

# МОДЕЛИРОВАНИЕ КЛАСТЕРНОЙ НАНОПЛАЗМЫ МЕТОДОМ МОЛЕКУЛЯРНОЙ ДИНАМИКИ

И.В. Морозов

*Объединенный институт высоких температур РАН*

morozov@ihed.ras.ru

Поступила 30.08.11

Настоящей обзор посвящен теории и методам компьютерного моделирования наноразмерных систем с кулоновским взаимодействием на примере исследования наноплазмы, образующейся при ионизации атомарных кластеров коротким лазерным импульсом. Особенностью данной области является то, что она находится на стыке физики неидеальной плазмы, физики наноразмерных систем и вычислительной физики. Неидеальность плазмы и существенное влияние размерных эффектов приводят к необходимости применения методов компьютерного моделирования, среди которых наиболее подробно рассматривается метод молекулярной динамики (МД). Отдельное внимание уделяется построению реалистичных моделей взаимодействия электронов и ионов в неидеальной плазме с учетом квантово-механических эффектов. В качестве способов ускорения программ МД моделирования рассмотрено как распараллеливание на традиционных суперкомпьютерных кластерах, так и адаптация программ моделирования для гибридных вычислительных систем, включающих графические ускорители. Показано, что метод МД является одним из наиболее эффективных для реализации на графических ускорителях. Для иллюстрации возможностей указанных методов приведены последние результаты по моделированию динамики электронов и ионов в наноплазме, полученной при ионизации кластеров натрия.

УДК 533.9.01; 004.94; 004.272.2

## 1. Введение

Кластером принято называть компактную группу связанных друг с другом атомов, молекул или ионов, которая обладает свойствами, отличными от свойств составляющих ее элементов. Газ, состоящий из отдельных кластеров, иногда рассматривается как новое состояние вещества, поскольку свойства такой кластеризованной материи существенно отличаются как от свойств газа отдельных атомов или молекул, так и от свойств обычного твердого тела, состоящих из тех же химических элементов [1]. В особенности это применимо к кластерам нанометрового размера (нанокластерам) в которых размерные эффекты наиболее выражены [2].

Облучение нанокластеров мощным коротким лазерным импульсом приводит к быстрой ионизации вещества, образованию так называемой «кластерной плазмы» и последующему взрывному разлету ионизованных ионов в результате электростатического отталкивания. Это явление получило название «кулоновского взрыва» [3, 4, 5]. Взаимодействие лазерных импульсов с кластерами имеет как практические приложения, например, генерация коротких рентгеновских импульсов или потоков заряженных частиц, так и предоставляет уникальную возможность для изучения быстропротекающих процессов в плотной плазме.

При определенных условиях кластерная плазма может оказаться неидеальной. Изучение неидеальной плазмы занимает особую роль среди фундаментальных задач физики плазмы. Такая плазма отличается от идеальной (газовой) тем, что средняя энергия взаимодействия частиц сопоставима с их кинетической энергией. Степень неидеальности обычно рассматривается как отношение этих энергий, что для частиц с плотностью  $n$ , температурой  $T$  и зарядом  $Z$  выражается формулой  $\Gamma = (4\pi n)^{1/3} Z^2 e^2 / k_B T$ . Особенности неидеальной плазмы проявляются в сильной роли столкновительных процессов (в идеальной плазме ими зачастую пренебрегают) и изменении характера экранирования зарядов (формула Дебая оказывается неприменима).

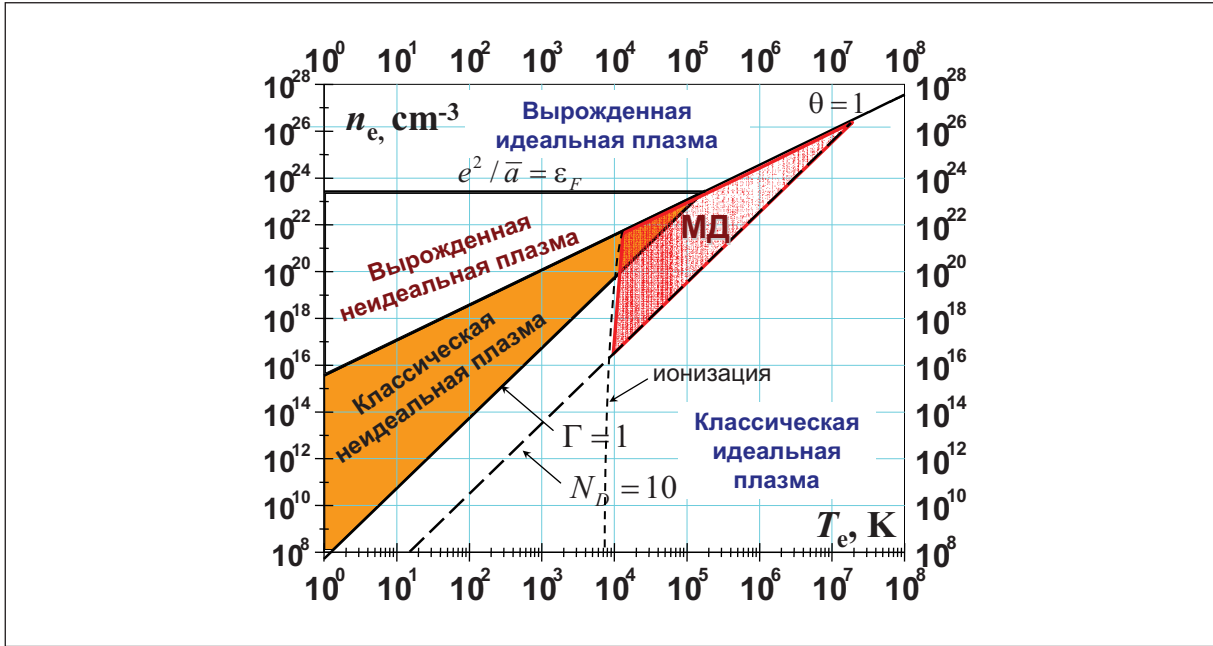
На рис. 1 показана диаграмма состояний электронного газа, на которой выделена область неидеальной плазмы [6]. Критерием неидеальности обычно считают линию  $\Gamma = 1$ , хотя расчеты показывают, что эффекты неидеальности проявляются при гораздо меньших плотностях. Так кривая  $N_D = 10$  соответствует параметрам, при которых число частиц  $N_D = 4\pi r_D^3 n_e / 3$  в сфере дебаевского экранирования  $r_D = \sqrt{k_B T_e / (4\pi n_e e^2)}$  равно 10. При этих параметрах эффекты неидеальности уже довольно существенны.

В первую очередь нас будет интересовать классическая неидеальная плазма, для которой параметр вырождения  $\theta = k_B T_e / \varepsilon_F$  меньше единицы. Кривая ионизации, показанная на рис. 1, является во многом условной, т.к. зависит от конкретного типа ионов. Однако она дает представление о том, как выглядит область полностью ионизованной неидеальной плазмы (красный треугольник). Следует отметить, что плазма с высокой степенью ионизации может существовать и при более низких температурах, если речь идет о неравновесном состоянии. Примером является ультрахолодная плазма (ридберговское вещество), существующая при температурах порядка единиц кельвинов [7].

В то время как для идеальной плазмы, широко распространенной в атмосфере, космосе и в повседневных электронных устройствах, существуют достаточно точные теоретические модели, описывающие стационарные и релаксационные процессы [8], неидеальная плазма исследована сравнительно мало. Однако такие исследования представляют большой интерес, т.к. неидеальная электрон-ионная плазма образуется в условиях управляемого термоядерного синтеза [4], при электровзрыве проводников [9], в прикатодной области высоковольтных разрядов [10], на стенках высокочастотных волноводов и резонаторов под воздействием сильных электромагнитных полей [11], в твердых телах под действием мощных пучков частиц [12, 13] или лазерных импульсов [14] и др.

Одним из способов получения и исследования неидеальной плазмы является воздействие коротких лазерных импульсов на кластерные мишени [15, 16, 17]. Подходам к моделированию этого процесса в основном и посвящен данный обзор.

В главе 2 кратко описывается метод молекулярной динамики (МД) с акцентом на специфические проблемы, возникающие при моделировании систем заряженных частиц. Глава 3 посвящена методам адаптации программ МД моделирования для современных параллельных вычислительных систем. Отдельное внимание уделяется использованию гибридных вычислительных систем на основе графических ускорителей. В



**Рис. 1.** Диаграмма состояний электронного газа при различных температурах и концентрациях. На диаграмме показаны: граница вырождения:  $\theta = 1$ , границы неидеальности  $\Gamma = 1$  и  $e^2 / \bar{a} = \varepsilon_F$ , порог ионизации (пунктир) для равновесной плазмы.

главах 4 и 5 обсуждаются результаты моделирования процесса образования кластерной наноплазмы (глава 4) и динамики электронов в наноплазме (глава 5).

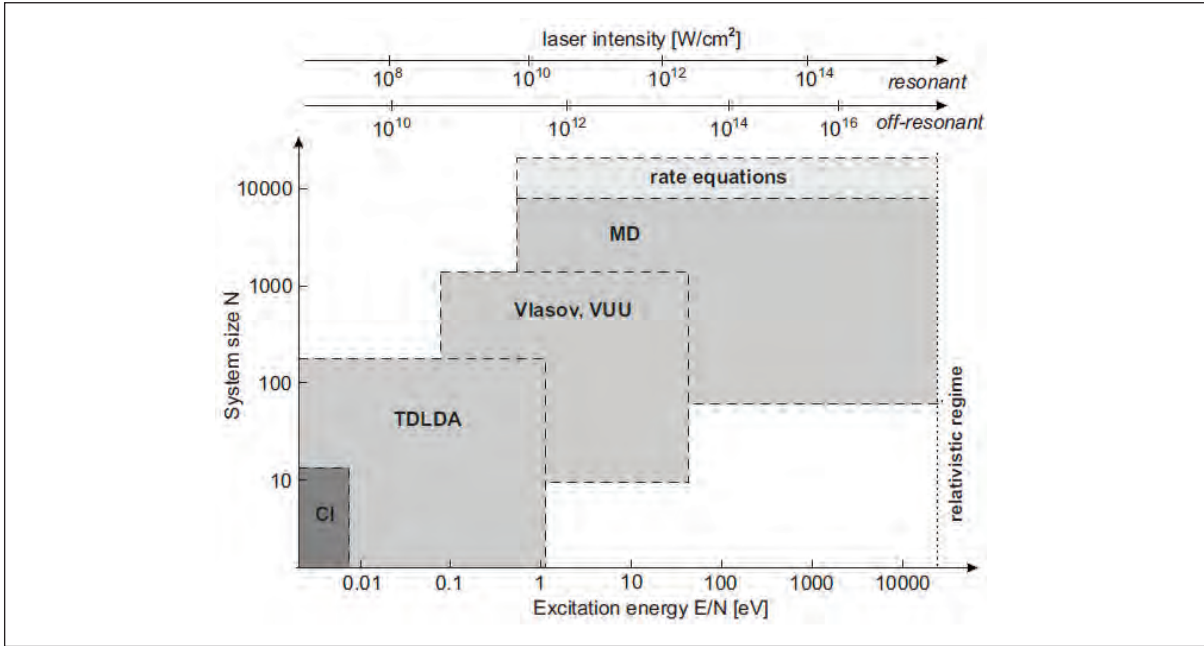
## 2. Молекулярно-динамическое моделирование систем с кулоновским взаимодействием

Существующие представления о неидеальной плазме во многом опираются на результаты компьютерного моделирования, т.к. точные аналитические выражения удается получить лишь для отдельных частных случаев. Среди методов моделирования кластерной неидеальной плазмы (рис. 2) особое место занимает метод молекулярной динамики (МД). В отличие от квантово-механических (CI, TDLDA) или квазиклассических (VUU) подходов МД позволяет моделировать достаточно большие системы (десятки тысяч атомов) и допускают расчет динамики свободных электронов. Методы более высокого уровня, такие как Particle-in-cell (PIC) или численное решение уравнений Власова, позволяют перейти к большим пространственным масштабам, однако лишь приближенно описывают столкновения частиц, существенные при переходе к неидеальной плазме.

Метод МД основан на численном решении классических уравнений движения  $N$  частиц в некотором выделенном объеме среды. Рассматривая систему из частиц с координатами  $\vec{R} = \{\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_N\}$  и скоростями  $\vec{V} = \{\vec{v}_1, \dots, \vec{v}_N\}$ , уравнения движения имеют вид

$$\begin{aligned} m_i \frac{d\vec{v}_i(t)}{dt} &= \vec{F}_i(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_N), \\ \frac{d\vec{r}_i(t)}{dt} &= \vec{v}_i(t), \\ \vec{r}_i(t=0) &= \vec{r}_i^0, \quad \vec{v}_i(t=0) = \vec{v}_i^0 \quad i = 1, \dots, N. \end{aligned} \quad (1)$$

Все частицы, находящиеся в выделенном объеме (МД ячейке), взаимодействуют друг с другом посредством заданного потенциала взаимодействия  $U$ , на основе которого вычисляется сила, действующая на частицу  $i$ :



**Рис. 2.** Область применимости методов компьютерного моделирования кластерной плазмы в зависимости от числа атомов в кластере  $N$  и энергии возбуждения в пересчете на один атом  $E/N$  [2]. Представлены методы: CI – конфигурационных взаимодействий (configuration interaction), TDLDA – приближение локальной плотности с зависимостью от времени (time dependent local density approximation), VUU – схема Власова-Улинга-Уленбека (Vlasov-Uehling-Uhlenbeck), MD – молекулярная динамика, rate equations – скоростные уравнения.

$$\vec{F}_i = -\frac{\partial U(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_N)}{\partial \vec{r}_i}, \quad (2)$$

$$U(\vec{R}) = \sum_k U^{ext}(t, \vec{v}_k, \vec{r}_k) + \sum_{i<j} U(\vec{r}_i, \vec{r}_j) + \sum_{i<j<k} \Phi(\vec{r}_i, \vec{r}_j, \vec{r}_k) + \dots \quad (3)$$

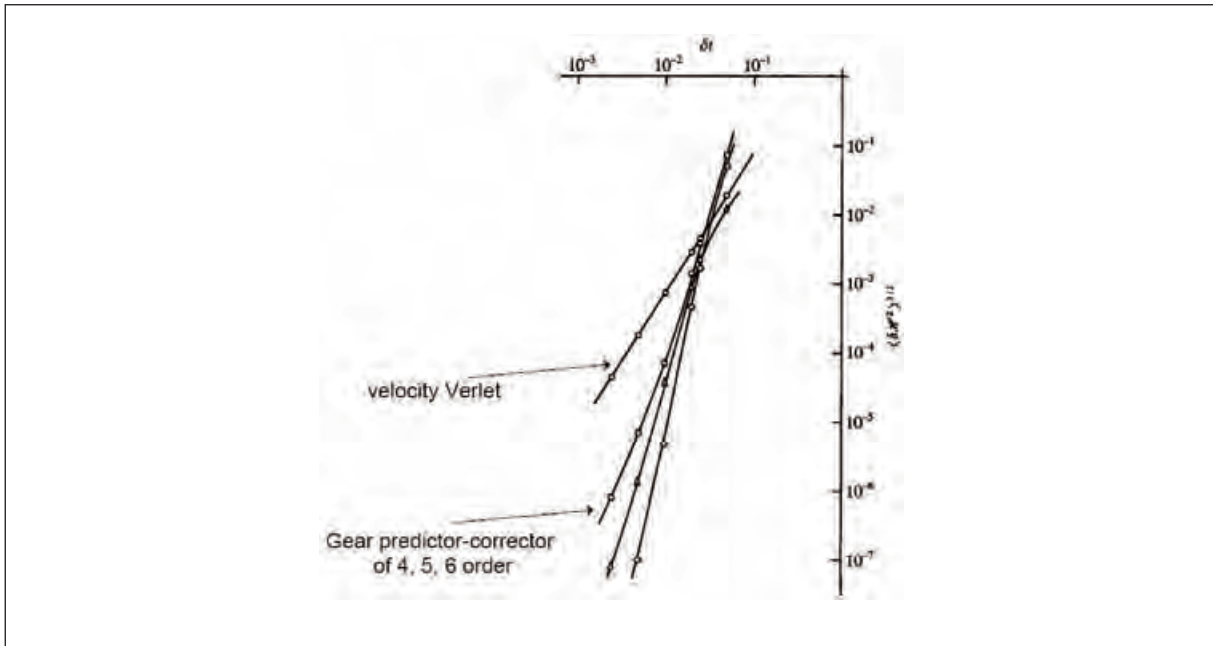
Если в (3) кроме внешней силы присутствует только один следующий член разложения, то потенциал называется парным. При этом

$$U(\vec{r}_i, \vec{r}_j) = U(|\vec{r}_i - \vec{r}_j|) = U^{pair}(r_{ij}), \quad (4)$$

$$\vec{F}_i^{pair} = -\sum_j \frac{\vec{r}_{ij}}{r_{ij}} \frac{\partial U^{pair}(r_{ij})}{\partial r_{ij}} = \sum_j \vec{r}_{ij} f^{pair}(r_{ij}). \quad (5)$$

Для интегрирования уравнений движения (1) применяются, как правило, явные разностные схемы четного порядка точности. Более подробно о методах решения уравнений движения см. [18, 19, 20]. Одним из основных критериев точности интегрирования уравнений движения является сохранение полной энергии при отсутствии внешней силы. Этот фактор напрямую зависит от порядка разностной схемы и величины шага. Следует отметить, что не всегда схемы более высокого порядка имеют преимущества над схемами более низкого. На рис. 3 приведена зависимость относительных флуктуаций полной энергии  $\delta H$  от величины шага  $\delta t$  [18]. Видно, что при сравнительно крупном шаге по времени схема Верле второго порядка является более точной.

При моделировании взаимодействия нейтральных атомов или молекул потенциал взаимодействия, как правило, быстро убывает с расстоянием, поэтому для него вводят эффективный радиус отсечки  $r_c$ , полагая  $U(r \geq r_c) = 0$ . Это позволяет использовать эффективные методы оптимизации расчета сил, действующих на частицы, такие как списки ближайших соседей и связанные списки Верле, а также упрощает распараллеливание алгоритма (см. [18, 21]). В случае дальнедействующего типа взаимодействия частиц, како-



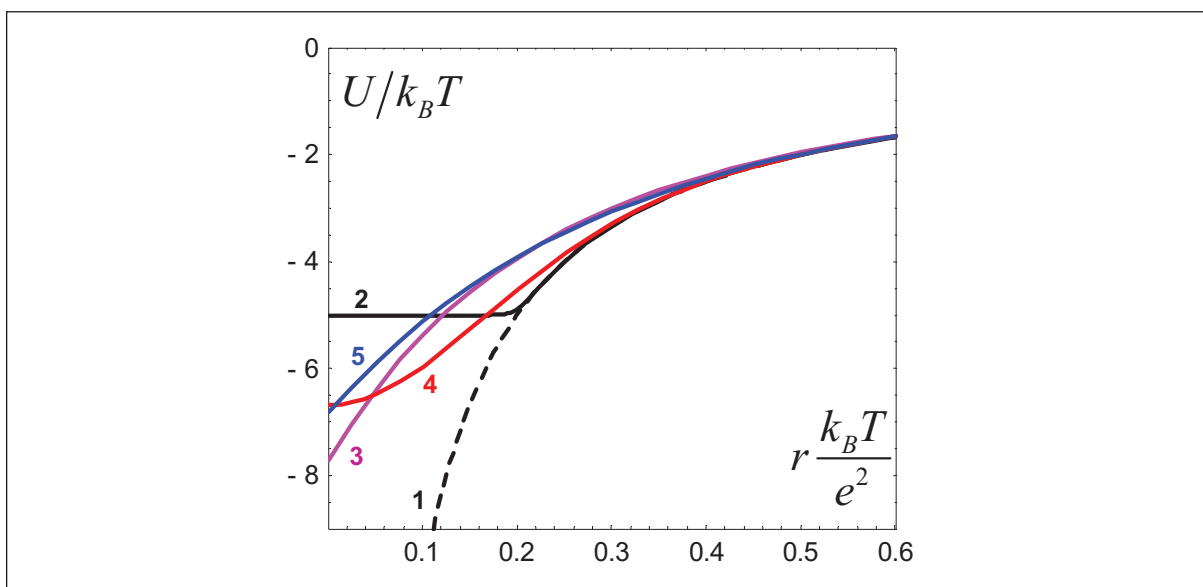
**Рис. 3.** Сохранение полной энергии в зависимости от шага интегрирования для различных разностных схем [18].

вым является потенциал Кулона для заряженных частиц в плазме, такая оптимизация невозможна. Существуют, однако, другие менее эффективные методы, такие как мульти-полное разложение и метод частиц в ячейке схема (PPPM – Particle-Particle-Particle-Mesh). Таким образом, моделирование систем с дальнодействующим потенциалом представляет собой более трудную задачу с вычислительной точки зрения (см. [21]).

Выбор потенциала электрон-ионного взаимодействия на коротких расстояниях является наиболее важным этапом построения численной модели и, как правило, вызывает немало дискуссий. Использование чистого кулоновского потенциала приводит к проблемам с устойчивостью решения, но, даже если эти трудности будут преодолены, результат моделирования будет во многом определяться количеством электронов и ионов, находящихся в глубоко лежащих связанных состояниях. Такие состояния заведомо неверно описываются классической динамикой и имеют лишь внешнее сходство с реальными атомами.

Несмотря на то, что выбором потенциала взаимодействия можно добиться значений энергии классических связанных состояний, близких, например, к уровням атома водорода, попытка рассчитать непарное взаимодействие частиц (например, взаимодействие такого “атома” с другими частицами) приведет к грубой ошибке. Поэтому в классической МД имеет смысл ограничиться рассмотрением полностью ионизованной плазмы, а выбранный потенциал взаимодействия должен в первую очередь исключать возникновение нефизических связанных состояний.

На рис. 4 представлены различные варианты потенциалов электрон-ионного взаимодействия, используемых при моделировании неидеальной плазмы. Их вывод основан, как правило, на сравнении статистической суммы модельной системы, рассчитанной двумя способами: для классической системы с псевдопотенциалом и для аналогичной квантовой системы с кулоновским потенциалом. Первым недостатком данного подхода является предположение о термодинамическом равновесии, в то время как моделируемая МД система может быть и неравновесной. Например, существенно неравновесным является состояние лазерной плазмы, сразу после ионизации. Во-вторых, взаимодействие двух частиц со скоростями, значительно отличающимися от тепловой скорости, в



**Рис. 4.** Потенциалы электрон-ионного взаимодействия с ограничением на близких расстояниях (в безразмерных единицах): 1 – кулоновский потенциал, 2 – потенциала с отсечкой [22], 3 – потенциал Дойча [23], 4 – потенциал с функцией ошибок [24], 5 – улучшенный потенциал Кельбга [25].

реальной системе может быть принципиально другим по сравнению с данной моделью. В-третьих, не учитываются эффекты вырождения электронного газа при больших плотностях.

Одна из возможностей улучшить метод классической МД заключается в замене точечных классических электронов волновыми пакетами. В этом случае отпадает проблема выбора псевдопотенциала электрон-ионного взаимодействия, улучшается точность моделирования элементарных актов соударений частиц, а при использовании антисимметризованной полной волновой функции добавляется учет обменного взаимодействия. Данный метод получил название молекулярной динамики с волновыми пакетами (МДВП, Wave Packet MD) [26]. В настоящее время для него разработана некоторая теоретическая база и проведены отдельные расчеты [27, 28]. Основные недостатки имеющейся реализации: низкое быстродействие при учете антисимметризации (невозможно реализовать динамику необходимого числа частиц) и расплывание свободных волновых пакетов со временем.

Подводя итог, следует сказать, что, несмотря на многочисленные работы, вопрос выбора потенциала взаимодействия электронов и ионов на близких расстояниях остается открытым.

### 3. Распараллеливания программ МД моделирования и использование графических ускорителей

Метод МД предъявляет высокие требования к производительности вычислительных систем, поэтому эффективное решение задач МД моделирования зачастую возможно лишь на современных суперкомпьютерах с параллельной архитектурой. Здесь на передний план выходит такая характеристика, как эффективность распараллеливания. В наибольшей степени на скорость работы МД программы вообще и на эффективность распараллеливания влияют число частиц в системе (размер моделируемой области), характер взаимодействия частиц и объем статистического усреднения.

Следует отметить, что статистическое усреднение является неотъемлемой частью моделирования неравновесных сред. Согласно подходу, изложенному в [29], расчет



любого релаксационного процесса заключается в генерации набора МД траекторий из начальных условий, которые идентичны с точки зрения макроскопических параметров, однако представляют собой различные статистически независимые микросостояния. Результаты анализа каждой из данных траекторий усредняются для получения окончательного результата. Это, во-первых, позволяет уменьшить время выполнения программы за счет использования сравнительно малого числа частиц в МД ячейке при сохранении той же точности результатов. Во-вторых, дает возможность получить статистически достоверный результат для случайных во времени событий, таких как фазовые переходы из метастабильных состояний.

Статистическое усреднение дает возможность простого распараллеливания программ, поскольку расчет траекторий для различных начальных микросостояний может производиться независимо. Требования к коммуникационной сети для соответствующей параллельной вычислительной системы являются, очевидно, минимальными, поэтому данная задача хорошо подходит не только для традиционных кластеров, но и для кластеров на гибридной архитектуре, а также для Грид-систем [30]. Кроме того, статистическое усреднение позволяет уменьшить требования к надежности системы, так как сбой оборудования на одном из вычислительных узлов, лишь несильно уменьшит точность результата, но не приведет к полной остановке программы.

На более низком уровне возможно распараллеливание расчета отдельной траектории методами декомпозиции по пространству (*domain decomposition*) или декомпозиции по частицам (*force decomposition*). Здесь эффективность напрямую зависит от скорости обмена между процессами, поэтому этот тип распараллеливания должен применяться на кластерах с высокоскоростной внутренней сетью. Альтернативой здесь является применение графических ускорителей, о которых далее пойдет речь.

Среди современных высокопроизводительных систем в последнее время все чаще используются гибридные системы, включающие графические ускорители (ГПУ – графическое процессорное устройство). Этому во многом способствовало появление сред программирования, таких как CUDA и OpenCL, предназначенных для создания и выполнения на ГПУ программ, не связанных с обработкой изображений. Гибридные системы на основе ГПУ зачастую показывают быстроедействие, в десятки или сотни раз превышающее быстроедействие систем на традиционных процессорах (ЦПУ – центральной процессорное устройство). Следует, однако, отметить, что создание программ, эффективно использующих вычислительные возможности ГПУ, это достаточно трудоемкий процесс, требующий учета специфики аппаратной архитектуры, без которого производительность на конкретной задаче может оказаться существенно меньше теоретического предела для данного устройства.

Особенностью графических ускорителей является большое количество простых вычислительных ядер (на данный момент максимальное количество ядер равно 512). В отличие от ядер центрального процессора, графические ядра способны совершать только простые математические операции и не способны к поддержке операционной системы, таким образом, ГПУ фактически является математическим сопроцессором к универсальному ЦПУ.

Ещё одной важной особенностью ГПУ является наличие нескольких типов памяти, правильное использование которых позволяет получить значительное ускорение относительно обычной оперативной памяти ЦПУ. Количество параллельно исполняемых потоков команд на ГПУ не зависит напрямую от количества ядер. Опыт проведения МД расчетов на ГПУ показывает, что высокая эффективность достигается при  $10^5$  и более потоках на ГПУ.

Одним из условий эффективного использования ГПУ является хорошая распараллеливаемость программы в рамках модели общей памяти. Метод МД отвечает этому

требованию, и за последние несколько лет появились пакеты программ, позволяющие проводить МД моделирование на ГПУ, такие как LAMMPS [31], NAMD/VMD [32], HOOMD [33] и др. Эта область активно развивается, однако в настоящее время набор потенциалов взаимодействия частиц, реализованных в указанных пакетах на ГПУ, очень невелик и ограничивается, как правило, простейшими потенциалами типа Леннарда-Джонса или гармонической связи между атомами в молекуле. В то же время для моделирования реальных конденсированных веществ или неидеальной плазмы требуется гораздо более широкий спектр потенциалов взаимодействия. В связи с особенностями программирования для ГПУ адаптация конкретного потенциала взаимодействия представляет собой отдельную задачу.

Для оценки производительности ГПУ рассмотрим сначала простейший короткодействующий потенциал взаимодействия Леннарда-Джонса “6-12”:

$$U(r) = 4\varepsilon \left[ \left( \frac{\sigma}{r} \right)^{12} - \left( \frac{\sigma}{r} \right)^6 \right], \quad (6)$$

где  $\varepsilon$  и  $\sigma$  – параметры модели.

В работе [34] в качестве основы для тестирования был выбран свободно распространяемый пакет МД моделирования HOOMD (Highly Optimized Object-oriented Many-particle Dynamics). Этот пакет изначально создавался для использования на гибридных вычислительных системах, включающих видеоускорители Nvidia, и включает ряд оптимизационных решений с учетом архитектуры ГПУ. Для сравнения использовался также свободно распространяемый пакет LAMMPS.

Для оценки производительности ГПУ в [34] было проведено тестовое моделирование равновесной леннарда-джонсоновской (LJ) жидкости при температуре  $T = 1.0$ , плотности  $\rho = 0.19$ , отсечке потенциала  $r_{cut} = 3$  (в единицах LJ). Результаты для гибридной системы, включающей ЦПУ Intel Xeon E5520 и различных ГПУ фирмы Nvidia, показаны на рис. 5. Видно, что при увеличении числа частиц ГПУ становится все более эффективным за счет более полной загрузки параллельных вычислительных блоков.

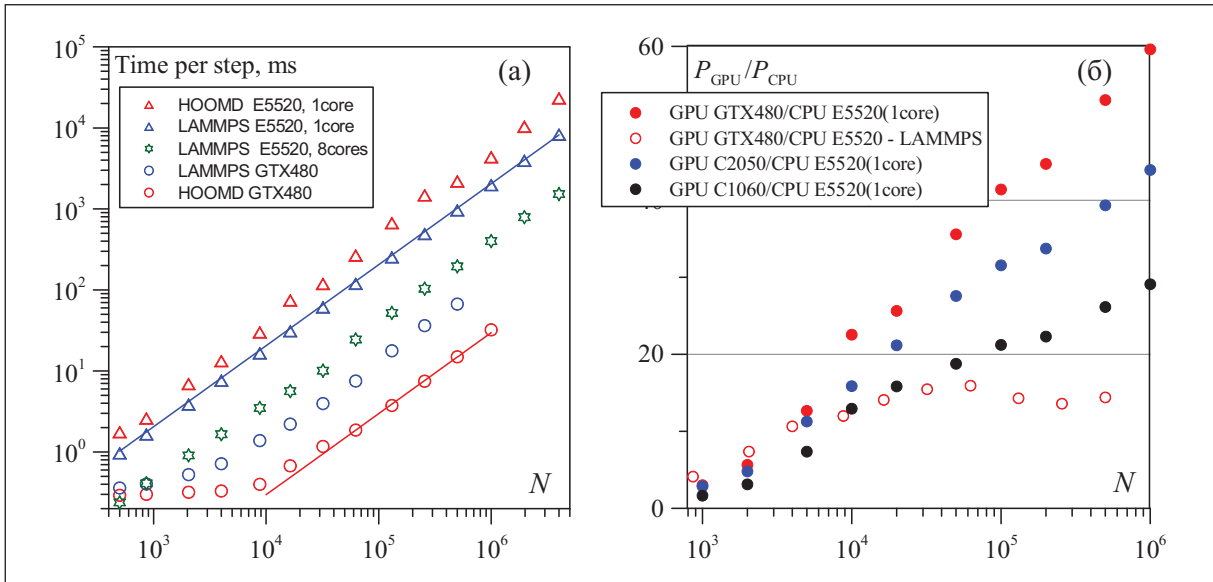
Предварительные результаты для ускорения моделирования кластерной плазмы на ГПУ были получены в [35]. Были проведены тесты для неидеальной плазмы, полученной в результате ионизации кластеров натрия, содержащих 50-20000 атомов. При проведении тестирования использовалось оборудование, сходное с тем, что обсуждалось выше для потенциала Леннарда-Джонса. На рис. 6 показано, что в этом случае отношение производительности ГПУ Nvidia GeForce 480GTX к одному ядру ЦПУ Intel Xeon E5520 достигает 180 раз при максимальном числе частиц.

Объяснение более высокого ускорения для кулоновской системы по сравнению с леннарда-джонсоновской состоит в том, что в случае короткодействующего потенциала Леннарда-Джонса для вычисления сил, действующих на частицы, применялись списки ближайших соседей (списки Верле) [18]. Это стандартный метод оптимизации, обеспечивающий линейную асимптотику времени выполнения программы в зависимости от числа частиц  $T \sim N$ . Однако считывание достаточно громоздких списков соседей из памяти приводит к дополнительным задержкам, которые в случае ГПУ оказываются существенными.

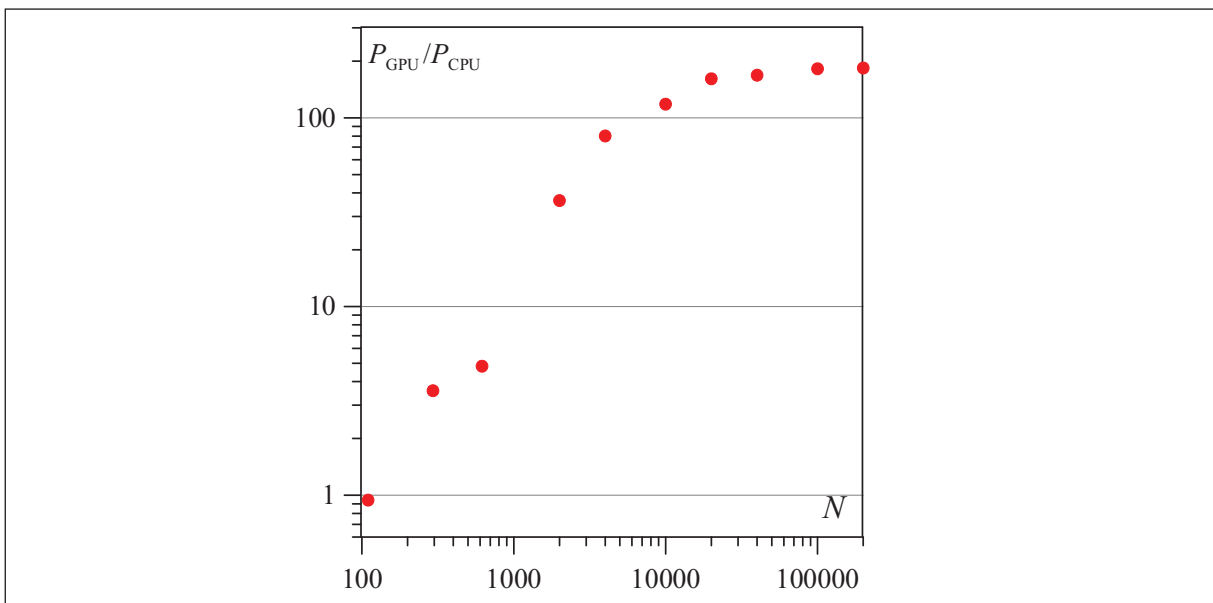
Для дальнедействующего кулоновского потенциала метод списка ближайших соседей не применялся. Поэтому, несмотря на худшую общую асимптотику для времени выполнения программы  $T \sim N^2$ , эффективность ГПУ по сравнению с ЦПУ оказалась выше за счет меньшего числа обращений к памяти. Фактически в памяти ГПУ хранятся только координаты частиц, расположенные в кэшируемом текстурном блоке.

Этот пример показывает, насколько существенно влияние архитектуры процессора безотносительно к пиковой производительности. В целом же стоит отметить, что метод





**Рис. 5.** (а) Время выполнения одного шага МД в зависимости от числа частиц в леннард-джонсоновской жидкости. Обозначения для использованных пакетов моделирования (HOOMD и LAMMPS) и вычислительных устройств (CPU и GPU) указаны на графике. (б) Производительность различных ГПУ Nvidia по отношению к производительности одного ядра CPU Intel Xeon E5520 в зависимости от числа частиц.



**Рис. 6.** Производительность ГПУ Nvidia GeForce GTX 480 по отношению к производительности одного ядра CPU Intel Xeon E5520 в зависимости от числа частиц при моделировании кластерной наноплазмы.

МД оказался одним из наиболее удачных вычислительных алгоритмов для реализации на графических ускорителях.

#### 4. Моделирование ионизации и разлета наноразмерных кластеров

Процессы облучения мощным ультракоротким лазерным импульсом атомных кластеров нанометрового размера, ионизации вещества, образования кластерной плазмы и последующего разлета ионов (кулоновский взрыв) изучались в ряде работ методом классической МД [3, 36, 37, 38]. Рассмотрим основные результаты этих работ.

В случае кластеров следует разделять так называемую внутреннюю и внешнюю ионизацию (рис. 7а). Под воздействием электрического поля лазерного импульса в первую очередь происходит ионизация отдельных атомов, и электроны становятся общими, попадая в зону проводимости для всего кластера. Это процесс называется внутренней ионизацией (inner ionization). Далее часть электронов может вылететь из кластера, формируя общий положительный заряд оставшейся части кластера, что представляет собой внешнюю ионизацию (outer ionization).

На рис. 7б приведена зависимость степеней внутренней и внешней ионизации от времени при облучении кластеров Хе интенсивным лазерным импульсом. Этот результат получен на основе МД моделирования [3].

Следующим после ионизации является кулоновский взрыв, который рассматривался как теоретически [39, 40, 41], так и с помощью МД моделирования [3, 36, 37, 38]. В [38] изучалась плазма, образующаяся после ионизации нанометровых кластеров Na с числом атомов 50-1000 лазерными импульсами с интенсивностью  $10^{12}$ - $10^{13}$  Вт/см<sup>3</sup>, длиной волны  $\lambda = 436.6$  нм и длительностью 50-100 фс. При таких параметрах плазма после ионизации имеет температуру порядка нескольких эВ и является неидеальной с параметром неидеальности для электронов  $\Gamma = (4\pi n_e/3)^{1/3} e^2/(kT_e) \sim 1$  [40]. Электрон-ионное взаимодействие описывалось псевдопотенциалом

$$U_{ei}(r) = -\frac{Ze^2}{r} \operatorname{erf}\left(\frac{r}{\lambda}\right), \quad (7)$$

где значение параметра  $\lambda$  подбиралось таким образом, чтобы исключить низколежащие связанные состояния. Разумным приближением является положить минимум потенциала электрон-ионного взаимодействия равным потенциалу ионизации атома  $V_{ei}(0) = I_p$ . Например, для атомов Na имеем:  $V_{ei}(0) = -5.1$  эВ,  $\lambda = 6.02a_B$ .

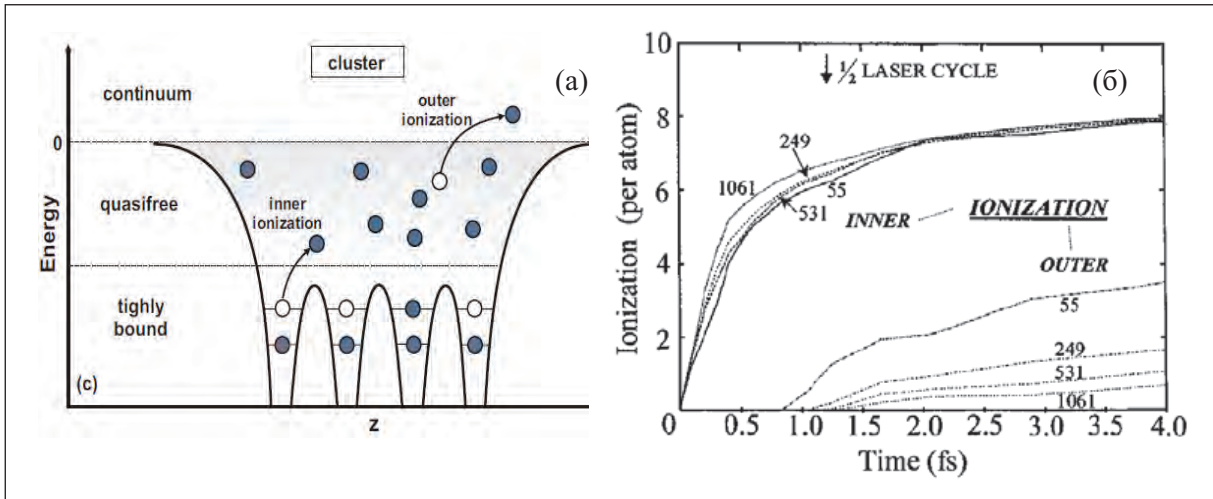
Согласно использованной в [38] схеме МД моделирования изначально каждый электрон неподвижен и находится «на ионе», т.е. их позиции совпадают. Ионизация кластера в МД расчете происходит под действием лазерного импульса с амплитудой  $I = 10^{12}$  Вт/см<sup>3</sup> и гауссовским временным профилем. Поскольку длина волны излучения значительно превышает размер кластера, в численном эксперименте электрическое поле считается пространственно однородным. Магнитное поле не учитывается.

В результате поглощения энергии поля, часть электронов вылетает из кластера, а оставшаяся часть образует наноплазму. Под действием кулоновских сил отталкивания кластер начинает расширяться. На рис. 8 показано расширение ионного остова кластера,

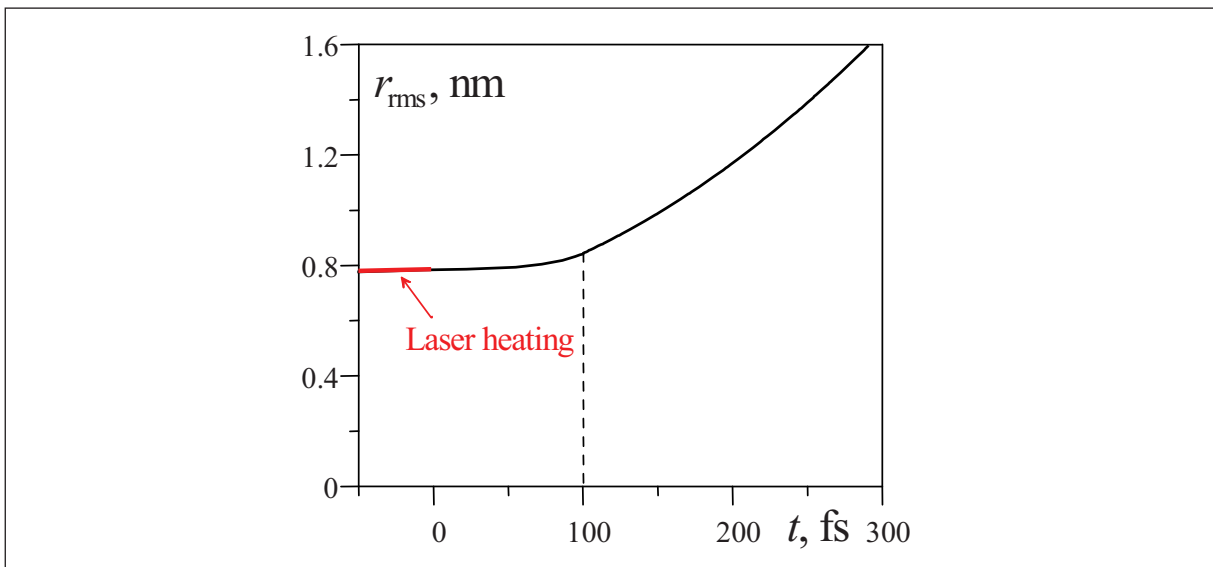
где характерным размером является величина  $r_{rms} = \sqrt{\frac{5}{3} \sum_{i=1}^{N_i} r_i^2}$ . Движение ионов становится существенным на временах более 1 пс, до этого момента им можно пренебречь.

Для иллюстрации того, как меняется состояние электронной подсистемы в процессе разлета кластера, в таб. 1 приведены оценочные параметры плазмы, образованной импульсом с интенсивностью  $I = 5 \cdot 10^{12}$  Вт/см<sup>3</sup>, длиной волны  $\lambda = 436.6$  нм и длительностью 50 фс. Эти данные получены из МД моделирования [38].

Для экспериментального исследования состояния наноплазмы может применяться схема с двумя лазерными импульсами, иногда называемая схемой “pump-probe”. В работах [15, 16, 17] показано, что при облучении кластеров двумя фемтосекундными импульсами, следующими с определенным интервалом (порядка 1 пс), для второго импульса наблюдается резонансное поглощение. Этот эффект может быть использован как для получения новых данных о кластерной наноплазме, так для повышения эффективности генерации рентгеновского излучения или потоков частиц. Однако в указанных работах было дано лишь качественное объяснение этого эффекта.



**Рис. 7.** (а) Схема для иллюстрации явлений внутренней и внешней ионизации [2]. (б) Внутренняя и внешняя ионизация при облучении кластеров Хе лазерным импульсом с интенсивностью  $10^{16}$  Вт/см<sup>2</sup> и частотой  $0.386$  фс<sup>-1</sup> [3]. Числа на графике показывают количество атомов в кластере. Верхний набор кривых – внутренняя ионизация, нижний – внешняя ионизация.



**Рис. 8.** Расширение кластера после ионизации. Выделенный участок в начале кривой соответствует этапу воздействия лазерного импульса. Число ионов Ni = 55.

Более подробное изучение электронных колебаний в кластерной наноплазме проведено в работах [38]. Как было отмечено выше, в кластере можно выделить три типа локализации электронов: электроны, вылетевшие из кластера на расстояние, превышающее несколько  $r_{rms}$ , электроны, локализованные вблизи отдельных ионов (в т.ч. рекомбинировавшие и образовавшие с ионами квазиклассическое связанное состояние), а также электроны, локализованные внутри кластера. Отклик плазмы на повторный лазерный импульс будет определяться последними двумя типами электронов, поэтому для практических приложений важно знать состояние этих компонент в различные моменты времени. При этом не следует делать различий между связанными и локализованными электронами, т.к. рекомбинация и ионизация для квазиклассических связанных состояний в неидеальной плазме носит флуктуационный характер [42].

Таблица 1. Параметры плазмы и основные частоты электронных колебаний для кластеров, содержащих 55 (верхняя часть) и 309 (нижняя часть) ионов натрия,  $t$  – время после окончания лазерного импульса,  $n_e$  – средняя электронная плотность,  $T_e$  – температура электронов,  $\Gamma$  – параметр неидеальности,  $\Theta = kT/F$  – параметр вырождения электронного газа,  $\omega_1$  и  $\omega_2$  – позиции максимумов АФТ (см. рис. 12),  $\omega_{\text{Mie}}$  – частота Ми,  $\omega_{\text{pl}}$  – ленгмюровская плазменная частота.

Na<sub>55</sub>

$t, \text{fs}$	$n_e, 10^{21}\text{cm}^{-3}$	$T_e, \text{eV}$	$\Gamma$	$\Theta$	$\omega_1, \text{fs}^{-1}$	$\omega_{\text{Mie}}, \text{fs}^{-1}$	$\omega_2, \text{fs}^{-1}$	$\omega_{\text{pl}}, \text{fs}^{-1}$
100	17.2	1.23	4.89	0.50	3.80	4.78	6.16	7.40
150	11.2	0.94	5.51	0.52	3.10	3.85	5.27	5.97
200	6.68	0.77	5.72	0.59	2.40	2.94	4.63	4.61
250	4.02	0.72	5.11	0.78	1.90	2.26	—	3.58
300	2.48	0.59	5.34	0.88	1.63	1.76	—	2.81

Na<sub>309</sub>

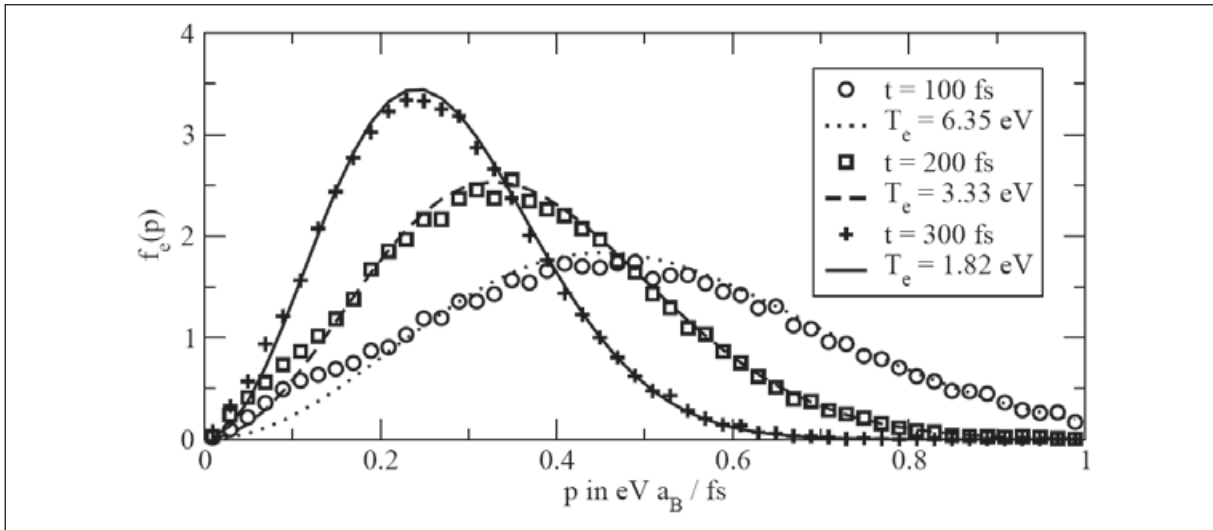
$t, \text{fs}$	$n_e, 10^{21}\text{cm}^{-3}$	$T_e, \text{eV}$	$\Gamma$	$\Theta$	$\omega_1, \text{fs}^{-1}$	$\omega_{\text{Mie}}, \text{fs}^{-1}$	$\omega_2, \text{fs}^{-1}$	$\omega_{\text{pl}}, \text{fs}^{-1}$
100	18.5	2.97	2.07	1.16	4.12	4.83	6.80	7.67
150	12.4	2.41	2.23	1.24	3.10	3.93	5.38	6.28
200	7.46	1.87	2.43	1.34	2.31	3.04	4.13	4.87
250	4.54	1.54	2.49	1.55	1.75	2.36	3.22	3.80
300	2.86	1.26	2.61	1.72	1.35	1.86	—	3.02

## 5. Динамика электронов в ионизованном кластере

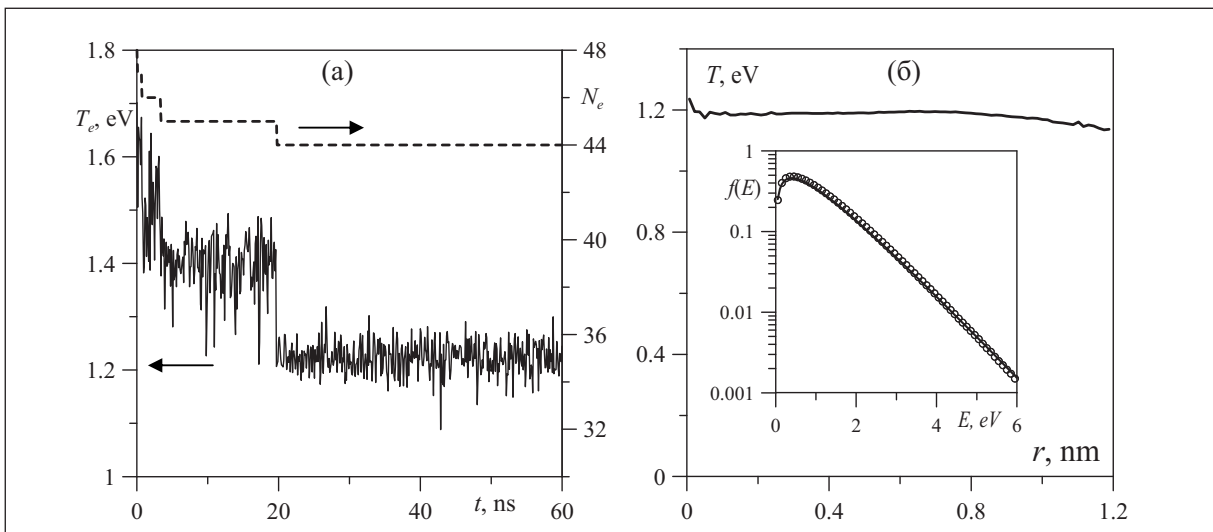
Для исследования состояния наноплазмы внутри кластера в [38] использовалось два подхода. Первый из них основан на МД моделировании неравновесных процессов [6, 29]. В этом случае проводится серия МД расчетов для ансамбля различных начальных состояний, которые отличаются микроскопически (небольшой сдвиг электронов из состояния равновесия), но идентичны макроскопически. Результат моделирования неравновесного процесса, которым является разлет кластера, усредняется по данному ансамблю. Этим методом была рассчитана релаксация функции распределения электронов по скоростям (рис. 9). Как видно из рисунка, при  $t > 100$  фс распределение близко к равновесному.

Второй подход заключался в том, что для исследования состояния электронной подсистемы с усреднением по траектории, ионы останавливались в определенный момент времени  $t$  после ионизации кластера, после чего происходила релаксация электронной подсистемы и измерялись динамические характеристики плазмы. Поскольку целью работы [38] было изучение динамики электронов, а отношение масс ионов и электронов является достаточно большим (41910 для ионов натрия), приближение неподвижных ионов является оправданными. При этом проводится усреднение по различным микроскопическим распределениям ионов в пространстве.

На рис. 10 показана релаксация электронов после остановки ионов в момент времени  $t = 100$  фс. Наиболее длительным процессом релаксации является установление полного заряда кластера  $Z = N_i - N_e$ , где  $N_i$  – число ионов,  $N_e$  – число электронов. После 20 нс система остается равновесной достаточно долгое время, чтобы можно было применить усреднение по времени (рис. 10а).



**Рис. 9.** Функция распределения электронов по скоростям в различные моменты времени. Точки – результаты МД моделирования, кривые – распределения Максвелла для указанных значений температур.  $N_i = 55$ .

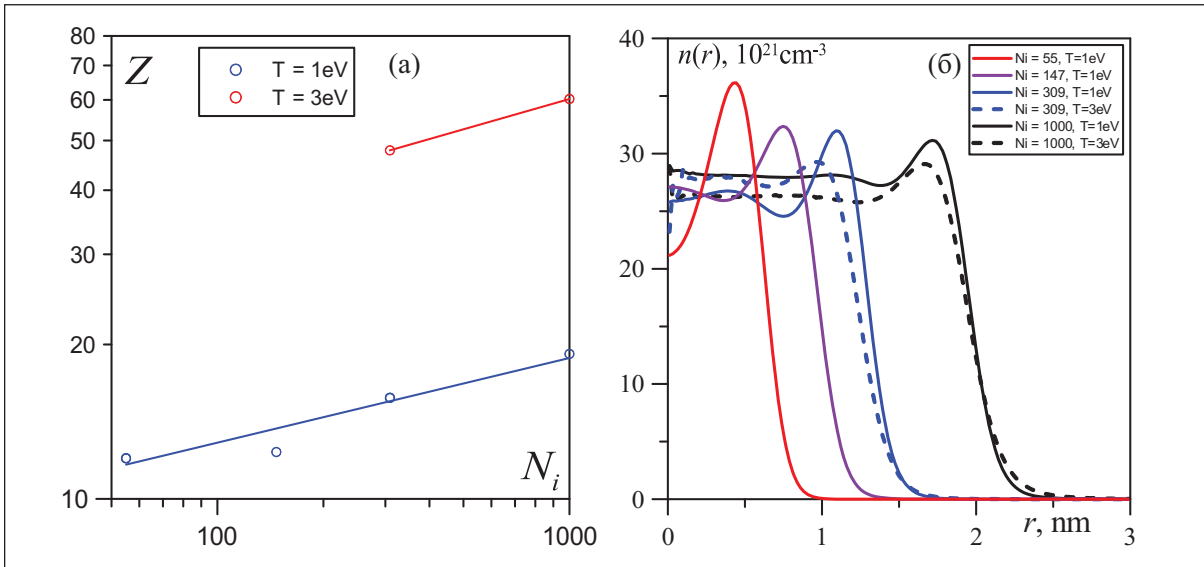


**Рис. 10.** (а) Установление равновесия в электронной подсистеме при неподвижных ионах: сплошная кривая (левая ось) – средняя кинетическая энергия электронов, пунктир (правая ось) – кол-во электронов в кластере. (б) Радиальное распределение температуры электронов. На вставке показано распределение электронов по энергиям: кружки – результаты МД, кривая – распределение Максвелла.  $N_i = 55$ .

Для равновесной наноплазмы в [38] была рассчитана зависимость заряда кластера от его размера и температуры электронов при фиксированной ионной плотности (рис. 11а). Такая зависимость необходима для понимания размерных эффектов. Также были получены равновесные радиальные распределения электронов при различных параметрах плазмы (рис. 11б). Из рисунка видно, что при увеличении размера кластера область, на которой концентрация электронов является постоянной (плато), становится все более значимой.

Перейдем к вопросу о колебаниях электронов в кластерной наноплазме, который представляет интерес как для фундаментальной задачи построения теории неидеальной плазмы, так и для интерпретации результатов указанных выше экспериментов по резонансному поглощению второго лазерного импульса в схеме pump-probe. Основной ха-





**Рис. 11.** (а) Зависимость равновесного заряда кластера  $Z = N_i - N_e$  от числа ионов при различных температурах электронов:  $T_e = 1\text{eV}$  (нижняя кривая) и  $T_e = 3\text{eV}$  (верхняя кривая). Линии – степенная аппроксимация. (б) Радиальное распределение плотности электронов при различных температурах электронов и плотностях ионов (указаны на графике).

рактической, определяющей поглощение лазерного поля в плазме, является динамическая проводимость  $\sigma(\omega)$ . Эта величина определяется, согласно теории линейного отклика, из автокорреляционной функции тока (АФТ), рассчитанной по скоростям частиц и усредненной по различным начальным моментам времени [6]:

$$\sigma(\omega) = \beta\Omega_0 \langle \mathbf{J}^2 \rangle K(\omega), \quad K(\omega) = \int_0^\infty \frac{\langle \mathbf{J}(0)\mathbf{J}(t) \rangle}{\langle \mathbf{J}^2 \rangle} e^{i\omega t} dt, \quad \mathbf{J}(t) = \frac{1}{\Omega_0} \sum_{i=1}^N e_i \mathbf{v}_i(t). \quad (8)$$

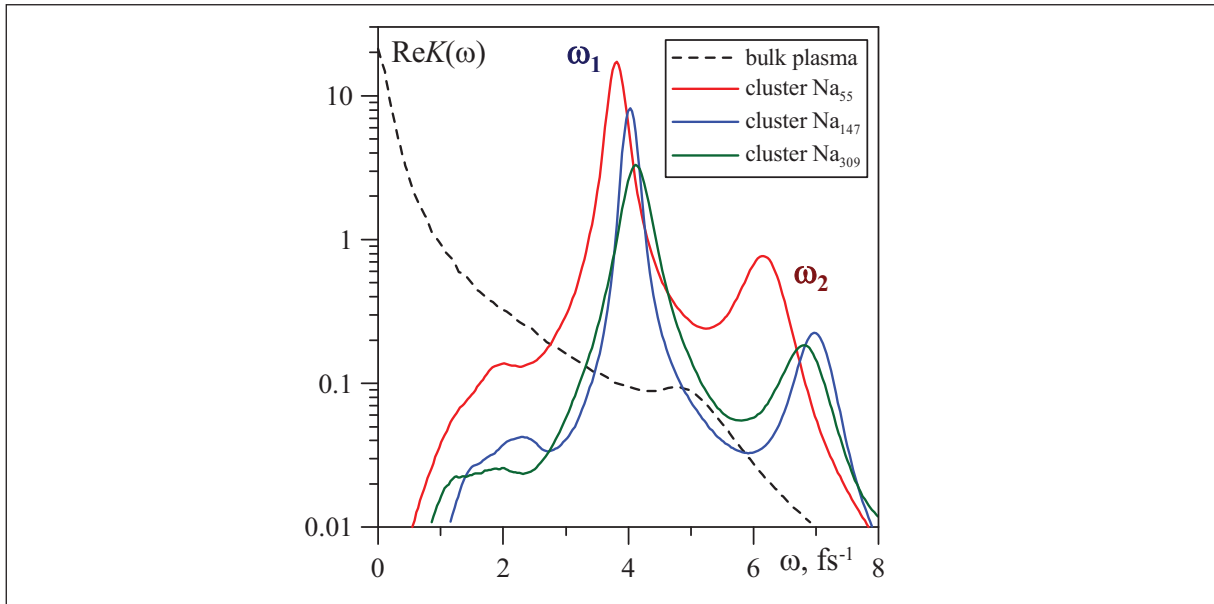
На рис. 12 показаны спектры АФТ для кластеров различного размера, а также для однородной плазмы. Из рисунка видно, что в пространственно ограниченной (кластерной) плазме возникают хорошо выраженные осцилляции, которых не удавалось обнаружить в однородной плазме, причем основные частоты этих осцилляций  $\omega_1$  и  $\omega_2$  зависят от размера кластера. Из таб. 1.1 видно, что указанные частоты не описываются формулами для частоты Ми  $\omega_{\text{Mie}} = (4\pi n_i e^2 / (3m_e))^{1/2}$  и ленгмюровской частоты  $\omega_{\text{pl}} = (4\pi n_e e^2 / m_e)^{1/2}$ . Причина этих отличий кроется в сложной пространственной структуре колебаний, связанной, в частности, с неоднородным распределением электронов в кластере (см. рис. 11б).

Приведенные результаты показывают, что вопросы о структуре электронных колебаний в наноплазме и эволюции этой структуры при переходе от пространственно ограниченной к пространственно однородной неидеальной плазме представляются достаточно актуальными и требуют дополнительного изучения.

## 6. Заключение

Исследование кластерной наноплазмы, образующейся при воздействии коротких лазерных импульсов на кластерные мишени, представляет интерес как с точки зрения практической задачи создания новых источников рентгеновского и корпускулярного излучения, так и с точки зрения фундаментальной задачи построения теории неидеальной плазмы.

Метод классической МД является уникальным инструментом для изучения пространственно ограниченной неидеальной плазмы с числом частиц в системе порядка  $10^2$ - $10^4$ . Распараллеливание метода на современных кластерах и Грид-системах воз-



**Рис. 12.** Действительная часть Фурье преобразования автокорреляционной функции тока (АФТ) для кластеров различного размера. Во всех случаях плазма имеет одинаковую температуру ( $T_e = 1$  эВ) и плотность ( $\Gamma = 2$ ). Положения наиболее выраженных первого и второго максимумов обозначены как  $\omega_1$  и  $\omega_2$ . Штриховая линия соответствует результату для пространственно однородной плазмы.

можно в первую очередь за счет использования статистического усреднения по ансамблю МД траекторий. Следует особо отметить высокую эффективность применения графических ускорителей для ускорения программ МД моделирования с кулоновским взаимодействием.

Результаты, полученные методом МД для кластерной наноплазмы, указывают на наличие заметных размерных эффектов для частоты и пространственной структуры колебаний электронов. В частности, показано, что колебания электронов в ионизованном кластере не могут быть описаны известными выражениями для плазменной частоты и частоты Ми. Получение полуэмпирических закономерностей для этих параметров с применением МД моделирования открывает новые возможности повышения эффективности поглощения лазерного излучения кластерными мишенями.

Работа проведена при поддержке по гранту РФФИ № 11-01-12131-офи-м-2011, гранту Президента РФ № МК-64941.2010.8, госконтракту № 16.647.11.2017 в рамках ФЦП «Развитие инфраструктуры наноиндустрии в РФ на 2008-2011 годы».

### Литература

1. Крайнов В.П., Смирнов М.Б. Эволюция больших кластеров под действием ультракороткого сверхмощного лазерного импульса // УФН, 2000, **170** (9), 969–990.
2. Fennel T., Meiwes-Broer K.-H., Tiggesbäumker J., et al. Laser-driven nonlinear cluster dynamics // Rev. Mod. Phys., 2010, **82** (2), 1793–1842.
3. Last I., Jortner J. Dynamics of the Coulomb explosion of large clusters in a strong laser field // Phys. Rev. A, 2000, **62**, 013201.
4. Last I., Jortner J. Nuclear fusion induced by Coulomb explosion of heteronuclear clusters. // Phys. Rev. Lett., 2001, **87**, 033401.
5. Last I., Jortner J. Scaling procedure for simulations of extreme ionizations and Coulomb explosion of large clusters // Phys. Rev. A, 2007, **75**, 042507.
6. Морозов И.В., Норман Г.Э. Столкновения и плазменные волны в неидеальной плазме // ЖЭТФ, 2005, **127** (2), 412–430.

7. *Kuzmin S., O'Neil T.* Numerical Simulation of Ultracold Plasmas: How Rapid Intrinsic Heating Limits the Development of Correlation // *Phys. Rev. Lett.*, 2002, **88** (6), 065003.
8. *Лифшиц Е.М., Питаевский Л.П.* Физическая кинетика // Физматлит, Москва, 2002, 536 стр.
9. *Духтер А.Я., Зейгарник В.А.* Уравнения состояния и проводимость цезиевой плазмы при давлениях 50-500 атм // Доклады АН СССР, 1976, **227**, 656–657.
10. *Месяц Г.А.* Эктоны в вакуумном разряде // Наука, Москва, 2000, 424 стр.
11. *Inseppov Z., Norem J., Proslie T., et al.* Modeling rf breakdown arcs // arXiv:1003.1736v3, 2010.
12. *Ланкин А.В., Морозов И.В., Норман Г.Э., и др.* О релаксации среды после ее возбуждения одиночными быстрыми тяжелыми ионами // ДАН, 2008, **419** (1), 41–46.
13. *Lankin A., Morozov I., Norman G., et al.* Solid-density plasma nanochannel generated by a fast single ion in condensed matter // *Phys. Rev. E*, 2009, **79**, 036407.
14. *Veysman M.E., Agranat M.B., Andreev N.E., et al.* Femtosecond optical diagnostics and hydrodynamic simulation of Ag plasma created by laser irradiation of a solid target // *J. Phys. B*, 2008, **41** (12), 125704.
15. *Doppner T., Teuber S., Schumacher M., et al.* Charging dynamics of metal clusters in intense laser fields // *Appl. Phys. B*, 2000, **71**, 357–360.
16. *Kim K., Alexeev I., Parra E., et al.* Time-Resolved Explosion of Intense-Laser-Heated Clusters // *Phys. Rev. Lett.*, 2003, **90**, 023401.
17. *Döppner T., Fennel T., Radcliffe P., et al.* Ion and electron emission from silver nanoparticles in intense laser fields // *Phys. Rev. A*, 2006, **73**, 031202(R).
18. *Allen M.P., Tildesley D.J.* Computer simulation of liquids // Clarendon Press, Oxford, 1989, **18** (195), 385 pp.
19. *Frenkel D., Smit B.* Understanding molecular simulation: from algorithms to applications // Academic Press, San Diego, 2002, 638 pp.
20. *Кривцов А.М., Кривцова Н.В.* Метод частиц и его использование в механике деформируемого твердого тела // Дальневосточный математический журнал ДВО РАН, 2002, **3** (4), 254–276.
21. *Gibbon P., Sutmann G.* Long-range interactions in many particle simulation // In book: J. Grotendorst, D. Marx and A. Muramatsu (eds.), Quantum simulations of many-body systems: from theory to algorithm, NIC-series, Julich, 2002, **10**, 467–506.
22. *Валуев А.А., Норман Г.Э., Филинов В.С.* Псевдопотенциальная модель неидеальной многократно ионизированной плазмы и ее исследование методом Монте-Карло // ТВТ, 1974, **12** (5), 931–939.
23. *Hansen J., McDonald I.R.* Microscopic simulation of a strongly coupled hydrogen plasma // *Phys. Rev. A*, 1981, **23** (4), 2041–2059.
24. *Pschiwul T., Zwirnagel G.* Numerical simulation of the dynamic structure factor of a two-component model plasma // *J. Phys. A*, 2003, **36**, 6251–6258.
25. *Filinov A.V., Bonitz M., Ebeling W.* Improved Kelbg potential for correlated Coulomb systems // *J. Phys. A*, 2003, **36**, 5957–5962.
26. *Klakow D., Toepffer C., Reinhard P.G.* Semiclassical molecular dynamics for strongly coupled Coulomb systems // *J. Chem. Phys.*, 1994, **101** (12), 10766.
27. *Jakob B., Reinhard P.-G., Toepffer C., et al.* Wave packet simulations for the insulator–metal transition in dense hydrogen // *J. Phys. A*, 2009, **42** (21), 214055.
28. *Morozov I.V., Valuev I.A.* Localization constraints in Gaussian wave packet molecular dynamics of nonideal plasmas // *J. Phys. A*, 2009, **42**, 214044.
29. *Kuksin A.Y., Morozov I.V., Norman G.E., et al.* Standards for molecular dynamics modelling and simulation of relaxation // *Mol. Simulat.*, 2005, **31** (14-15), 1005–1017.
30. *Morozov I.V., Valuev I.A.* Automatic distributed workflow generation with GridMD library // *Comput. Phys. Commun.*, 2011, **182**, 2052–2058.
31. *Plimpton S.* Fast Parallel Algorithms for Short-Range Molecular Dynamics // *J. Comput. Phys.*, 1995, **117**, 1–19.
32. *Stone J.E., Hardy D.J., Ufimtsev I.S., et al.* GPU-accelerated molecular modeling coming of age. // *J. Mol. Graph. Model.*, 2010, **29** (2), 116–125.
33. *Anderson J., Lorenz C., Travesset A.* General purpose molecular dynamics simulations fully implemented on graphics processing units // *J. Comput. Phys.*, 2008, **227**, 5342–5359.
34. *Morozov I.V., Kazennov A.M., Bystryi R.G., et al.* Molecular dynamics simulations of the relaxation processes in the condensed matter on GPUs // *Comput. Phys. Commun.*, 2011, **182**, 1974–1978.
35. *Быстрый П.Г.* Моделирование наноразмерных кластеров на графических ускорителях // В сб.: Труды 54-й научной конференции МФТИ, г. Долгопрудный, 10-30 ноября 2011 г., 2011, **2**, 23–24.
36. *Belkacem M., Megi F., Reinhard P.-G., et al.* Coulomb explosion of simple metal clusters in intense laser fields // *Phys. Rev. A*, 2006, **73**, 051201(R).
37. *Fennel T., Ramunno L., Brabec T.* Highly Charged Ions from Laser-Cluster Interactions: Local-Field-Enhanced Impact Ionization and Frustrated Electron-Ion Recombination // *Phys. Rev. Lett.*, 2007, **99**, 233401.

38. Raitza T., Reinholz H., Röpke G., et al. Laser Excited Expanding Small Clusters: Single Time Distribution Functions // *Contrib. Plasm. Phys.*, 2009, **49** (7-8), 496–506.
39. Calvayrac F., Reinhard P.-G., Suraud E., et al. Nonlinear electron dynamics in metal clusters // *Phys. Rep.*, 2000, **337**, 493–578.
40. Ramunno L., Jungreuthmayer C., Reinholz H., et al. Probing attosecond kinetic physics in strongly coupled plasmas // *J. Phys. B*, 2006, **39**, 4923–4931.
41. Köller L., Schumacher M., Köhn J., et al. Plasmon-enhanced multi-ionization of small metal clusters in strong femtosecond laser fields // *Phys. Rev. Lett.*, 1999, **82**, 3783–3786.
42. Ланкин А.В., Норман Г.Э. Флуктуационный подход к описанию неидеальной плазмы // *Прикладная физика*, 2009, **3**, 25–40.