

한 Lennard-Jones시스템의 액체-유리-결정 전이에 관한 분자동역학 연구

장현구 · 이종길* · 김순광**

성균관대학교 금속·재료공학부

*미시간 텍 대학교 금속·재료공학과

**한국과학기술연구원 재료설계연구실

A Molecular Dynamics Study on the Liquid-Glass-Crystalline Transition of a Lennard-Jones System

H.K. CHANG, J.K. LEE* and S.G. KIM**

School of Metallurgical and Materials Engineering, Sungkyunkwan University, Suwon 440-746

*Dept. of Metallurgical and Materials Engineering, Michigan Technological University, Houghton, MI 49931, USA

**Materials Design Laboratory, Korea Institute of Science and Technology, Seoul 136-791

(1998년 4월 27일 받음, 1998년 6월 1일 최종수정본 받음)

초 록 정압분자동역학 시뮬레이션에 의하여 주기경계조건을 지닌 L-J입자들로 구성된 계의 액체-유리-결정 전이를 연구하였다. 원자체적과 엔탈피는 가열 및 냉각과정에서 온도의 함수로 계산되었다. 반경분포함수로부터 유도된 Wendt-Abraham비와 단거리규칙도를 나타내는 각도분포함수를 분석하여 액체, 유리 및 결정상태를 구분하였다. 초기 fcc결정을 가열하여 얻은 액체상은 급냉시에 비정질화하나 서냉시엔 결정화하였다. 급냉으로 생긴 유리는 다시 서서히 가열하면 fcc로 결정화하였다. 자유표면을 지닌 결정은 표면에서부터 용해가 시작되어 벌크에 비하여 낮은 온도에서 녹고 냉각시에는 빠른 냉각속도에서도 결정화가 쉽게 일어나는 경향을 보였다.

Abstract By means of constant-pressure molecular dynamics simulations, we studied the liquid-glass-crystalline transition of a system composed of Lennard-Jones particles with periodic boundary conditions. Atomic volume and enthalpy were calculated as functions of temperature during heating and cooling processes. The Wendt-Abraham ratio derived from radial distribution function and the angular distribution function characterizing short range order were analyzed to distinguish between liquid, glass and crystalline states. A liquid phase resulting from a slow heating of an initial fcc crystal amorphized on fast quench, but it crystallized on slow quench. When slowly heated, the amorphous phase from fast quench crystallized into an fcc structure. A system with free surface was shown to melt from the surface inward at a lower temperature than bulk system and to have a strong tendency for crystallization even during a fast quench from a liquid state.

1. 서 론

액체의 동역학적 거동을 보여주기 위하여 고안된 분자동역학(molecular dynamics, MD) 연구는 지난 20여년간 응용^{1,2)} 유리전이^{3,5)} 결정화^{5,6)} 등의 현상을 다루기 위하여 유용한 시뮬레이션 방법으로 활용되어 왔다. 이 분자동역학은 응축계에서의 원자나 분자 운동이 시간이 지남에 따라 전개되는 양상을 알 수 있는 방법으로, 주어진 조건에서의 뉴턴운동방정식의 해를 수치적분법에 의하여 구하는 것이다. 이때의 원자간 작용에너지는 hard core,⁷⁾ soft core,⁸⁾ Lennard-Jones(L-J)^{9,10)} 또는 Gaussian core 포텐셜¹¹⁾ 등을 가정하여 각 쌍의 포텐셜의 합으로 계산된다.

종래의 원자수, N 체적, V 및 에너지, E가 일정한(NVE) 앙상블시스템과는 달리 Andersen¹²⁾은 일정압력 MD법에서 시뮬레이션 셀의 체적을 변화시킬 수 있게 고안하였고 이 방법을 Parrinello와 Rahman¹³⁾은 시뮬레이션 셀의 형상까지도 변화시킬 수 있도록 확장하였다.

본 연구는 이미 발표된 나노결정(nanocrystal)의 용융에 관한 MD연구²⁾의 연장으로 수행되었으며 칼코지나이드(chalcogenide)계 합금에서의 유리상형성에 따른 자료기록과 결정화에 따른 자료지우기^{14,15)}를 컴퓨터 시뮬레이션을 통하여 실현시키기 위하여 수행하였다. 이 MD시뮬레이션 연구에서는 액체, 유리, 결정으로의 상전이를 실현하기 위하여 역동적인 셀의 원자체적, 엔탈피, 반경분포함수(radial distribution function, RDF) 및 각도분포함수를 추적하였다. 이들 함수들의 온도의존성을 조사하여 냉각속도가 유리전이 및 결정화를 구분지을 수 있는 중요 인자임을 보였다. 또 자유표면의 존재가 용융 및 결정화에 미치는 영향을 살펴보았다.

2. 모델링 방법

이 연구에서는 모델 fcc 시스템에서 원자들이 식(1)과 같은 L-J 12-6포텐셜, $\Phi(r_{ij})$ 에 의하여 서로 작용하도록 설정하였으며 자세한 내용은 문헌²⁾에 수록되어 있다.

$$\Phi(r_{ij}) = \epsilon \{ (r_0/r_{ij})^{12} - 2 (r_0/r_{ij})^6 \} \quad (1)$$

여기서 r_{ij} 는 i 원자와 j 원자 사이의 거리 즉 $r_{ij} = |r_i - r_j|$, $\epsilon = 1194k_B$, $r_0 = 0.382nm$, k_B 는 볼츠만상수이다. 포텐셜우물의 ϵ 은 편의상 알곤의 값의 10배로 올려준 값이다.

원자들의 운동방정식을 풀기위하여 주기적 경계조건하에서 속도형식의 Verlet알고리즘¹⁶⁾을 이용하였다.

벌크(bulk) 특성을 알아보기 위하여 벌크모델에서 세가지 방향에 주기적 경계조건을 부여하였으며, 자유표면의 효과를 알아보기 위하여 자유표면모델(free surface model, FSM)²⁾에서 두가지 방향에 경계조건을 부여하였다.

계산시간을 수용할 수 있는 범위내에서 관리하기위하여 대부분의 계산은 500개의 원자로 구성된 시스템을 이용하였고 FSM의 표면용융을 보기위하여는 2300개 원자시스템을 사용하였으며, 모든 계산에서 원자간 작용거리는 fcc결정의 3번째와 4번째 인접원자거리의 중간까지로 하였는데, 그 절단거리는 $1.87r_0$ 이고, 이 때에 한 원자는 평균적으로 42개 인접원자와 상호작용하게 하였다.

MD법에 관련된 수치상의 안정성을 얻기위하여 일정한 밀도($1574kg/m^3$)의 fcc구조를 모든 시뮬레이션의 출발점으로 사용하였다. 타임스텝과 원자질량은 각각 0.77×10^{-15} 초와 $0.663 \times 10^{-26}kg$ 이었다. 연속적인 계산을 위하여 delta T만큼 온도를 변화시켰으며 각 온도에서 2000 타임스텝을 유지하였는데, 처음 500 타임스텝은 계의 안정화를 위하여 나중 1500 타임스텝은 통계자료를 계산하기위하여 사용하였다.

계의 물리적 특성을 모니터하여 반경분포함수와 각도분포함수를 결정하였다. 반경분포함수로부터 Wendt-Abraham(WA)비,¹⁷⁾ R을 구하였는데 R은 다음 식(2)로 정의된다.

$$R = g_{min}/g_{max} \quad (2)$$

여기서 g_{min} 과 g_{max} 는 각각 반경분포함수, $g(r)$ 곡선에서 첫번째 최소값과 첫번째 최대값이다. 반경분포함수, $g(r)$ 은 같은 밀도의 이상기체에서 동일한 거리상의 원자수로 표준화된 거리, r 에 있는 원자수로 정의¹⁸⁾된다. 또 각도분포함수¹⁹⁾는 최인접원자들간의 사잇각, θ 의 \cos 값의 분포를 통하여 결합방위상의 특징을 알아내는데 편리하게 활용할 수 있는 함수이다. 이때 r_i 위치에 있는 i 원자가 r_j 와 r_k 에 있는 그 최인접원자 j , k 와 사잇각 θ 를 이룬다고 하면 $\cos\theta$ 값은 다음과 같다.

$$\cos\theta = (r_{ij}^2 + r_{ik}^2 - r_{jk}^2) / (2r_i r_k) \quad (3)$$

가열 및 냉각속도를 상대적으로 비교하기 위하여 그 속도를 *slow*, *medium*, *fast*로 나누었는데 그 값들은 표 1에 기록된 바와 같다.

3. 결과 및 고찰

벌크 모델

그림 1은 가열 및 냉각시에 원자체적의 변화를 온도의 함

Table 1. The quench and heating rates

Classification	Delta T (K)*	Quench or heating rate ($10^{12}K/sec$)
<i>Slow Quench</i>	- 5	- 3.25
<i>Medium Quench</i>	-10	- 6.49
<i>Fast Quench</i>	-20	-12.99
<i>Fast Quench 2</i>	-19	-12.34
<i>Slow Heating</i>	+ 5	+ 3.25

*Temperature change/2000 time steps

수로 나타난 것이다. 원으로 표시된 곡선은 가열시의 원자체적의 증가를 나타내는 것으로 용융과정을 보여주며, 마름모로 이루어진 곡선은 급냉과정에서 점진적인 체적의 감소를 수반하는 유리전이를 보여준다.

이와 같은 유리상을 220K로부터 다시 가열하면 그림 1의 벌표마크로 표시된 곡선을 따라 원자체적이 서서히 증가하다가 400K 온도에 도달하면 오히려 감소하기 시작한다. 이 온도를 유리상의 결정화온도라 칭한다. 450K에서 결정화가 완료되면 다시 온도 증가에 따라 삼각형 마크로 보인 바와같이 체적이 서서히 증가하다가 750K에서 용융현상이 발생하면서 급격히 체적이 증가하게 된다. 재가열과정에서 결정화된 상이 본래의 fcc 결정에 비하여 더 큰 원자체적을 갖는데 이는 비정질에서 결정질로 바뀌는 과정에서는 벌크내에 많은 결함이 형성됨에 기인하는 것으로 생각된다. 이 결함은 장차 검토될 각도분포함수에서 적층결함(stacking fault)으로 분석된다. 550K로부터 이 결정을 다시 냉각시키면 십자마크의 선을 따라 체적이 서서히 감소되어 낮은 온도의 결정상으로 됨을 알 수 있다.

그리하여 우리는 가열→급냉→재가열 과정을 통하여 용융→유리전이→결정화의 구조변화를 얻을 수 있다.

용융 및 유리상태의 RDF는 각각 그림 2에 나타나 있다. 이 반경분포함수곡선에서 가로축인 원자간거리는 radial number로서 표시하였는데, 그 값이 30인 원자간 거리가 최인접원자간 거리에 해당한다. 800K에서의 액상의 RDF는 둥그스름한 두번째 피크를 갖는 대신, 100K에서의 유리상태의 RDF는 두번째 피크상에 갈라짐을 보이는 이중모드 피크(bimodal peak)로 특징을 나타낸다. 이런 현상은 MD 시뮬레이션,²⁰⁾ Monte Carlo법²¹⁾ 및 실제 비정질재료²²⁾에서 많이 관측되는 현상이다.

위의 그림 1에서와 같은 가열 및 급냉공정에 따른 엔탈피의 변화와 WA비(R)의 변화는 그림 3과 그림 4에 각각 나타내었다. 엔탈피와 WA비에 대하여서도 그림 1에서와 같은 상전이에 관한 설명이 그대로 적용된다. 그림 1, 3 및 4를 비교하여 보면 원자체적이나 엔탈피의 변화보다 WA비의 변화가 상전이 과정에서 더욱 뚜렷함을 알 수 있다.

재가열시의 결정화경향을 좀더 자세히 살펴보기위하여 360K에서 420K로 가열되는 과정에서의 RDF와 반경분포함수를 구하여 그림 5와 6에 도시하였다. 그림 5에서 알 수 있듯이 유리상태에서 이중모드를 지닌 두번째 피크는 가

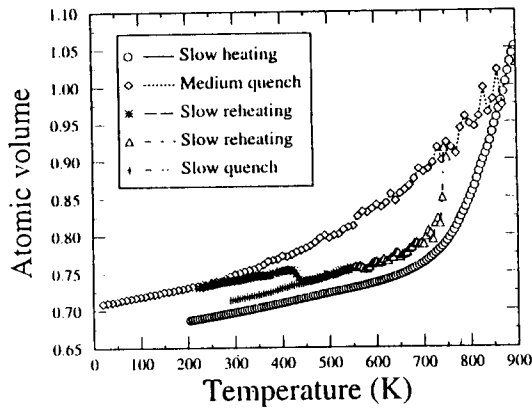


Fig. 1. Atomic volume vs temperature curves showing melting, glass transition and crystallization.

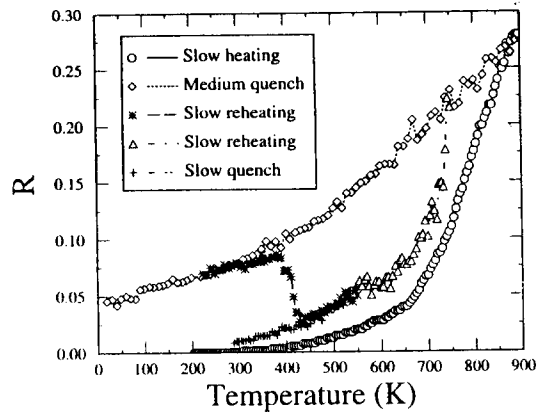


Fig. 4. The change in the Wendt-Abraham ratio as a function of temperature during melting, glass transition and crystallization.

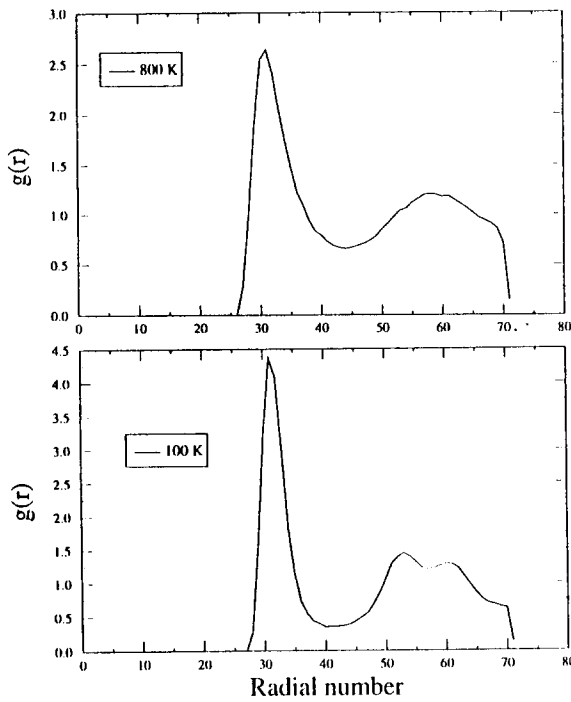


Fig. 2. Radial distribution function for a liquid phase at 800K after melting(upper curve), and glass phase at 100K after medium quench(lower curve).

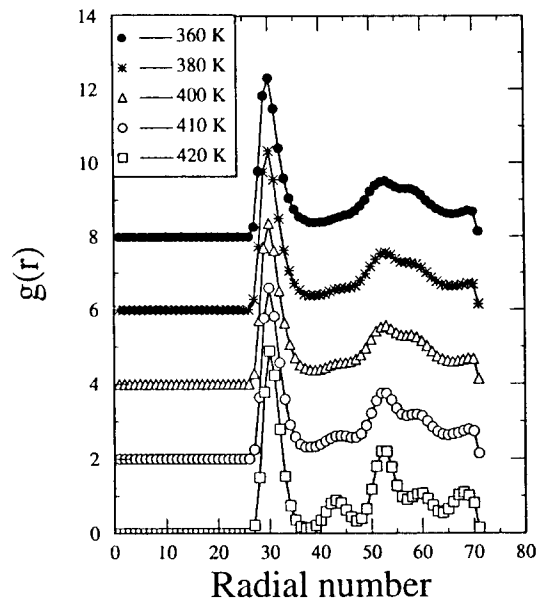


Fig. 5. The change in the radial distribution function during crystallization process.

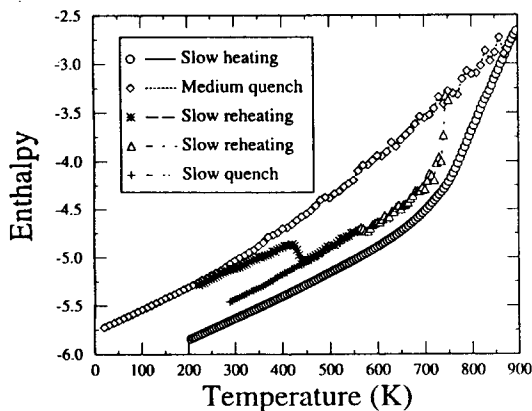


Fig. 3. Enthalpy vs temperature curves showing melting, glass transition and crystallization.

열시 결정화가 진행됨에 따라 420K에서 볼 수 있는 바와같이 세번째와 네번째 피크로 나누어지고 그 안쪽에 fcc의 두번째 피크가 나타난다.

유리상으로부터 결정화가 이루어지는 과정에서의 변화는 그림 6에서 볼 수 있는 바와같이 각도분포함수의 경우가 RDF의 경우보다 훨씬 선명하다. 각도분포함수상에서 무정형유리질은 $\cos\theta$ 값이 -1.0, -0.5 및 0.5에서 피크 분포를 보이고, fcc결정은 -1.0, -0.5, 0.0 및 0.5에서 피크를 보이는 것으로 알려져있다.^{19,23)} 따라서 그림 6의 각도 분포함수로부터 우리는 360K와 380K에서는 비정질이고, 410K와 420K에서는 fcc결정이며, 400K가 그 경계온도임을 알 수 있다.

Yonezawa²⁾는 L-J액체 알곤의 slow quench시에 일어나는 결정화에 대하여 원래의 완전한 fcc결정으로 되돌아가지 못하는 이유를 적층결함의 발생에 기인한다고 설명하였다. 승온시의 유리상의 결정화시에도 그림 6에서 420K

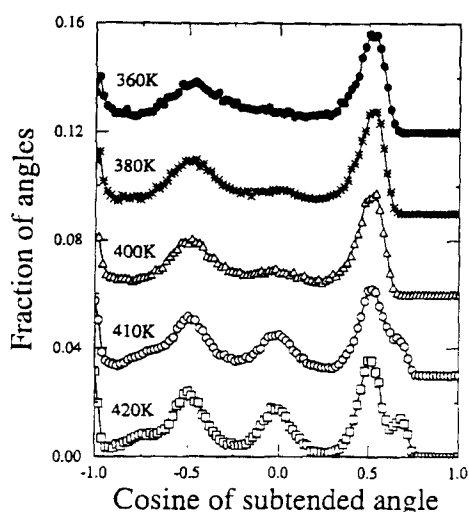


Fig. 6. The change in the angular distribution function during crystallization process.

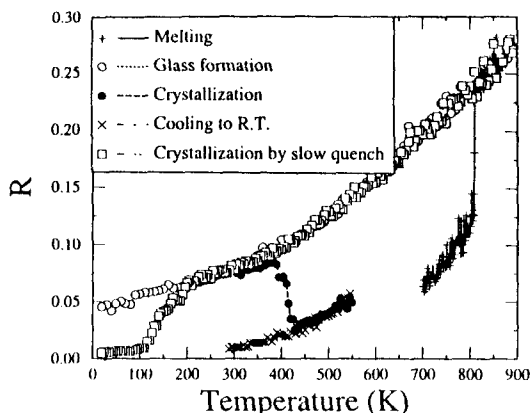


Fig. 7. The change in the Wendt-Abraham ratio during melting(+), glass transition(O) on medium quench, crystallization (□) on slow quench, and crystallization of glass phase on reheating(●).

의 각도분포함수 (정방형 곡선) 에서 볼 수 있는 \cos 값 -0.83 ($\theta = 146^\circ$) 부근에서 약한 피크가 존재함을 볼 수 있는데 이것은 hcp구조상의 특징으로 적층결함에 따른 부분적인 hcp구조의 형성에 관계된 것으로 생각된다.

이제까지의 냉각곡선의 출발점은 가열속도 $3.25 \times 10^{12} \text{K/sec}$ 로 900K까지 가열하여 얻은 액체상이었다. 출발 액상이 유리전이에 미치는 영향을 알아보기 위하여 가열속도를 1/5 느린 $0.649 \times 10^{12} \text{K/sec}$ 로 900K까지 가열하여 만든 액상을 가지고 위에서와 같은 열처리 과정을 시뮬레이션하였다. 그림 7은 이 과정에서의 WA비, R 값의 변화를 추적한 것이다. 700K로부터 가열과정에서의 R 값의 변화는 + 기호로 표시하였다. 이 가열곡선을 보면 그림 4에서의 점차적인 증가와는 달리 뚜렷한 R 값의 수직상승에 따른 용융현상을 발견할 수 있다. 900K인 액체로부터 냉각속도 $-6.49 \times 10^{12} \text{K/sec}$ (medium quench)로 냉각하면 그림 4에서와 마찬가지로 원으로 연결된 곡선을 따라 유리가 형성되고, 반면에 냉각속도 $-3.25 \times 10^{12} \text{K/sec}$ (slow quench)로 냉각시키면 정사각형으로 연결된 곡선을 따라서 R 값이 감소하다가 200K에 이르면 결정화가 시작된다. 앞의 medium

quench 냉각조건에서 형성시킨 유리상을 $3.25 \times 10^{12} \text{K/sec}$ 로 다시 가열하면 채워진 원으로 구성된 곡선을 따라 400K 부근에서 결정화가 이루어지고 이 결정상을 다시 냉각시키면 가위표 곡선을 따라 결정상의 R 값이 서서히 감소한다.

이상의 결과를 종합해 볼때 급냉시키기 전 초기액체상이 빠른 가열속도 ($3.25 \times 10^{12} \text{K/sec}$)에 의한 느린 가열속도 ($0.649 \times 10^{12} \text{K/sec}$)에 의한 간에 그 다음의 유리전이나 결정화에는 별다른 영향을 주지 않음을 알 수 있다.

자유표면 모델

우선 자유표면을 지닌 결정의 용융거동을 살펴보기 위하여 (100) 면이 46개인 원자층으로 구성된 fcc 결정 2300개 원자 시스템에 대하여 가열시의 동적인 격자운동을 시뮬레이션하였다. 그림 8은 450K에서 500K로 가열시키는 과정에서 표면층(XY 면) 원자의 움직임을 보여주는 것으로 각 원자의 격자점부근에서 fcc 구조를 그대로 유지하면서 역동적인 위치이동을 보이고 있다. 온도를 이 시스템의 용점인 $759 \text{K}^{(2)}$ 보다 1도 높은 760K에 유지하며 4000-8000타임스텝동안의 원자이동상태를 궤적으로 나타내면 그림 9

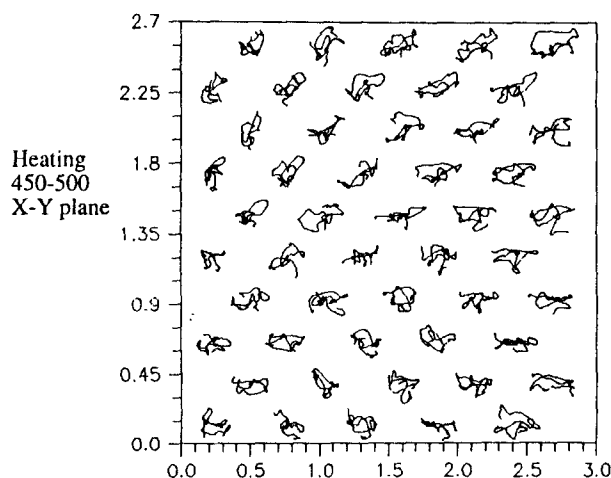


Fig. 8. The trajectory of surface atoms on the free surface (100) plane showing an fcc structure.

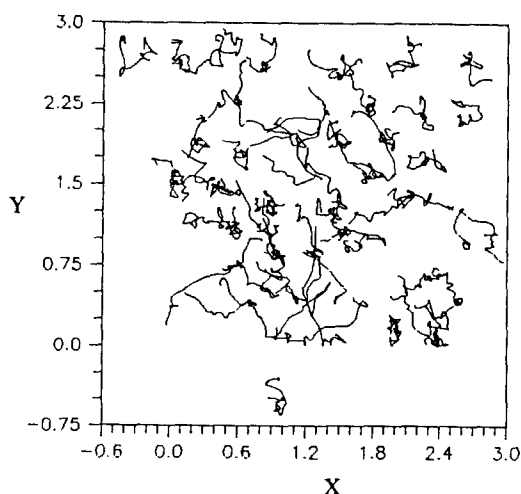


Fig. 9. The trajectory of surface atoms on the free surface (100) plane showing melting.

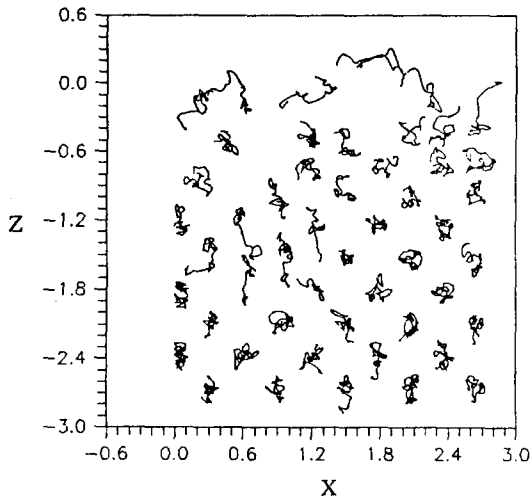


Fig. 10. The trajectory of atomic movement on the plane perpendicular to the free surface showing partial melting on the surface layer.

및 그림 10과 같다. 그림 9에서 보인 바와같이 표면층인 XY 면의 원자들은 완전히 녹아서 불규칙한 운동을 하는 액체상의 특징을 드러낸다. 반면에 표면층의 수직단면인 XZ 면의 원자이동은 그림 10에서 보인 것처럼 안으로 들어갈수록 진정되어 표면층은 완전한 액체거동을 하지만 표면으로부터 4-5개 떨어진 내부 원자층에서는 아직도 fcc 결정 구조를 유지하고 있음을 볼 수 있다. 따라서 용융거동은 표면원자층에서 시작하여 시간이 경과함에 따라 내부로 진행되어 감을 알 수 있다. 이러한 표면용융의 용이성은 이미 수행된 연구²⁾에서 자세히 분석되었으며, van der Veen²⁴⁾ 및 Broughton과 Woodcock¹⁾도 최외각 원자층으로부터 액체의 유동층이 형성되어 내부로 확장되어 가는 용융모델을 제시한 바 있다.

그림 11은 자유표면 모델에서 10개의 (100) 면으로 구성된 500개 원자 시스템 (이 시스템의 용점은 660K임²⁾) 을 700K까지 가열시켜 액체상을 얻은 후 네가지 급냉속도 하에서 냉각시킬 때 얻어진 WA 비의 변화곡선이다. 냉각속도가 제일 빠른 *fast quench*에서 유리전이기가 나타나고 그보다 느린 *medium quench*나 *slow quench*에서 결정화가 일어난다. 냉각속도의 감소에 따라 결정화는 높은 온도에서 시

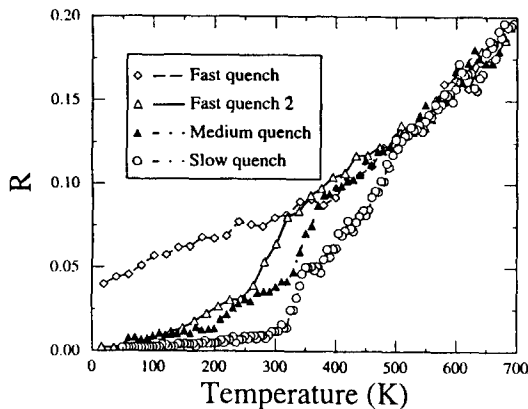


Fig. 11. The change in the Wendt-Abraham ratio during various quenching processes.

작된다.

표 1에서 보인바와 같이 *fast quench 2* ($\Delta T = -19K$) 는 $-12.34 \times 10^{12} K/sec$ 로 냉각시킨 경우로서 이 때에는 결정화가 일어난다. 그러므로 유리전이나 결정화전이나를 결정하는 임계냉각속도는 *fast quench* ($\Delta T = -20K$, 냉각속도 = $12.99 \times 10^{12} K/sec$) 와 *fast quench 2* ($\Delta T = -19K$, 냉각속도 = $12.34 \times 10^{12} K/sec$) 사이에 드는 것으로 판단할 수 있으며 그 값은 중간치를 택하면 $12.7 \times 10^{12} K/sec$ 로 계산된다.

순수한 액체금속은 피코세컨드 (picosecond) 의 펄스 레저에 의한 냉각속도인 $10^{10} - 10^{12} K/sec$ 에서도 유리상태로 켈되지 않는다고 알려져 있다.²⁵⁾ 그러나 천이금속의 박막은 고진공중에서 액체헤름으로 냉각시킨 기판상에서 응축될 때 유리질 박막을 형성하며 Co의 경우 38K와 같은 낮은 온도에서도 비정질→결정질 전이를 보인다.²⁶⁾ 반면에 금속합금은 $10^4 - 10^6 K/sec$ 와 같은 관례적인 냉각속도하에서도 유리를 형성하며 상변화 광디스크에 사용하는 칼코지나이드계 합금의 임계냉각속도는 일례로 InSbTe합금의 경우 $5 \times 10^9 K/sec$ 정도로 알려져 있다.²⁷⁾ Watanabe와 Tsumuraya²⁸⁾는 Na의 장거리 진동 포텐셜을 사용한 결정화 및 유리전이에 관한 MD연구에서 임계냉각속도가 $8 \times 10^{11} K/sec$ 임을 알아내었고, Nose와 Yonezawa²⁹⁾는 알곤의 거동을 만족시키는 L-J포텐셜을 사용하여 용융 및 결정화에 관한 MD 시뮬레이션을 한 결과 임계냉각속도가 $4 \times 10^{11} K/sec$ 에서 $4 \times 10^{10} K/sec$ 사이에 든다고 주장하였다. 한편 Ti-Al합금에 관한 비정질화 연구³⁰⁾에서는 L-J포텐셜을 사용한 경우 여러가지 조성 범위에서 대략 $10^{15} K/sec$ 의 임계냉각속도를 보였다. 임계냉각속도는 이상에서 살펴본 바와같이 포텐셜함수에 따라 민감하게 변하는 값으로 이 연구에서 얻은 $12.7 \times 10^{12} K/sec$ 는 이제까지 연구된 여러가지 자료들 범위안에 드는 값임을 알 수 있다.

급냉속도에 따른 R값의 감소곡선은 $R > 0.13$ 인 액체상에서는 비슷한 거동을 보이지만 고체상에서의 연장곡선은 임계냉각속도보다 빠른 냉각속도에서의 유리전이까지 (glass transition branch) 와 그보다 느린 냉각속도에서의 결정화까지 (crystallization branch) 로 나누어짐을 볼 수 있다. 또 동일한 *medium quench*의 경우 벌크모델에서는 유리전이(그림 4 및 그림 7 참조)가 발생하는 반면 자유표면모델에서는 결정전이(그림 11 참조)가 일어남을 알 수 있다.

그림 12는 액상으로부터 급냉시 형성된 유리상과 결정상의 각도분포곡선을 보인 것이다. 사잇각의 cos 값의 함수로 각도 분포의 분율을 액상, 유리상 및 결정상에 대하여 각각 나타내었다. 액상은 cos값 0.5 근처에서의 단일 피크를 보인 반면 유리상은 0.5 근처에서 이중모드피크, -0.5와 -1.0에서 낮은 피크를 보이고 있다. 이에 대조적으로 결정상은 cos 값이 0.5, 0.0, -0.5, -1.0 위치에 뚜렷한 피크를 보여 fcc 구조임을 확인할 수 있다.

그림 13은 느린속도에서의 가열 및 냉각처리과정중 500개 원자로 구성된 벌크모델과 자유표면 모델에서 가열, 냉

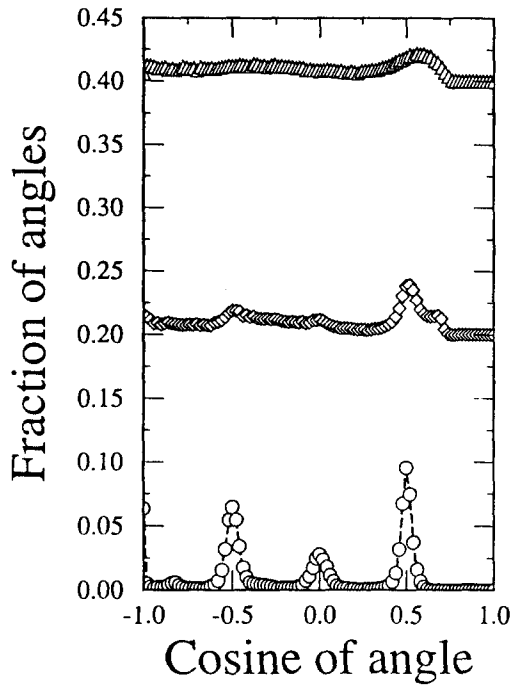


Fig. 12. Angular distribution functions for liquid, glass and crystalline phases. Δ ; slow heated liquid, \diamond ; fast quenched amorphous solid, \circ ; medium quenched crystalline solid.

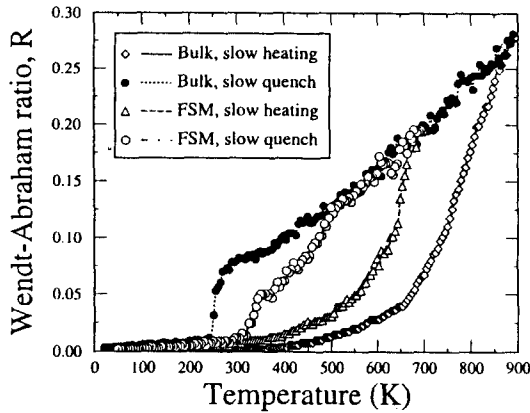


Fig. 13. The change in the Wendt-Abraham ratio during slow heating and slow quench for the both bulk and free surface model.

각시의 WA 비 값의 변화를 비교한 것이다. 가열시에 벌크의 용융(마름모곡선) 보다 자유표면의 용융(삼각형)이 훨씬 낮은 온도에서 진행되고 대조적으로 냉각시에는 자유표면에서의 결정화가 벌크의 경우보다 더 높은 온도에서 용이하게 발생함을 알 수 있다.

4. 결 론

한 L-J계의 액체-유리-결정전이에 관한 분자동역학 연구의 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

- 1) 원자체적, 엔탈피 및 환경분포함수의 온도에 따른 변화는 용융, 유리전이 및 결정화현상을 잘 나타내었다.
- 2) 온도에 따른 각도분포함수의 변화를 추적하면 유리상으로부터 결정상으로의 전이과정을 판별할 수 있는데, 이 L-J계의 결정화온도는 벌크모델의 경우 400K이었다.

3) Wendt-Abraham비를 모니터하여 유리전이와 결정 전이를 경계짓는 임계냉각속도를 결정할 수 있는데, 이 계의 자유표면모델의 경우 그 값은 $12.7 \times 10^{12} \text{K/sec}$ 이었다.

4) 자유표면의 존재는 용융 및 결정화를 용이하게 하였다. 따라서 벌크시스템에 비하여 자유표면모델은 낮은 용점과 큰 임계냉각속도를 보였다.

참 고 문 헌

1. J.Q. Broughton and L.V. Woodcock, *J. Phys. C : Solid State Phys.* **11**, 2743 (1978).
2. J.K. Lee, B.K. Cheong, W.M. Kim and S.G. Kim, in *Chemistry and Physics of Nanostructures and Related Non-equilibrium Materials* (eds. E. Ma et al.), P. 105, TMS (1997).
3. F. Yonezawa, *Solid State Physics.* **45**, eds. H. Ehrenreich and D. Turnbull, P. 179, Academic Press, New York (1991).
4. J.H.R. Clarke, *J. Chem. Soc. Faraday Trans. II* **75**, 1371 (1979).
5. M.J. Mandell, J.P. McTague and A. Rahman, *J. Chem. Phys.* **64**, 3699 (1976).
6. C.S. Hsu and A. Rahman, *J. Chem. Phys.* **71**, 4974 (1979).
7. B.J. Alder and T.E. Wainwright, *Phys. Rev.* **A1**, 1 (1970).
8. J.N. Cape, J.L. Finney and L.V. Woodcock, *J. Chem. Phys.* **75**, 2366 (1981).
9. W.D. Kristensen, *J. Non-Cryst. Solids* **21**, 303 (1976).
10. H. Jonsson and H.C. Andersen, *Phys. Rev. Lett.* **60**, 2295 (1988).
11. F.H. Stillinger and T.A. Weber, *J. Chem. Phys.* **68**, 3837 (1978).
12. H.C. Andersen, *J. Chem. Phys.* **72**, 2384 (1980).
13. M. Parrinello and A. Rahman, *Phys. Rev.* **45**, 1196 (1980).
14. K. A. Rubin, *MRS Symp. Proc.* **230**, 239 (1992).
15. N. Yamada, E. Ohno, K. Nishiuchi and N. Akahira, *J. Appl. Phys.* **69**, 2849 (1991).
16. W.C. Swope, H.C. Andersen, P.H. Berens and K. R. Wilson, *J. Chem. Phys.* **76**, 637 (1982).
17. H.R. Wendt and F.F. Abraham, *Phys. Rev. Lett.* **41** (18), 1244 (1978).
18. M.P. Allen and D.J. Tildesley, *Computer Simulation of Liquids*, P. 71, Oxford University Press, New York (1987).
19. A.D.J. Haymet, *Chem. Phys. Lett.* **107**, 77 (1984).
20. M. Kimura and F. Yonezawa, in *Topological Disorder in Condensed Matter*. (eds. F. Yonezawa and T. Ninomiya), Springer Series in Solid-State Science

- 46 (1983), P. 80.
21. S.K. Lai, S. Wang and K.P. Wang, *J. Chem. Phys.* **87**, 599 (1987).
22. G.S. Cargill III, *Solid State Physics* **30**, P. 227, Academic Press (1975). (eds. H. Ehrenreich, F. Seitz and D. Turnbull)
23. J. Hafner, *J. Phys. F: Met. Phys.* **12**, L205 (1982).
24. J.F. van der Veen, in *Phase Transitions in Surface Films 2*, eds. H. Taub, G. Torzo, H.J. Lauter and S. C. Fain, Jr, Vol. **267**, P. 289, Plenum Press, New York (1991).
25. Y.T. Cheng and W.L. Johnson, *Science* **235**, 997 (1987).
26. M.R. Bennett and J.G. Wright, *Phys. Stat. Sol. (a)* **13**, 135 (1972).
27. H. Minemura, H. Andoh, N. Tsuboi, Y. Maeda and Y. Sato, *J. Appl. Phys.* **67**, 2731 (1990).
28. M. S. Watanabe and K. Tsumuraya, *J. Chem. Phys.* **87**, 4891 (1987).
29. S. Nose and F. Yonezawa, *J. Chem. Phys.* **84**, 1803 (1986).
30. M. Shimono and H. Onodera, in *Modelling and Simulation for Materials Design (CMCMD '96)* eds. S. Nishijima and H. Onodera, P. 215, NRIM (1996).