting/crystallization of metals. // *Math. Montis.*, Vol. 36, 2016, 58-77.
29. Jia Xiao, Zhao Xin. Numerical study of material decomposition in ultrafast laser interaction with metals. // *App. Surf. Sci.*, Vol. 463, 2019, 781–790.
30. Xiang M., Jiang S., Cui J., Xu Y., Chen J. Coupling of dynamic ductile damage and melting in shock-induced micro-spalling: Modeling and applications. // *Int. J. Plast.*, Vol. 136, 2021, 102849. (doi:10.1016/j.ijplas.2020.102849)
31. Mazhukin V.I., Shapranov A.V., Mazhukin A.V., Breslavsky P.V. Atomistic modeling of the dynamics of the solid/liquid interface of Si melting and crystallization taking into

account deeply superheated/supercooled states. // *Math. Montis.*, Vol. 47, 2020, 87-99. (doi: 10.20948/mathmontis-2020-47-8)

32. Mazhukin V. I., Koroleva O. N., Shapranov A. V., Demin M. M., Aleksashkina A. A. Determination of thermal properties of gold in the region of melting–crystallization phase transition: molecular dynamics approach. // *Math. Models Comput. Simul.*, Vol. 14, No. 4, 2022, 662–676. (doi: 10.1134/S2070048222040068)

33. Mazhukin V. I., Koroleva O. N., Demin M. M., Shapranov A. V., Aleksashkina A. A. Atomistic Simulation of the Coexistence of Liquid–Vapor Phase States for Gold and Determination of Critical Parameters. // *Math. Models Comput. Simul.*, Vol. 14, No. 5, 2022, 819–828. (doi: 10.1134/S207004822205009X)

34. Mazhukin V.I., Samokhin A.A., Shapranov A.V., Demin M.M. Modeling of thin film explosive boiling - surface evaporation and electron thermal conductivity effect. // *Mater. Res. Express*, Vol. 2-1, 2015, 016402 (1-9). (doi:10.1088/2053-1591/2/1/016402)

35. Mazhukin V.I., Samokhin A.A., Demin M.M., Shapranov A.V. Explosive boiling of metals upon irradiation by a nanosecond laser pulse. // *Quantum Electronics*, Vol. 44, No. 4, 2014, 283–285.

36. Shih C.Y., Streubel R., Heberle J., Letzel A., Shugaev M.V., Wu C., Zhigilei L.V. Two mechanisms of nanoparticle generation in picosecond laser ablation in liquids: the origin of the bimodal size distribution. // *Nanoscale*, Vol. 10, No. 15, 2018, 6900–6910. (doi:10.1039/c7nr08614h)

37. Pariz I., Goel S., Nguyen D. T., Buckeridge J., Zhou X. A critical review of the developments in molecular dynamics simulations to study femtosecond laser ablation. // *Materials Today: Proceedings*, Vol. 64, No. 3, 2022, 1339-1348. (doi: 10.1016/j.matpr.2022.03.723)

38. Demin M.M., Koroleva O.N., Aleksashkina A.A., Mazhukin V.I. Molecular-dynamic modeling of thermophysical properties of phonon subsystem of copper in wide temperature range. // *Math. Montis.*, Vol. 47, 2020, 137 - 151. (doi: 10.20948/mathmontis-2020-47-12).

39. Li X., Guan Y. Theoretical fundamentals of short pulse laser–metal interaction: A review. // *Nanotechnol. Precis. Eng.*, Vol. 3, 2020, 105-125. (doi:10.1016/j.npe.2020.08.001)

40. Meng Yu., Ji P., Jiang L., Lin G., Guo J. Spatiotemporal insights into the femtosecond laser homogeneous and heterogeneous melting aluminum by atomistic-continuum modeling. // *Appl. Phys. A*, Vol. 128, 2022, 520. (doi: 10.1007/s00339-022-05610-0)

41. Yao J., Qi D., Liang H., He Y., Yao Y., Jia T., Yang Y., Sun Z., Zhang S. Exploring Femtosecond Laser Ablation by Snapshot Ultrafast Imaging and Molecular Dynamics Simulation. // *Vol. 2022, 2022, Article ID 9754131, 1-11.* (doi: 10.34133/2022/9754131)

42. Aysolmaz Banu, Reijers Hajo A. Animation as a dynamic visualization technique for improving process model comprehension. // *Information & Management*, Vol. 58, No. 5, 2021, 103478. (doi: 10.1016/j.im.2021.103478)

43. Ahmed A., Fu X., Hong S.H., Nguyen Q.H., Xu K. Visual Analysis of History of World Cup: A Dynamic Network with Dynamic Hierarchy and Geographic Clustering. // *Visual Information Communication*. Springer, Boston, MA, 2009. (doi.org/10.1007/978-1-4419-0312-9\_2)

44. Mazhukin V.I., Samokhin A.A., Shapranov A.V., Demin M.M., Pivovarov P.A. Modeling and visualization of nanosecond laser vaporization of metals in near critical region. // *Scientific Visualization*, Vol. 8, No 1, 2016, 1-22.

45. Breslavskiy P.V., Koroleva O.N., Mazhukin A.V. The evolution of the plasma formation in the gas medium, modeling with visualization of the grid nodes dynamics and the interaction of shock and thermal waves. // *Scientific Visualization*, Vol.7, No. 5, 2015, 1-11.

46. Bete G. and Sommerfeld A. *Electronic Theory of Metals*, Springer, Berlin, 1933.

47. Ashcroft N.W. and Mermin N.D. *Solid State Physics*. W. B. Saunders Co., 1976.

48. Mishin Y., Mehl M.J., Papaconstantopoulos D.A., Voter A.F., Kress J.D. Structural stability and lattice defects in copper: Ab initio, tight-binding, and embedded-atom calculations // *Phys. Rev. B*, Vol. 63, 2001, 224106.



49. Lin Z., Leveugle E., Bringa E.M., Zhigilei L.V., Molecular Dynamics Simulation of Laser Melting of Nanocrystalline Au. // *The Journal of Physical Chemistry C*, Vol. 114, No. 12, 2009, 5686–5699. (doi:10.1021/jp909328q)
50. Povarnitsyn M. E., Itina T. E., Sentis M., Khishchenko K. V., and Levashov P. R. Material decomposition mechanisms in femtosecond laser interactions with metals. // *Phys. Rev. B*, Vol. 75, 2007, 235414.
51. Mazhukin V.I., Demin M.M., Shapranov A.V. High-speed laser ablation of metal with pico- and subpicosecond pulses. // *Appl. Surf. Sci.*, Vol. 302, 2014, 6–10.
52. Shugaev M.V., Zhigilei L.V. Thermodynamic analysis and atomistic modeling of subsurface cavitation in photomechanical spallation. // *Comput. Mater. Sci.*, Vol. 166, 2019, 311-317. (doi:10.1016/j.commatsci.2019.05.017).

# Visualization Analysis of the Results of Continuum-Atomistic Modeling of a Coulomb Explosion in Metals Under the Influence of Ultrashort (fs, ps) Laser Action

V.I. Mazhukin<sup>1</sup>, A.V. Shapranov<sup>2</sup>, M.M. Demin<sup>3</sup>, O.N. Koroleva<sup>4</sup>, A.V. Mazhukin<sup>5</sup>

Keldysh Institute of Applied Mathematics RAS

- <sup>1</sup> ORCID: 0000-0001-5590-3731, [vim@modhef.ru](mailto:vim@modhef.ru)  
<sup>2</sup> ORCID: 0000-0001-8851-2286, [ashapranov@modhef.ru](mailto:ashapranov@modhef.ru)  
<sup>3</sup> ORCID: 0000-0001-6662-7699, [mdemin@mail.ru](mailto:mdemin@mail.ru)  
<sup>4</sup> ORCID: 0000-0001-5292-1336, [koroleva.on@mail.ru](mailto:koroleva.on@mail.ru)  
<sup>5</sup> ORCID: 0000-0001-7538-6460, [specimen@mail.ru](mailto:specimen@mail.ru)

## Abstract

A continuum-atomistic model that describes nonequilibrium thermal, hydrodynamic, and electronic processes in metals that occur under the action of ultrashort (fs, ps) laser radiation has been developed. A detailed study of two mechanisms of ultrashort laser ablation of Cu was carried out: fast - Coulomb, determined by Coulomb forces, and slow - thermal, realized in the unloading wave after the end of the laser pulse. Modeling showed that the excess nonequilibrium pressure of collectivized electrons plays a leading role in the formation of a strong electric field at the metal-vacuum interface. This effect can be taken as the basis for the Coulomb explosion in metals. The main feature of the work is the widespread use of modern visualization tools for processing and presenting simulation results.

**Keywords:** ultrashort laser ablation, Coulomb explosion in metal, continuum-atomistic model, dynamic imaging, electric double layer.

## References

1. Nanomaterials: Processing and Characterization with Lasers, S. Ch. Singh, H.B. Zeng, Ch. Guo, W. Cai (Eds.), Weinheim:Wiley-VCH, 2012.
2. Zhang Z., Xu Z., Wang C., Liu S., Yang Z., Zhang Q., Xu W. Molecular dynamics-guided quality improvement in the femtosecond laser percussion drilling of microholes using a two-stage pulse energy process. // Optics & Laser Technology, Vol. 139, 2021, 106968. (doi:10.1016/j.optlastec.2021.106968)
3. Chichkov B.N. Laser printing: trends and perspectives. // Appl. Phys. A, Vol. 128, 2022, 1015. (doi:10.1007/s00339-022-06158-9)
4. Elahi N., Kamali M., Baghersad M.H. Recent biomedical applications of gold nanoparticles: A review. // Talanta, Vol. 184, 2018, 537-556. (doi: 10.1016/j.talanta.2018.02.088)
5. Fadeeva E., Schlie-Wolter S., Chichkov B.N., Paasche G., Lenarz T. Structuring of biomaterial surfaces with ultrashort pulsed laser radiation. // Laser Surface Modification of Biomaterials, 2016, 145–172. (doi:10.1016/b978-0-08-100883-6.00005-8)
6. Jendrzey S., Gökce B., Epple M., Barcikowski S. How Size Determines the Value of Gold: Economic Aspects of Wet Chemical and Laser-Based Metal Colloid Synthesis. // ChemPhysChem, Vol. 18, No. 9, 2017, 1012–1019. (doi:10.1002/cphc.201601139)
7. Gamaly E.G. Femtosecond Laser-Matter Interaction: Theory, Experiments and Applications. Boca Raton: CRC Press, 2011. (doi: 10.1201/9789814267809)
8. Mazhukin A.V., Mazhukin V.I., Demin M.M. Modeling of femtosecond laser ablation of Al film by laser pulses. // Appl. Surf. Sci., 2011, No. 257, 5443–5446. (doi:10.1016/j.apsusc.2010.11.154)

9. Ovchinnikov A.V., Chefonov O.V., Agranat M.B., Kudryavtsev A.V., Mishina E.D., Yurkevich A.A. Free-carrier generation dynamics induced by ultrashort intense terahertz pulses in silicon. // *Optics Express*, Vol. 29, No. 16, 2021, 26093-26102. (doi:10.1364/OE.430752)
10. Moser R., Domke M., Winter J., Huber H.P., Marowsky G. Single pulse femtosecond laser ablation of silicon – a comparison between experimental and simulated two-dimensional ablation profiles. // *Adv. Opt. Techn.*, Vol. 7, No. 4, 2018, 1-10. (doi:10.1515/aot-2018-0013)
11. Menéndez-Manjón A., Barcikowski S., Shafeev G.A., Mazhukin V.I., Chichkov B.N. Influence of beam intensity profile on the aerodynamic particle size distributions generated by femtosecond laser ablation. *Laser and Particle Beams*, Vol. 28, No. 1, 2010, 45 - 52. (doi: doi:10.1017/S0263034609990553)
12. Gamaly E.G., Rode A.V. Physics of ultra-short laser interaction with matter: From phonon excitation to ultimate transformations. // *Progress in Quantum Electronics*, Vol. 37, No. 5, 2013, 215–323. (doi: 10.1016/j.pquantelec.2013.05.001)
13. Mazhukin V.I. Kinetics and Dynamics of Phase Transformations in Metals Under Action of Ultra-Short High-Power Laser Pulses. Chapter 8, // *Laser Pulses – Theory, Technology, and Applications*, 2012, I. Peshko (Ed.), InTech, Croatia, 219 -276 (doi: 10.5772/50731)
14. Wang B., Wang Y., Song H., Lam Y.C., Shaymaa E.M., Liu S. Threshold effect on the femtosecond laser-induced periodic subwavelength structure: An analytical approach. // *Optics & Laser Technology*, Vol. 158, Part A, 2023, 108804. (doi: 10.1016/j.optlastec.2022.108804).
15. Roeterdink W.G., Juurlink L.B.F., Vaughan O.P.H., Dura Diez J., Bonn M., Kleyn A.W. Coulomb explosion in femtosecond laser ablation of Si(111). // *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 82, No. 23, 2003, 4190–4192. (doi:10.1063/1.1580647)
16. Cheng H.-P., Gillaspay J.D. Nanoscale modification of silicon surfaces via Coulomb explosion. // *Phys. Rev. B*, Vol. 55, No. 4, 1997, 2628–2636. (doi:10.1103/physrevb.55.2628)
17. Dachraoui Hatem, Husinsky Wolfgang. Fast electronic and thermal processes in femtosecond laser ablation of Au. // *Appl. Physics Lett.*, Vol. 89, 2006, 104102.
18. Dachraoui H., Husinsky W., Betz G. Ultra-short laser ablation of metals and semiconductors: evidence of ultra-fast Coulomb explosion. // *Appl. Phys. A*, Vol. 83, 2006, 333–336. (doi: 10.1007/s00339-006-3499-y)
19. Vella A., Deconihout B., Marrucci L., Santamato E., Femtosecond Field Ion Emission by Surface Optical Rectification. // *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 99, No. 4, 2007, 046103-4. (doi:10.1103/physrevlett.99.046103)
20. Shuchang Li, Suyu Li, Fangjian Zhang, Dan Tian, He Li, Dunli Liu, Yuanfei Jiang, Anmin Chen, Mingxing Jin. Possible evidence of Coulomb explosion in the femtosecond laser ablation of metal at low laser fluence. // *App. Surf. Sci.*, Vol. 355, 2015, 681-685. (doi: 10.1016/j.apsusc.2015.07.136)
21. Cheng Hai-Ping, Gillaspay J.D. Nanoscale modification of silicon surfaces via Coulomb explosion. // *Phys. Rev. B*, Vol. 55, No. 4, 1997, 2628 - 2636. (doi:10.1103/PhysRevB.55.2628)
22. Stoian R., Rosenfeld A., Hertel I.V., Bulgakova N.M., Campbell E.E. Comment on “Coulomb explosion in femtosecond laser ablation of Si(111)” [*Appl. Phys. Lett.*, 82, 4190 (2003)]. // *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 85, No. 4, 2004, 694–695. (doi:10.1063/1.1771817)
23. Bulgakova N.M., Stoian R., Rosenfeld A., Marine W., Campbell E.E. A general continuum approach to describe fast electronic transport in pulsed laser irradiated materials: the problem of Coulomb explosion. // *High-Power Laser Ablation V, Proceedings of SPIE*, Vol. 5448, 2004, 121-135. (doi:10.1117/12.548823)
24. Tao Sha, Wu Benxin. The effect of emitted electrons during femtosecond laser–metal interactions: A physical explanation for coulomb explosion in metals. // *App. Surf. Sci.*, Vol. 298, 2014, 90–94.

25. Shugaev M.V., Wu C., Armbruster O., Naghilou A., Brouwer N., Ivanov D.S., Zhigilei L.V. Fundamentals of ultrafast laser–material interaction. // *MRS Bulletin*, Vol. 41, No. 12, 2016, 960–968.
26. Mazhukin V.I., Demin M. M., Shapranov A.V., Mazhukin A.V. Role of electron pressure in the problem of femtosecond laser action on metals. // *Appl. Surf. Sci.*, Vol. 530, 2020, 147227. (doi: 10.1016/j.apsusc.2020.147227)
27. Mazhukin V.I., Shapranov A.V., Mazhukin A.V. The structure of the electric double layer at the metal-vacuum interface. // *Math. Montis.*, Vol. 44, 2019, 110-121. (doi: 10.20948/mathmon-2019-44-9)
28. Mazhukin V.I., Shapranov A.V., Mazhukin A.V., Koroleva O.N. Mathematical formulation of a kinetic version of Stefan problem for heterogeneous melting/crystallization of metals. // *Math. Montis.*, Vol. 36, 2016, 58-77.
29. Jia Xiao, Zhao Xin. Numerical study of material decomposition in ultrafast laser interaction with metals. // *App. Surf. Sci.*, Vol. 463, 2019, 781–790.
30. Xiang M., Jiang S., Cui J., Xu Y., Chen J. Coupling of dynamic ductile damage and melting in shock-induced micro-spalling: Modeling and applications. // *Int. J. Plast.*, Vol. 136, 2021, 102849. (doi:10.1016/j.ijplas.2020.102849)
31. Mazhukin V.I., Shapranov A.V., Mazhukin A.V., Breslavsky P.V. Atomistic modeling of the dynamics of the solid/liquid interface of Si melting and crystallization taking into account deeply superheated/supercooled states. // *Math. Montis.*, Vol. 47, 2020, 87-99. (doi: 10.20948/mathmontis-2020-47-8)
32. Mazhukin V. I., Koroleva O. N., Shapranov A. V., Demin M. M., Aleksashkina A. A. Determination of thermal properties of gold in the region of melting–crystallization phase transition: molecular dynamics approach. // *Math. Models Comput. Simul.*, Vol. 14, No. 4, 2022, 662–676. (doi: 10.1134/S2070048222040068)
33. Mazhukin V. I., Koroleva O. N., Demin M. M., Shapranov A. V., Aleksashkina A. A. Atomistic Simulation of the Coexistence of Liquid–Vapor Phase States for Gold and Determination of Critical Parameters. // *Math. Models Comput. Simul.*, Vol. 14, No. 5, 2022, 819–828. (doi: 10.1134/S207004822205009X)
34. Mazhukin V.I., Samokhin A.A., Shapranov A.V., Demin M.M. Modeling of thin film explosive boiling - surface evaporation and electron thermal conductivity effect. // *Mater. Res. Express*, Vol. 2-1, 2015, 016402 (1-9). (doi:10.1088/2053-1591/2/1/016402)
35. Mazhukin V.I., Samokhin A.A., Demin M.M., Shapranov A.V. Explosive boiling of metals upon irradiation by a nanosecond laser pulse. // *Quantum Electronics*, Vol. 44, No. 4, 2014, 283–285.
36. Shih C.Y., Streubel R., Heberle J., Letzel A., Shugaev M.V., Wu C., Zhigilei L.V. Two mechanisms of nanoparticle generation in picosecond laser ablation in liquids: the origin of the bimodal size distribution. // *Nanoscale*, Vol. 10, No. 15, 2018, 6900–6910. (doi:10.1039/c7nr08614h)
37. Pariz I., Goel S., Nguyen D. T., Buckeridge J., Zhou X. A critical review of the developments in molecular dynamics simulations to study femtosecond laser ablation. // *Materials Today: Proceedings*, Vol. 64, No. 3, 2022, 1339-1348. (doi: 10.1016/j.matpr.2022.03.723)
38. Demin M.M., Koroleva O.N., Aleksashkina A.A., Mazhukin V.I. Molecular-dynamic modeling of thermophysical properties of phonon subsystem of copper in wide temperature range. // *Math. Montis.*, Vol. 47, 2020, 137 - 151. (doi: 10.20948/mathmontis-2020-47-12).
39. Li X., Guan Y. Theoretical fundamentals of short pulse laser–metal interaction: A review. // *Nanotechnol. Precis. Eng.*, Vol. 3, 2020, 105-125. (doi:10.1016/j.npe.2020.08.001)
40. Meng Yu., Ji P., Jiang L., Lin G., Guo J. Spatiotemporal insights into the femtosecond laser homogeneous and heterogeneous melting aluminum by atomistic-continuum modeling. // *Appl. Phys. A*, Vol. 128, 2022, 520. (doi: 10.1007/s00339-022-05610-0)

41. Yao J., Qi D., Liang H., He Y., Yao Y., Jia T., Yang Y., Sun Z., Zhang S. Exploring Femtosecond Laser Ablation by Snapshot Ultrafast Imaging and Molecular Dynamics Simulation. // Vol. 2022, 2022, Article ID 9754131, 1-11. (doi: 10.34133/2022/9754131)
42. Aysolmaz Banu, Reijers Hajo A. Animation as a dynamic visualization technique for improving process model comprehension. // Information & Management, Vol. 58, No. 5, 2021, 103478. (doi: 10.1016/j.im.2021.103478)
43. Ahmed A., Fu X., Hong SH., Nguyen Q.H., Xu K. Visual Analysis of History of World Cup: A Dynamic Network with Dynamic Hierarchy and Geographic Clustering. // Visual Information Communication. Springer, Boston, MA, 2009. (doi.org/10.1007/978-1-4419-0312-9\_2)
44. Mazhukin V.I., Samokhin A.A., Shapranov A.V., Demin M.M., Pivovarov P.A. Modeling and visualization of nanosecond laser vaporization of metals in near critical region. // Scientific Visualization, Vol. 8, No 1, 2016, 1-22.
45. Breslavskiy P.V., Koroleva O.N., Mazhukin A.V. The evolution of the plasma formation in the gas medium, modeling with visualization of the grid nodes dynamics and the interaction of shock and thermal waves. // Scientific Visualization, Vol.7, No. 5, 2015, 1-11.
46. Bete G. and Sommerfeld A. Electronic Theory of Metals, Springer, Berlin, 1933.
47. Ashcroft N.W. and Mermin N.D. Solid State Physics. W. B. Saunders Co., 1976.
48. Mishin Y., Mehl M.J., Papaconstantopoulos D.A., Voter A.F., Kress J.D. Structural stability and lattice defects in copper: Ab initio, tight-binding, and embedded-atom calculations // Phys. Rev. B, Vol. 63, 2001, 224106.
49. Lin Z., Leveugle E., Bringa E.M., Zhigilei L.V., Molecular Dynamics Simulation of Laser Melting of Nanocrystalline Au. // The Journal of Physical Chemistry C, Vol. 114, No. 12, 2009, 5686–5699. (doi:10.1021/jp909328q)
50. Povarnitsyn M. E., Itina T. E., Sentis M., Khishchenko K. V., and Levashov P. R. Material decomposition mechanisms in femtosecond laser interactions with metals. // Phys. Rev. B, Vol. 75, 2007, 235414.
51. Mazhukin V.I., Demin M.M., Shapranov A.V. High-speed laser ablation of metal with pico- and subpicosecond pulses. // Appl. Surf. Sci., Vol. 302, 2014, 6–10.
52. Shugaev M.V., Zhigilei L.V. Thermodynamic analysis and atomistic modeling of subsurface cavitation in photomechanical spallation. // Comput. Mater. Sci., Vol. 166, 2019, 311-317. (doi:10.1016/j.commatsci.2019.05.017).