arXiv:2601.20763v1 [cond-mat.mtrl-sci] 28 Jan 2026

超快激光-物质相互作用的多尺度数值模拟：麦克斯韦-双温模型-分子动力学（M-TTM-MD）

O. Benhayoun[1,*] 和 M. E. Garcia[1]

[1]理论物理研究所*II*与跨学科纳米结构科学与技术中心（*CINSaT*），卡塞尔大学，*Heinrich-Plett-Straße 40*，*34132* 卡塞尔，德国

（日期：2026年1月29日）

摘要

本文提出了一个综合数值框架，将采用时域有限差分（FDTD）方法数值求解麦克斯韦方程组、分子动力学（MD）和双温模型（TTM）耦合起来，用于描述原子尺度金属体系中的超快激光-物质相互作用。所提出的麦克斯韦-双温模型-分子动力学（M-TTM-MD）将电磁场传播、电子-声子能量交换和原子运动联系起来，从而能够在统一的模拟环境中自洽地处理能量吸收、输运和结构响应。计算得到的电磁场纳入了采用辅助微分方程（ADE）技术推导的色散介电性质，而电子与晶格子系统则通过具有空间和时间分辨率的能量交换项实现动态耦合。随后，材料形貌的变化会反映在更新后的FDTD格式网格中。所开发的M-TTM-MD模型提供了一个自洽的数值框架，有助于深入了解金属中的激光诱导现象，包括极端非平衡条件下的能量输运和表面动力学。

关键词：多尺度数值模拟、超短激光-物质相互作用、分子动力学、双温模型、时域有限差分

* obenhayoun@uni-kassel.de

I. 引言

超快激光-物质相互作用已成为理解和控制飞秒时间尺度物理过程的重要研究领域。当飞秒激光脉冲照射金属靶材时，吸收的能量首先沉积到电子子系统中，使其温度迅速升高，而晶格仍保持室温。随后，能量通过电子-声子耦合传递给离子，最终使两个系统达到热平衡。这一非平衡过程对于许多需要烧蚀或改性靶材表面的超快现象至关重要。一个重要的应用是形成激光诱导周期性表面结构（LIPSS），在包括电介质和金属在内的多种材料表面上，均可形成周期性且均匀的波纹 [1–10]。

为描述这些动力学过程，双温模型（TTM） [11, 12]已得到广泛应用，可从宏观角度描述电子温度与晶格温度的耦合演化。然而，该方法缺乏原子尺度分辨率，无法捕捉局部结构转变。另一方面，分子动力学（MD）模拟能够从原子尺度揭示晶格响应，但通常依赖经验性或均匀加热方案，忽略了空间变化的能量吸收和电磁效应。

为克服这些局限，近期有研究将分子动力学与双温模型形式体系相结合 [13–15], ，从而更真实地描述晶格动力学和相变。然而，大多数实现仍采用简化的光学源项，并假设能量沉积在空间上均匀分布，因此忽略了电磁场演化和材料色散。例如，表面形貌会使入射激光发生散射，并能激发表面波，如表面等离激元极化激元 [2, 8, 10, 16], ，进而显著影响能量吸收。此外，多个激光脉冲会逐渐改变表面形貌；当能量通量足够高时，这可能引发相变、导致表面变形，甚至通过剥落或蒸发移除材料。因此，捕捉这种脉冲间反馈对于准确描述样品的时间演化和最终再凝固结构至关重要。

在本研究中，我们提出了一种完全耦合的麦克斯韦-双温模型-分子动力学（M-TTM-MD）框架，在该框架中，电磁场传播、非平衡

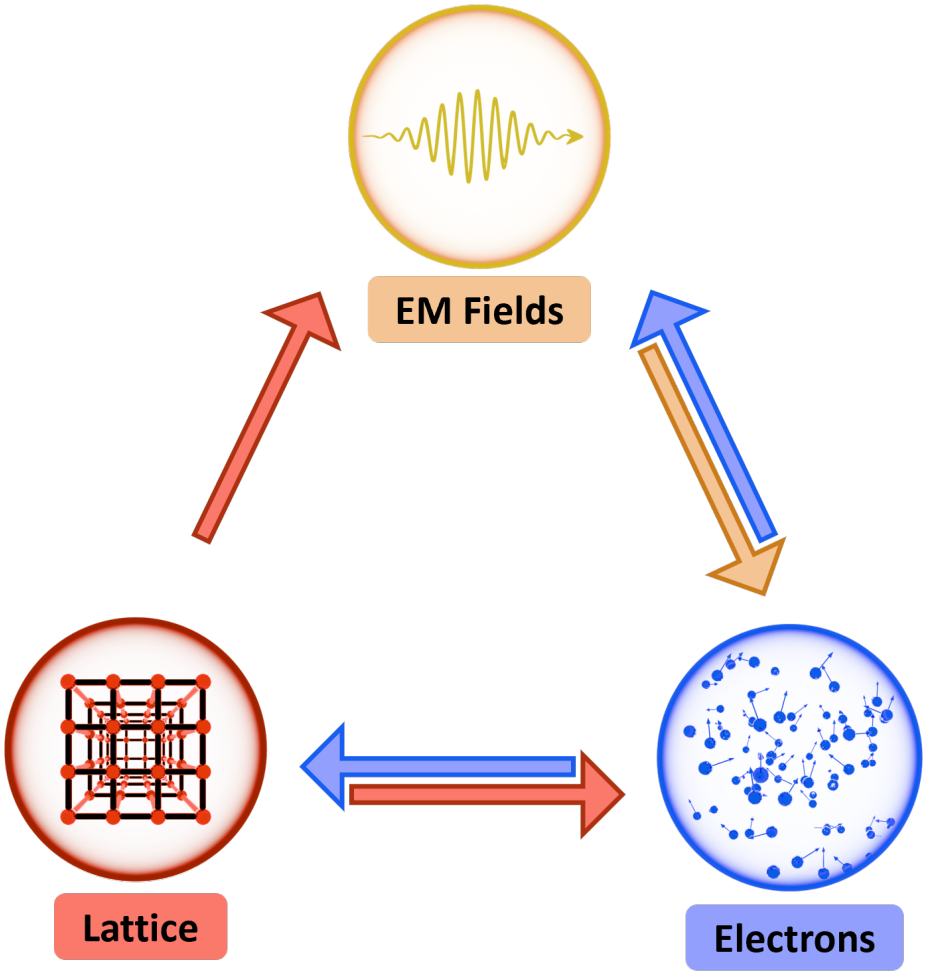

图1. M-TTM-MD模型中所考虑的不同相互作用示意图。电磁波在材料中传播，并被电子子系统吸收，导致电子温度迅速升高 T_e。随后，能量通过电子-声子耦合传递至晶格子系统，使晶格温度升高 T_l。升高的晶格温度会引发原子运动和结构变化，进而影响材料的光学性质，并改变电磁波的散射和吸收。在整个激光-物质相互作用过程中，这种反馈循环持续进行。

电子与晶格加热，以及原子尺度结构动力学均在单一计算模型中进行自洽处理。电磁问题采用时域有限差分法（FDTD）求解 [17, 18], ，由此获得具有时空分辨率的场分布，并据此评估局部吸收能量密度，将其作为电子子系统的源项。不同的相互

不同子系统之间的相互作用可概括如图1所示：入射电磁波的吸收会迅速提升电子温度 T_e，随后电子-声子耦合将能量传递至晶格，使晶格温度 T_l 在皮秒时间尺度内升高。相应的温升会引发原子快速运动、应力累积和相变，从而改变表面形貌。材料密度以及电子温度和晶格温度的变化，会改变界面处模型材料的光学响应，进而影响后续的场表面分布和吸收。晶格热力学性质（温度、压力和密度）、电子热扩散方程与电磁场分布之间的这种反馈构成一个闭环，确保耦合模块协同自洽演化。该实现通过基于MPI的并行化支持大规模计算，并采用显式能量核算，以确保时域有限差分、双温模型和分子动力学各组成部分之间的一致性。由此形成的框架可对强非平衡激发下不同材料中的超快能量传输和结构演化开展定量、空间分辨研究。

II. THEM-TTM-MD模型

A. 模拟框架概述

如前所述，所提出的麦克斯韦-双温模型-分子动力学（M-TTM-MD）的主要目标，是高精度地推导出一个自洽的超快激光激发源项，使其能够与几何复杂程度各异的金属体系相互作用。因此，采用时域有限差分法（FDTD）计算材料吸收的电磁能，并在均匀的 Yee 网格 [17–20] 上对场进行离散化。每个单元都存储场分量，并在每个时间步更新，以数值求解麦克斯韦方程组。与此同时，TTM-MD框架通过积分牛顿运动方程，模拟固体在外部激发下的原子尺度动力学，同时确保电子与晶格子系统之间的局部能量平衡。整合这两个求解器需要对各自的计算域进行一致耦合。因此，M-TTM-MD框架采用了三种空间网格：FDTD、TTM和分子动力学。分子动力学网格（参考网格）由离散原子的位置构成

；而FDTD和TTM网格是连续介质网格，分别用于计算不同子系统的场和温度，同时根据分子动力学网格更新压力和材料密度等空间平均量。必须合理选择分辨率和时间步，以确保所有模块之间的数值稳定性和物理兼容性。FDTD网格采用均匀单元尺寸 $\Delta_x = \Delta_y = \Delta_z = \Delta_{FDTD}$，通常设置为等于或小于TTM单元尺寸 $\Delta_{FDTD} \approx \Delta_{TTM}$，以确保将局部电磁能流准确映射到电子温度分布（见图2）。为准确分辨最短光学波长 $\lambda_{\min}$ 和精细几何特征， Δ_{FDTD}必须满足：

$$\Delta_{FDTD} \leq \min\left(4d_{\min}, \frac{\lambda_{\min}}{N_d}\right), \tag{1}$$

其中， $d_{\min}$ 是最小特征尺寸， $N_d \geq 10$ 表示每个波长对应的网格单元数。当烧蚀或蒸发产生违反不等式（1）的亚分辨率表面特征时，FDTD程序会忽略这些特征，以保持数值稳定性。FDTD时间步长受库朗–弗里德里希–列维（CFL）条件 [18],约束，因此为 $t_{FDTD} \approx 10^{-3}$ fs，而双温模型循环的时间步长为 $t_{TTM} \approx 10^{-2}$ fs。计数器变量用于同步这两个循环，确保正确的时间耦合。FDTD子程序会一直运行至收敛，通常是在电磁波完全穿过计算域之后；因此，FDTD迭代次数设为 $N_{\text{step}} \geq 12\tau_{\text{las}}$，其中 τ_{las} 为脉冲持续时间。随后，场被计算域边界吸收；边界处设置了卷积完美匹配层（CPML层） [18, 21] ，以将非物理反射吸收至模拟区域中。FDTD与TTM-MD求解器之间的耦合还考虑了材料原子密度的变化。当$\rho^{\text{mat}} \geq \rho_0^{\text{mat}}/10$ 时，网格单元被激活；否则则被停用。其中，ρ_0^{mat}为材料在室温下的初始密度， $\epsilon_r = 1$ 表示真空区域的相对介电常数。对于中间密度，采用线性插值： $\epsilon_r = \frac{\rho^{\text{mat}}}{\rho_{\text{init}}^{\text{mat}}}\epsilon_{\text{mat}}$。此外， ϵ_r 会随电子温度 T_e 和激光频率ω_{las}动态变化，具体关系为 [22]。这种随温度和波长变化的介电函数通过广为人知的辅助微分方程（ADE）方法 [18, 20, 23], 纳入FDTD格式，并在每个FDTD时间步更新，以捕捉激光激发下材料光学性质的瞬态变化。

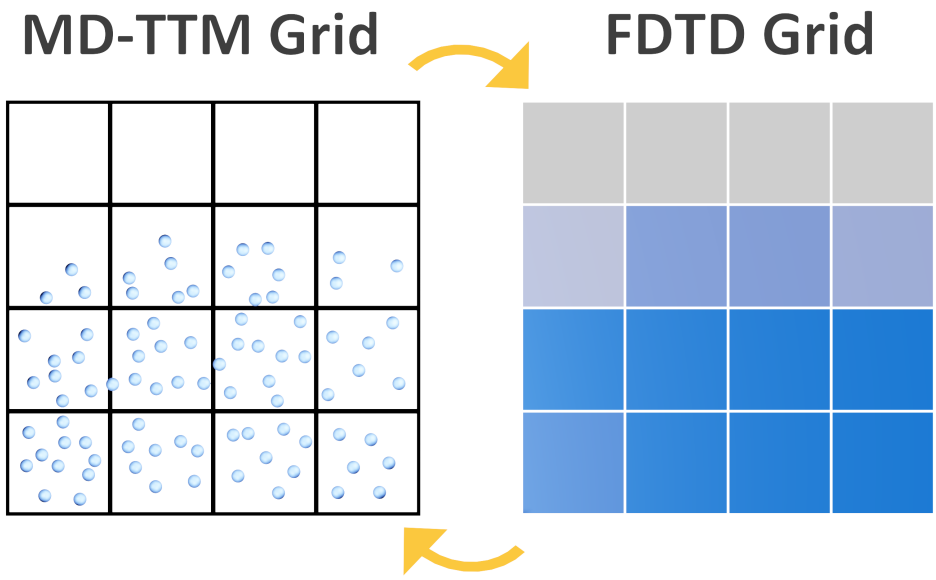

图2. FDTD 与 TTM-MD 连续介质单元之间关系的示意图。分子动力学单元中的原子密度较低，会导致 FDTD 方法中材料的介电函数值降低。

计算域（图3）由多个区域组成：包含材料的中心TTM-MD区域，外围是总场（TF）区域和散射场（SF）区域，两者均由CPML层包围。TTM-MD模块中保留周期性边界条件，以模拟无限晶格；而FDTD求解器中则不采用周期性边界条件，以防止场的非自然放大。这种配置确保在M-TTM-MD框架内对超快能量吸收、输运和结构响应进行自洽模拟。

B. 计算能量吸收

在按照上述考虑初始化时域有限差分和 TTM-MD 模块后，M-TTM-MD 算法进入主循环，以自洽的方式迭代更新所有量——温度分布、原子间作用力、粒子位置和速度，以及电磁场分量（见图4）。在这一耦合循环中，电磁场通过 FDTD 源项 Q_{las} 驱动电子加热；该源项由坡印廷矢量 S的散度计算得出，表示局部

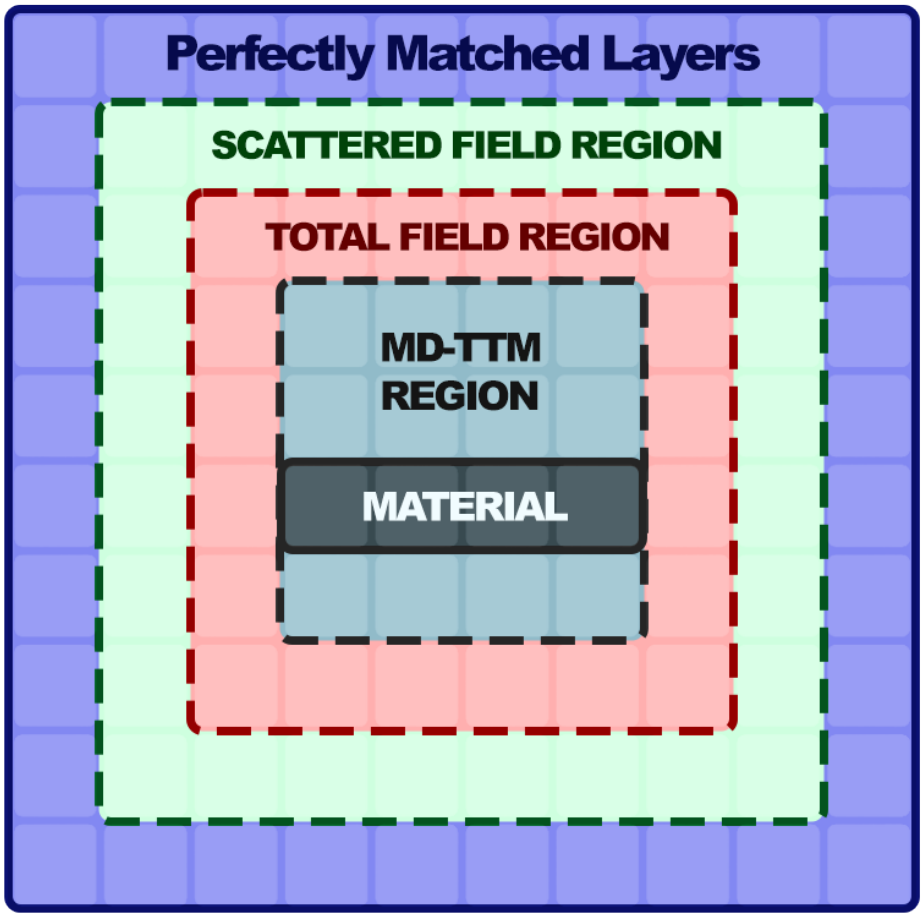

图3. 算法所用计算域的示意图。计算域由多个区域组成：中心的 TTM-MD 区域代表模拟材料。周围的全场区域（红色虚线边框）包含与材料相互作用的入射电磁场，而散射场区域（绿色虚线边框）用于处理向外传播的散射波。最外层的完美匹配层（蓝色阴影区域）吸收向外传播的波，以防止其反射回模拟区域。

穿透材料的电磁能流：

$$Q_{\text{las}} = -\vec{\nabla} \cdot \vec{S} = -\vec{\nabla} \cdot (\vec{E} \times \vec{H}). \tag{2}$$

为在离散的 Yee 网格上、单元格索引为（i， j， k）、时间步为 n 处计算 Q_{las}，定义向量$\vec{S}$ 如下：

$$\vec{S} = \begin{pmatrix} S_x|^n_{i+\frac{1}{2},j,k} \\ S_y|^n_{i,j+\frac{1}{2},k} \\ S_z|^n_{i,j,k+\frac{1}{2}} \end{pmatrix}, \tag{3}$$

由此得到离散形式：

$$Q_{\text{las}}|_{i,j,k}^{n} = -\frac{S_x|_{i+\frac{1}{2},j,k}^{n} - S_x|_{i-\frac{1}{2},j,k}^{n}}{\Delta x} - \frac{S_y|_{i,j+\frac{1}{2},k}^{n} - S_y|_{i,j-\frac{1}{2},k}^{n}}{\Delta y} - \frac{S_z|_{i,j,k+\frac{1}{2}}^{n} - S_z|_{i,j,k-\frac{1}{2}}^{n}}{\Delta z}. \tag{4}$$

$\vec{S}$ 的每个分量均由插值后的电场和磁场值推导得出。例如：

$$S_x|_{i+\frac{1}{2},j,k}^{n} = \breve{E}_y\Big|_{i+\frac{1}{2},j,k}^{n} \breve{H}_z\Big|_{i+\frac{1}{2},j,k}^{n} - \breve{E}_z\Big|_{i+\frac{1}{2},j,k}^{n} \breve{H}_y\Big|_{i+\frac{1}{2},j,k}^{n}, \tag{5}$$

其中，插值分量通过对相邻 Yee 网格点进行简单平均得到，例如：

$$\breve{E}_y\Big|_{i+\frac{1}{2},j,k}^{n} = \frac{1}{4}\left(E_y|_{i+1,j+\frac{1}{2},k}^{n} + E_y|_{i,j+\frac{1}{2},k}^{n} + E_y|_{i+1,j-\frac{1}{2},k}^{n} + E_y|_{i,j-\frac{1}{2},k}^{n}\right),$$
$$\breve{E}_z\Big|_{i+\frac{1}{2},j,k}^{n} = \frac{1}{4}\left(E_z|_{i+1,j,k+\frac{1}{2}}^{n} + E_z|_{i,j,k+\frac{1}{2}}^{n} + E_z|_{i+1,j,k-\frac{1}{2}}^{n} + E_z|_{i,j,k-\frac{1}{2}}^{n}\right).$$

其余分量 $S_y|_{i,\,j+\frac{1}{2},\,k}^{n}$ 以及 $S_z|_{i,\,j,\,k+\frac{1}{2}}^{n}$ 均以类似方式计算。

当 FDTD 网格比 TTM 网格更精细时，后者的单元尺寸定义为 FDTD 间距的整数倍，$\Delta_{TTM} = m\Delta_{FDTD}$ 其中 $m \in \mathbb{N}^*$。在这种配置下，FDTD 层级计算出的电磁通量会先在 m^3 个单元上进行体积平均，再传递到相应的 TTM 单元，从而确保不同分辨率下的能量沉积保持一致。这一平均过程既能维持数值精度，又使 FDTD 子程序能够解析精细尺度的光学特征，并使 TTM 模块能够在耦合的 M-TTM-MD框架中捕捉空间平均后的电子加热。

C. TTM-MD 方案

外场源项 $S(\vec{r},\ t)$ 计算完成后，便由 TTM-MD 模块接手计算。在该方案中，通过将电子的 TTM 扩散方程与 MD 运动方程 [13] 相联系，实现能量平衡：

$$C_e(T_e)\partial_t T_e = \partial_z\left(K_e(T_e)\frac{\partial T_e}{\partial z}\right) - G(T_e - T_l) + S(\vec{r},t), \tag{6a}$$

$$m_i\frac{\partial^2 \vec{r}_i}{\partial t^2} = \vec{F}_i + \xi m_i \vec{v}_i^{\,T}, \tag{6b}$$

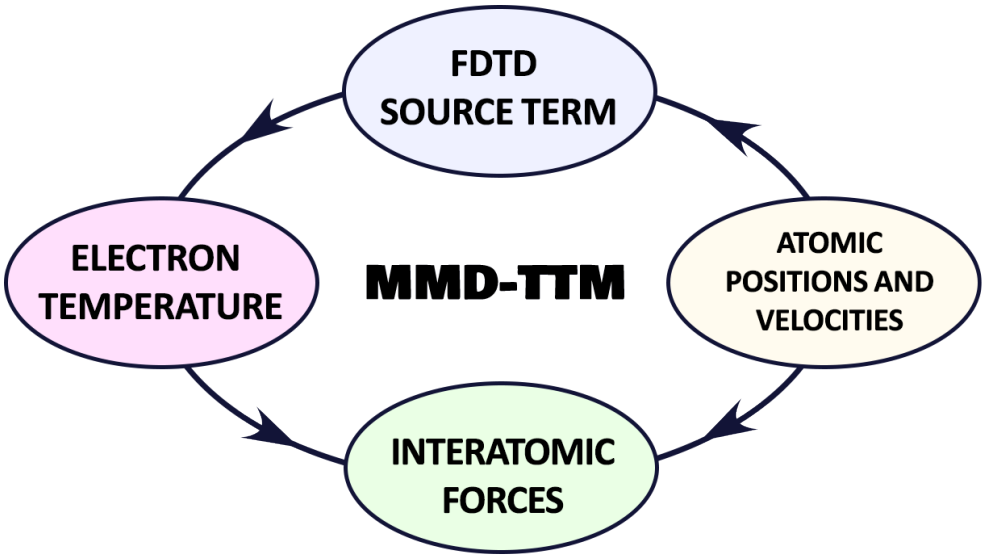

图4. M-TTM-MD 循环示意图，重点展示了不同子程序之间的相互作用。FDTD源项驱动电子温度升高，并通过电子–声子（e-ph）耦合影响晶格温度。晶格温度升高导致物质重组，从而改变作用于各个粒子的原子间作用力。利用这些力计算粒子的新位置和速度，进而更新原子构型。如果材料的表面拓扑发生变化，电磁（EM）脉冲的散射也会受到影响，导致能量沉积分布进一步更新，从而完成这一循环。

其中，耦合因子 ξ 定义为:

$$\xi = \frac{1}{n}\sum_{k=1}^{n}\frac{GV_N(T_e^k - T_l)}{\sum_i m_i(\vec{v}_i^T)^2}. \tag{7}$$

耦合项将原子热运动 $\vec{v}_i^T$ 与集体运动区分开来，从而无需显式考虑晶格热容即可实现温度依赖的能量传递。计算域被划分为有限差分单元，在 n 步内交换的能量为 $\Delta E^{\text{e-ph}} = \sum_{k=1}^{n}\Delta t_{\text{FD}} G V_N (T_e^k - T_l)$，并通过式（6b）添加到原子子系统中。

晶格热物理性质——热容、弹性常数、膨胀和熔化温度——由嵌入原子法（EAM）势函数获得。原子的动能温度（在平衡状态下与热力学温度相同）可通过能量均分定理

librium) 可使用能量均分定理求得:

$$T_{\text{kin}} = \frac{2}{k_B(3N - N_c)} \frac{1}{2} \sum_{i=1}^{N} m_i v_i^2, \tag{8}$$

其中， N_c 是施加于系统的外部约束数量， N 是原子总数。另一方面，压力通过维里定理计算:

$$P = \frac{N k_B T}{V} + \frac{1}{3V} \left\langle \sum_{i=1}^{N} \vec{r}_i \cdot \vec{F}_i^{\text{int}} \right\rangle. \tag{9}$$

D. 数值模拟算法

如前所述，M-TTM-MD算法集成了三种主要数值方法：时域有限差分、双温模型和分子动力学模拟。为实现大规模计算，我们采用基于MPI的区域分解，将时域有限差分、双温模型和分子动力学的计算任务分配到多个进程（秩）上。每个秩推进其本地空间子域，并在每个时间步与邻居交换计算所得的数据。时域有限差分和TTM-MD模块不一定采用相同的MPI分解。因此，不同模块间使用的量（例如源项）会在主秩的协调下映射回全局数组，再重新分配给不同的TTM-MD处理器。实际实现中，我们采用所谓的皮肤层，其厚度为几个网格单元，并扩展每个秩的子域，以支持进程边界之间高效的通信。在FDTD网格中，皮肤层会在每个界面之外一个网格单元处存储 E 和 H 分量，并在每个时间步从邻近秩更新，以确保秩界面处旋度更新的一致性，以及卷积完美匹配层和总场-散射场边界 [24]的连续性。在TTM-MD模块中，类似的皮肤区域会缓存近邻截断范围内来自相邻秩的原子；该缓冲区支持对子域边缘附近的力进行计算，并为原子迁移做好准备。跨越边界的原子会在下一次通信时交接给相应的秩。这种设计平衡了计算负载，减少了每个秩的内存占用，并使通信与计算能够重叠，从而提高并行效率并缩短总计算时间。

组合算法的总体框架可描述如下 s:

1. 初始化 MPI库并设置并行化参数。

2. 从输入文件中读取数值，包括模拟参数和场初始化的相关数值。

3. 设置分子动力学、双温模型和时域有限差分网格，并应用边界条件（周期性边界条件）。

4. 将相关变量广播给所有处理器。

5. 初始化时域有限差分方法，并根据分子动力学材料密度构建其网格。

6. 开始针对 t_{global} 的主时间循环：

（a）运行时域有限差分循环，直到 t_{FDTD} 与 t_{global} 同步：

i. 计算电磁源场。ii. 通过计算新的电磁场来更新时域有限差分方程。iii. 根据需要在处理器之间交换数据。iv. 计算电磁能流。v. 将时域有限差分变量写入外部文件，以便输出并在需要时恢复计算。

(b) 通过重新计算新的力、速度和原子位置来更新分子动力学算法。(c) 计算新的电子和晶格温度分布。(d) 将相关变量写入外部文件。

7. 当 主时间循环完成后，结束程序并关闭所有进程。

E. 能量平衡

除了数值一致性之外，详细的能量核算还揭示了非平衡过程中（例如激光诱导熔化时）能量如何在各子系统之间重新分配。因此，我们会验证每个算法组件的守恒性。

对于采用总场散射场平面波源的 FDTD 子程序，我们对入射功率进行积分，并将其与反射/散射功率和吸收功率之和进行比较。入射功率由对 TFSF 注入单元处的坡印廷矢量 Q_{inc} 散度进行积分得出；散射场区域可对反射/散射能量进行闭合曲面积分，而材料体积分则可得出吸收部分。因此，

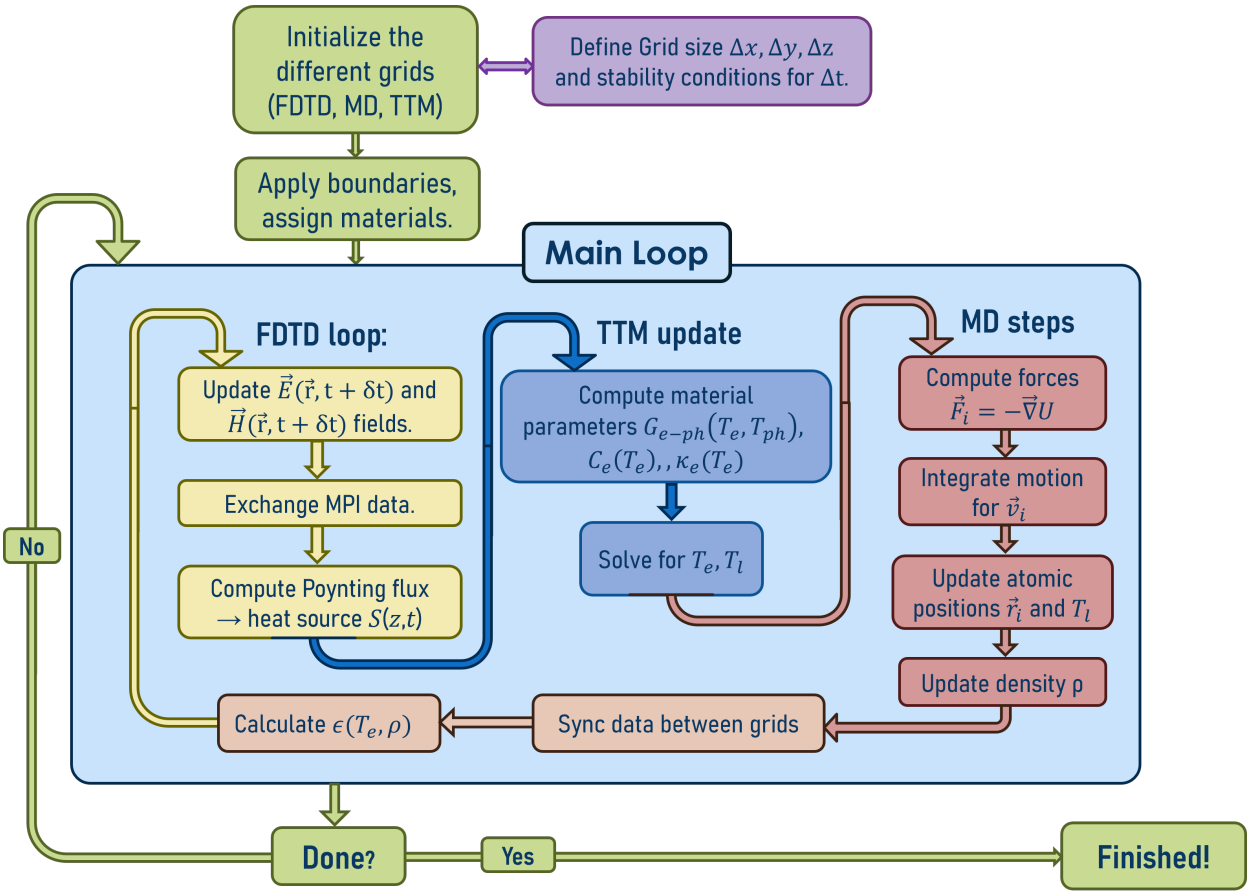

图 5. M-TTM-MD算法的基本实现。FDTD 模块、TTM 能量方程和 MD 积分器在每个全局时间步交换数据，确保各组件之间实现自洽耦合。

入射 $=$ 反射/散射 $+$ 吸收。总电磁功率的计算方式与 TFSF 计算域 $[i_0, i_1] \times [j_0, j_1] \times [k_0, k_1]$内公式 (4) 的计算方式类似。

另一种检验方法是在 Yee 网格上对完全离散形式的电磁能量平衡定律进行积分。虽然 Yee 交错网格能产生精确的 FDTD 更新，但计算 S、$\vec{E} \cdot \vec{J}$ 和 U 需要逐时间步插值，与式 (4) 类似。离散守恒

表示为:

$$\frac{\partial U}{\partial t}+\vec{\nabla}\cdot\vec{S}=-\vec{E}\cdot\vec{J}$$
$$\sum_{x_i}\left(\epsilon_0\epsilon_\infty\frac{\breve{E}^2_{x_i}\Big|_{i,j,k}^{n+\frac{1}{2}}-\breve{E}^2_{x_i}\Big|_{i,j,k}^{n-\frac{1}{2}}}{2\Delta t}+\frac{\breve{H}^2_{x_i}\Big|_{i,j,k}^{n+\frac{1}{2}}-\breve{H}^2_{x_i}\Big|_{i,j,k}^{n-\frac{1}{2}}}{2\mu_0\Delta t}\right)+\frac{S_x|^n_{i+\frac{1}{2},j,k}-S_x|^n_{i-\frac{1}{2},j,k}}{\Delta x}$$
$$+\frac{S_y|^n_{i,j+\frac{1}{2},k}-S_y|^n_{i,j-\frac{1}{2},k}}{\Delta y}+\frac{S_z|^n_{i,j,k+\frac{1}{2}}-S_z|^n_{i,j,k-\frac{1}{2}}}{\Delta z}=-\sum_{x_i}\breve{E}_{x_i}\Big|_{i,j,k}^{n}\breve{J}_{x_i}\Big|_{i,j,k}^{n},\qquad(10)$$

与 $x_i\in\{x,y,z\}$ 和

$$\breve{J}_{x_i}\Big|_{i,j,k}^{n}=\breve{J}_{D,x_i}\Big|_{i,j,k}^{n}+\sum_{l=1}^{L_p}\breve{J}_{l,x_i}\Big|_{i,j,k}^{n},\qquad(11)$$

其中 $\breve{}$ 表示插值量；例如，

$$\breve{E}_x\Big|_{i,j,k}^{n+\frac{1}{2}}=\frac{1}{4}\left(E_x|^{n+1}_{i+\frac{1}{2},j,k}+E_x|^{n}_{i+\frac{1}{2},j,k}+E_x|^{n+1}_{i-\frac{1}{2},j,k}+E_x|^{n}_{i-\frac{1}{2},j,k}\right),$$
$$\breve{H}_x\Big|_{i,j,k}^{n+\frac{1}{2}}=\frac{1}{4}\left(H_x|^{n+\frac{1}{2}}_{i,j+\frac{1}{2},k+\frac{1}{2}}+H_x|^{n+\frac{1}{2}}_{i,j+\frac{1}{2},k-\frac{1}{2}}+H_x|^{n+\frac{1}{2}}_{i,j-\frac{1}{2},k+\frac{1}{2}}+H_x|^{n+\frac{1}{2}}_{i,j-\frac{1}{2},k-\frac{1}{2}}\right).$$

对于 TTM-MD 子系统，系统总能量包括电子能量 E_e、原子热运动产生的动能和势能 E_a^{th}、离子集体运动产生的动能和势能 E_a^c，以及熔化能 E_m，其中 $E_m=f_LH_m$； f_L 为根据中心对称参数（CSP）确定的液相分数，而 H_m 为由内能曲线 [13, 14, 25]得出的熔化潜热。

III. 金薄膜的数值模拟

在本节中，我们通过模拟以六束波长为300 nm、脉宽为50 fs、能量通量为0.1 J/cm^2 的飞秒激光脉冲辐照 $150\times600\times15$ nm金薄膜来验证M-TTM-MD框架；各脉冲间隔5 ps，以便在相继激发之间实现部分弛豫。计算域（图6）左侧为金薄膜，其上方放置一层薄介电层（$\epsilon_r=3.5$），二者之间留有狭窄真空间隙，以模拟用于表面等离激元激发的Otto构型 [26, 27]。时域有限差分网格在所有空间方向上以均匀间距分辨两种材料，网格尺寸与双温模型网格所用尺寸相同。另一方面，分子动力学算法总共包含约4×10^7 个原子，仅模拟金样品而忽略玻璃材料。

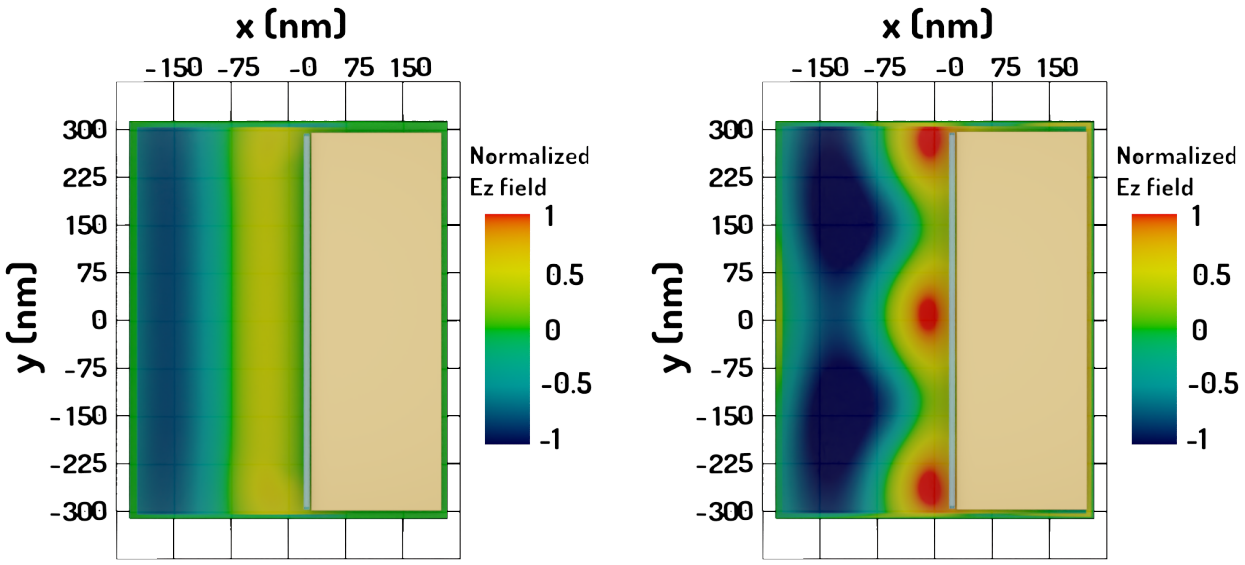

图6. 时域有限差分运行期间的归一化电场 E_z：（a）法向入射平面波注入总场（TF）区域，并在穿过模拟 Otto 构型的薄玻璃层后照射到金薄膜上；（b）入射波、反射波和透射波之间的干涉产生驻波条纹，从而确定 TTM 模块所用的空间吸收分布。

如图6(a)所示，一束正入射平面波被注入时域有限差分计算域的总场区，通过入射、反射与透射分量的叠加形成驻波干涉图样。该干涉在金属-介质界面处产生空间调制的电场分布，从而确定传递至TTM 模块的非均匀吸收分布。麦克斯韦方程组的这一自洽求解使算法能够自然地捕捉实际的光学吸收分布，该分布负责引发周期性能量沉积及随后的结构改性。

辐照过程中，吸收的能量迅速使电子温度升高，而晶格最初仍处于低温状态。电子温度分布起初与光学吸收模式相对应，在表面附近的干涉极大值处呈现局部高温。能量在数百飞秒内通过电子-电子碰撞扩散，使这些温度梯度逐渐平滑，并在约一皮秒后趋于平缓，从而使薄膜沿长度方向的温度得到部分均匀化。同样，

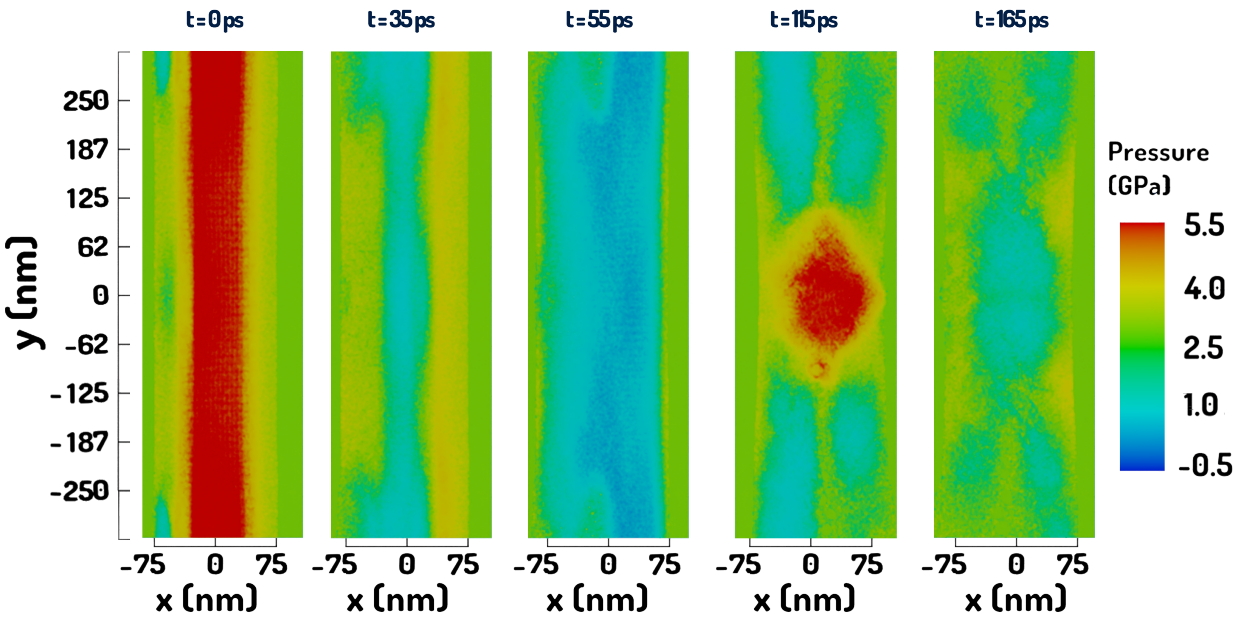

图7. 晶格压力切片的时间演化揭示了应力约束。演化中的应力场追踪了时空能量沉积以及薄膜随后的响应。

通过电子-声子耦合向晶格传递能量时，其空间分布起初与表面电磁场相同，并在皮秒时间尺度上逐渐变得更加均匀。由于脉冲持续时间（50 fs）远短于材料的声学弛豫时间，快速的晶格加热会导致样品内部迅速积累内应力。快速的热弹性膨胀会产生高达 6 GPa 的压缩压力，并引发振荡膨胀波；膨胀波从薄膜中心产生，向自由边界传播。由于我们的模拟在垂直于入射激光脉冲的横向方向上采用了周期性边界条件，膨胀波会反射回来并在薄膜中心发生干涉，如图7所示。

通过追踪晶格温度的时空演化（图8），我们可以看到，熔化首先在自由表面处以非均匀方式发生，因为此处的成核势垒最低；随后，随着热扩散和声学振荡的持续，熔化向薄膜中心传播。在受热最强的区域，由于材料经历了局部过热，均匀熔化会同时发生，从而导致液相成核并促进相变 [28–30]。当应力的拉伸阶段

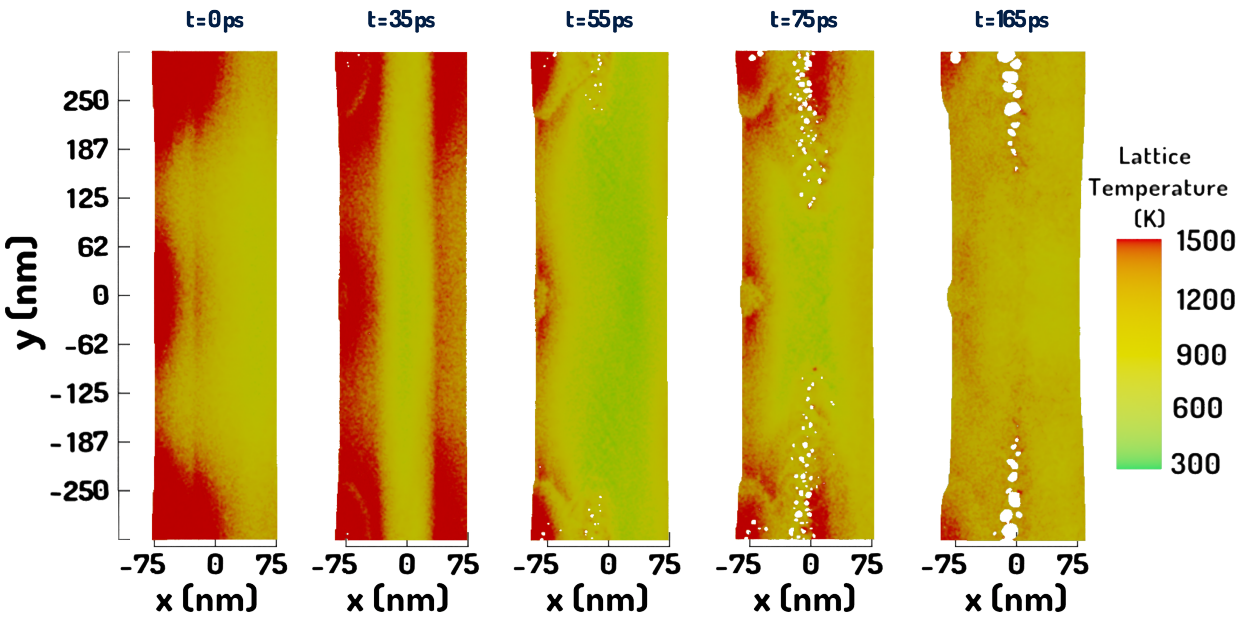

图8. 金膜中晶格温度的时间演化 T_ℓ 。加热最初局限在介质/金属界面附近。高压区域与高温区域相吻合。

波穿过熔融区域时，局部压力可能降至空化阈值以下，导致纳米级空洞自发形成。这些空洞优先出现在光学干涉图样所施加的周期性场强极大值处，并代表熔融层中的一种机械弛豫途径。这些空洞的膨胀通过流体动力学流动重新分配周围的熔体，将材料推向低密度区域周围的上方，并形成与光强峰值对齐的周期性表面凸起（“纳米凸起”） [13, 15]。

随着脉冲接连到达，虽然会发生部分热弛豫，但整体温度仍持续升高，从而强化了原有的调制图样。晶格结构的时空演化（图 9）呈现出清晰的表面凸起，并伴有内部空洞和位错网络；这些结构是由巨大的瞬态应力和快速固液相变造成的。所施加的能量通量处于这样一个范围：会发生局部熔化和空化，但不会出现大规模烧蚀或薄片脱落。总体而言，该模拟完整捕捉了超快过程的整个序列：从场分辨光学干涉、应力约束下的非平衡电子-声子耦合、瞬态熔化和空化，到最终导致表面起伏重新固化的流体动力学流动——

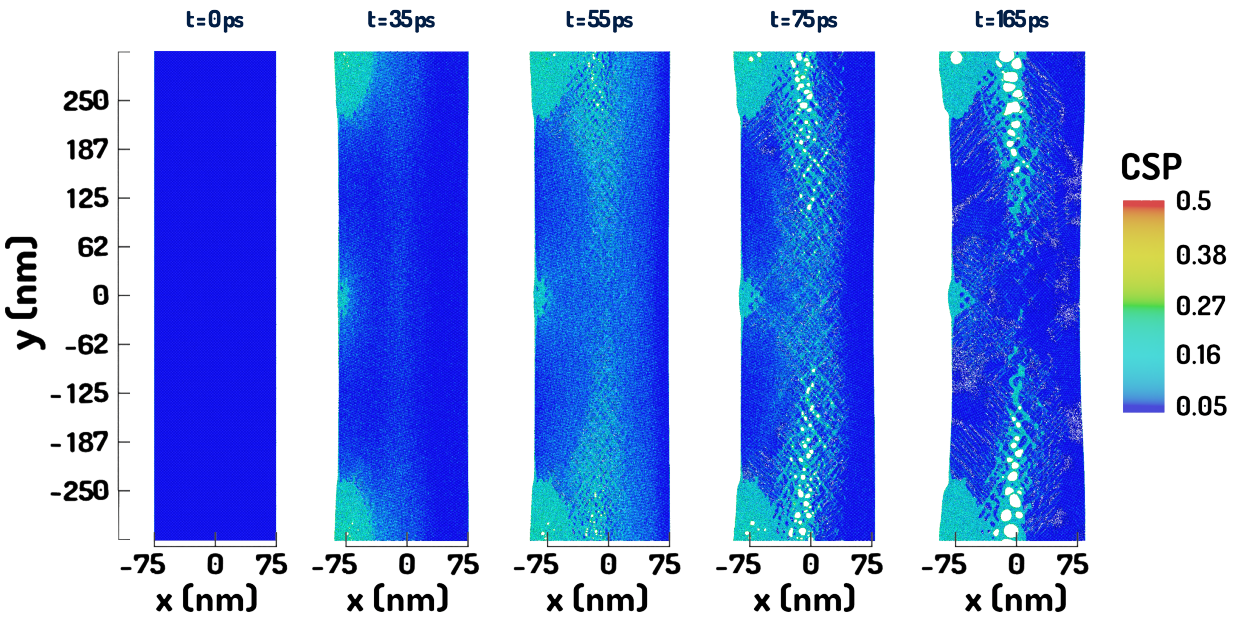

图 9. 受照射金膜的时间演化，其中绘出了完整样品的一薄层，以展示样品的原子结构。原子根据其局部中心对称参数着色，蓝色表示晶态有序，红色表示无序（类液态）状态。

从而为金属薄膜中周期性表面结构形成的初始阶段提供了连贯的微观图景。

IV. 结论

我们通过集成用于求解麦克斯韦方程组的FDTD求解器，进一步升级了TTM-MD代码。各模块实现了双向耦合，使场分辨吸收与原子尺度响应之间能够相互反馈。通过自洽地解析吸收分布，并将其传递至原子尺度力学，该模型解释了飞秒激发如何在金属和半导体中诱导形成空间有序形貌。这些结果表明，该框架在研究金属中的激光诱导图案化时兼具预测能力和物理相关性，并能帮助我们深入理解外部激发所产生的、具有时空分辨率的场、温度和应力。

如研究所示，结合使用M-TTM-MD方法需要大量计算资源，因为模拟复杂的光与材料相互作用时，既要调用TTM-MD组件，也要调用FDTD组件。尽管如此，使用M-TTM-MD框架开展的初步模拟已展现出良好的前景。虽然这一集成方法能够提供原子尺度分辨率的洞见，但仍有优化模型效率的空间。一项值得考虑的改进是采用多分辨率时域有限差分网格，仅在关键区域（例如材料表面附近或具有微小几何特征的密集区域周围）使用较精细的分辨率，而在其他区域采用较粗的分辨率。这样既能显著降低计算负载和内存使用量，又不会牺牲模拟的整体精度。

为进一步提高计算效率，可以探索在 TTM-MD 和时域有限差分算法组件中采用自适应时间步进，因为这样只需在必要时使用较小的时间步，从而提高模拟的整体速度。或者，正如 [19] 中对时域有限差分技术的讨论所述，采用无条件稳定方法可以消除对时间步长的限制。

此版本的代码只是众多迭代版本中的第一版，旨在通过所提出的改进，开发出一种效率更高、适用性更广的方案，可用于不同领域。

数据可用性

支持本研究结论的数据可向通讯作者合理申请获取。

作者贡献

O.B. 开发了数值框架，进行了模拟，分析了结果，并撰写了稿件初稿。M.E.G. 指导了这项工作，并参与了结果解读和稿件修订。

利益冲突

作者声明不存在利益冲突。

致谢

我们谨此感谢德国研究联合会为项目 GA465/15-2 以及项目 RE1141/14-2 提供资金支持。

---

[1] M. Birnbaum, 《红宝石激光器造成的半导体表面损伤》, 《应用物理学杂志》**36**, 3688(1965)。

[2] O. Benhayoun, P. Terekhin, D. Ivanov, B. Rethfeld 和 M. Garcia, 《表面等离激元极化激元辅助金属加热理论》, 《Applied Surface Science》**569**, 150427 (2021)。

[3] J. Bonse, A. Rosenfeld 和 J. Kr¨uger, 《表面等离激元极化激元在硅受飞秒激光脉冲辐照时形成激光诱导周期性表面结构中的作用》, J. Appl. Phys **106**, 104910 (2009)。

[4] J. Bonse和S. Gr¨af, 《麦克斯韦遇上马兰戈尼——激光诱导周期性表面结构理论综述》, 《激光与光子学评论》**14**, 2000215 (2020)。

[5] E. L. Gurevich, 《周期性表面温度调制诱导的飞秒LIPSS形成机制》, 应用表面科学**374**, 56 (2016)。

[6] M. Mastellone、M. L. Pace、M. Curcio、N. Caggiano、A. De Bonis、R. Teghil、P. Dolce、D. Mol- lica、S. Orlando、A. Santagata, 等, 《LIPSS在宽禁带半导体和电介质中的应用：评估与未来展望》, 《材料》**15**, 1378 (2022)。

[7] S. Schwarz、S. Rung、C. Esen和R. Hellmann, 《通过光束整形飞秒脉冲激光辐照在电介质材料上生成均匀的低空间频率LIPSS》, 《激光微纳工程杂志》**13**, 90 (2018)。

[8] J. Sipe、J. F. Young、J. Preston 和 H. Van Driel, 《激光诱导周期性表面结构：I. 理论》, Physical ReviewB **27**，1141（1983）。

[9] A. Blumenstein, M. E. Garcia, B. Rethfeld, P. Simon, J. Ihlemann, 和 D. S. Ivanov, 《超短单脉冲紫外激光辐照金时形成的周期性纳米脊图案》,

《纳米材料》**10**，1998（2020）。[10] P. Terekhin, O. Benhayoun, S. Weber, D. I vanov, M. Garcia, 和 B. Rethfeld, 《表面等离激元极化激元对激光能量吸收和表面结构化的影响》, 《应用表面科学》**512**，144420（2020）。[11] S. Anisimov, B Rethfeld, 《超短激光脉冲与金属相互作用理论》, P SOC PHOTO-OPT INS **3093**，192（1997）。[12] N. Singh, 《非平衡电子弛豫的双温模型：综述》, 《国际现代物理学杂志B辑》**24**，1141（2010）。[13] D. S. Ivanov 和 L. V. Zhigilei, 《短脉冲激光熔化和金属薄膜解体的原子-连续体联合建模》, 《物理评论B》**68**，064114（2003）。[14] D. S. Ivanov, T. Izgin, A. N. Maiorov, V. P. Veiko, B. Rethfeld, Y. I. Dombrovska, M. E. Garcia, I. N. Zavestovskaya, S. M. Klimentov, 和 A. V. Kabashin, 《使用原子-连续体模型对液体中超短脉冲激光烧蚀合成金属纳米颗粒进行数值研究》, 《分子》**25**，67（2019）。[15] P. N. Terekhin, J. Oltmanns, A. Blumenstein, D. S. Ivanov, F. Kleinwort, M. E. Garcia, B. Rethfeld, J. Ihlemann, 和 P. Simon, 《单脉冲激光照射金台阶边缘后形成周期性表面结构的关键因素：表面等离激元极化激元》, 《纳米光子学》**11**，359（2022）。[16] J. Bonse 和 S. Gr¨af, 《麦克斯韦遇上马兰戈尼——激光诱导周期性表面结构理论综述》, 《激光与光子学评论》, 2000215（2020）。[17] K. Yee, 《各向同性介质中涉及麦克斯韦方程组的初边值问题的数值解》, 《IEEE天线与传播汇刊》**14**，302（1966）。[18] A. Taflove 和 S. C. Hagness, 《计算电动力学》（1993）。[19] M. P. Allen 和 D. J. Tildesley, 《液体计算机模拟》（牛津大学出版社，2017）。[20] J. B. Schneider, 《时域有限差分法导论》, 统一资源定位符：http://www. Eecs. Wsu. Edu/˜ schneidj/ufdtd/（请求数据：29.11. 2012）（2010）。[21] J. A. Roden 和 S. D. Gedney, 《卷积完美匹配层（CPML）：适用于任意介质的CFS-PML高效时域有限差分实现》, 《微波与光学技术快报》**27**，334（2000）。[22] P. Ndione, S. Weber, D. Gericke, 和 B. Rethfeld, 《激发态金光学性质的自适应模型》, 《物理评论B》**109**，115148（2024）。

[23] M. Okoniewski和E. Okoniewska，再论ADE有限差分时域法中的德鲁德色散，《电子快报》**42**，1（2006）。[24] M. F. Su、I. El-Kady、D. A. Bader和S.-Y. Lin，一种采用OpenMP-MPI混合并行化的新型时域有限差分应用，载于国际并行处理会议，*2004*。*ICPP 2004*。（IEEE，2004），第373–379页。[25] D. Zhukhovitskii和V. Zhakhovsky，分子动力学模拟所得致密金蒸气中团簇的热力学与结构，《化学物理学杂志》**152**（2020）。[26] A. Otto，用受抑全反射方法在银中激发非辐射表面等离激元波，Z. Phys. A **216**，398（1968）。[27] J. Pitarke、V. Silkin、E. Chulkov和P. Echenique，表面等离激元与表面等离激元极化激元理论，《物理学进展报告》**70**，1（2006）。[28] B. Rethfeld、D. S. Ivanov、M. E. Garcia和S. I. Anisimov，超快激光烧蚀建模，J. Phys. D Appl. Phys. **50**，10.1088/1361-6463/50/19/193001（2017）。[29] E. G. Gamaly，非相对论强度下超短激光与固体相互作用的物理学，《物理学报告》**508**，91（2011）。[30] E. G. Gamaly和A. V. Rode，超短激光与物质相互作用的物理学：从声子激发到最终转变，《量子电子学进展》**37**，215（2013）。