

Structural Properties and Diffusion Behaviors of Liquid Silica at Finite Temperatures

Byoung Min Lee[†]

Department of Materials Engineering, Korea University of Technology and Education, Cheonan, 330-708, Korea

(Received May 23, 2007; Accepted June 21, 2007)

특정 온도에서 용융 실리카의 확산거동 및 구조분석

이병민[†]

한국기술교육대학교 신소재공학과

(2007년 5월 23일 접수; 2007년 6월 21일 승인)

ABSTRACT

The structural properties of SiO₂ liquid at finite temperatures have been investigated by molecular dynamics (MD) simulations utilizing the Tersoff interatomic potential. During cooling process, the SiO₂ liquid structure quenched with a cooling rate of 1.0×10^{11} K/sec shows the traditional properties observed in the experiments. The coordination defects of system decrease with decreasing temperature up to 17%. The SiO₂ glass quenched up to 1600 K contains defects consisting of the fivefold coordination of Si, and the threefold coordination of O atoms. The calculated diffusion coefficients which are calculated by monitoring the mean-square displacement of atoms drop to almost zero below 3000 K ($< 10^{-6}$ cm²/sec) but has a fluctuations at low temperature. The structure properties of SiO₂ liquid shows a significant dependence on the temperature during cooling process. Bond-angle distribution at around 120° originate from the O and Si atoms consisting of the over-coordinated O atoms.

Key words : Molecular dynamics, SiO₂, Structural properties

1. 서 론

비정질 SiO₂와 Si는 전자 디바이스 응용에 널리 응용이 되고 있는 중요한 재료로 그 기술적인 중요성으로 인하여 널리 연구가 되어오고 있다.^{1,2)} 비정질 SiO₂의 구조는 X-ray와 중성자 회절을 이용하여 유추되어 왔으며, 상온에서 Si 원자 주위에 4배위를 가지는 O 원자로 구성된 AX₄ tetrahedral 단위 구조로 구성된 랜덤한 3차원 네트워크 구조를 가지고 있는 것으로 일반적으로 알려져 왔다. 이론에 바탕을 둔 연구는 복잡한 유리 구조 때문에 주로 시뮬레이션을 이용한 연구에 집중이 되어 왔으며, 유리의 이러한 구조적 상호관계를 성공적으로 예측하였다.^{3,4)}

최근, 비정질 SiO₂는 나노튜브와 나노비드 등에 응용을 하기 위하여 나노미터 크기의 다양한 형태로 제조되고 있다.^{5,6)} 이러한 경향에 맞추어 나노 단위로 계산이 가능한 분자동역학(MD) 시뮬레이션 방법이 이러한 재료의 구조적동역학적인 특성을 분석하기 위하여 널리 응용이 되어 오고 있다. 비정질 SiO₂를 연구하기 위하여, 두 원자 간의 쿨롱상호작용에 기초를 둔 two-body 포텐셜을 이용한

연구가 Tsuneyuki 등의 연구자에 의하여 보고되어 결정질 SiO₂의 열유기 상변화와 그 구조적인 특성에 대한 연구에 응용이 되었다.⁷⁾ 그러나 최근 여러 연구에 의하면, SiO₂의 구조를 정확히 기술하기 위해서는 다원자간의 상호작용을 고려한 many-body 포텐셜에 근거한 MD 연구가 필요함을 시사하고 있다. 이에 따라 two-body와 three-body 포텐셜을 이용한 연구모델이 제시되었으며, 이들 결과는 실험 결과와 매우 잘 일치하는 비정질 SiO₂의 특성을 나타내었다.⁸⁻¹⁰⁾

Si의 경우, 최근 10년 동안 다양한 포텐셜을 이용하여 MD 시뮬레이션 방법을 이용하여 연구가 되어 왔으며, Si의 구조적동역학적 특성 및 핵생성 과정 등이 원자적 수준에서 실험에서 알 수 없는 현상들을 제시하기 위하여 활발히 연구 중에 있다.^{2,11,12)} 근래에는 MD 시뮬레이션 방법을 이용하여 엑시머 레이저 법에 의해 아닐링 된 박막 트랜지스터 실리콘의 핵생성 및 결정 성장 연구가 보고되고 있다. 이 연구의 경우, 박막 트랜지스터의 MD 시뮬레이션을 위하여 Si와 SiO₂의 두 이종 원자를 하나의 포텐셜을 이용하여 계산이 가능하도록 설계되었으며, 특히, Byoung-Min에 의해 개발된 자연 냉각 시스템을 이용하고 있는 것이 특징이다.¹³⁻¹⁶⁾ 이처럼, 동일한 many-body 포텐셜을 이용하여 대용량의 Si-O 시스템의 연구는 전자 디바이스의 기술적인 중요성에도 불구하고 그 연구가 미비

[†]Corresponding author : Byoung Min Lee

E-mail : bmlee@kut.ac.kr

Tel : +82-41-560-1327 Fax : +82-41-560-1360

한 상태이다.

따라서, 본 연구에서는 새로이 제시된 Tersoff 포텐셜 파라미터를 이용하여 용액 SiO₂와 비정질 SiO₂를 제조하여, 특성의 온도에서 Si와 O 원자의 확산 거동과 구조적 변화에 대한 영향을 조사하기 위하여 MD 시뮬레이션을 수행하였으며, 그 결과에 대해서 보고한다.

2. 계산 방법

2.1. 용액 및 비정질 SiO₂의 제조

본 계산에서는 2.42 g/cm³의 밀도를 가지는 alpha-quartz 구조를 이용하여 44.0×40.6×44.2 Å³의 크기를 가지도록 MD cell을 작성하였다. MD 시뮬레이션은 일정한 원자 수, 일정한 부피와 일정한 온도(NVT ensemble)의 조건하에서 x, y, z 방향으로 주기경계조건을 적용하여 수행되었다. 원자들 사이에 작용하는 힘은 각각 원자의 위치에 대해서 포텐셜 에너지를 미분함으로써 계산하였다. 용액 및 비정질 SiO₂의 온도에 따른 거동은 Tersoff에 의해 제시된 고전적인 경험 포텐셜을 이용하여 분석을 하였다. Tersoff 포텐셜이 비록 작은 MD cell의 크기로 인하여 재료의 용융을 촉진시키는 장파장의 포논의 영향을 배제함으로써 원자들의 충분한 유동(fluctuation)을 고려하지 않아 Si와 SiO₂에 대해서 높은 융점을 유발한다. 그러나 다양한 시스템의 구조적동역학적 특성을 매우 잘 재현하고 있다.²⁾ 각 원자의 궤적은 다음의 Langevin 방정식을 이용하여 결정되었다.

$$m\ddot{r}_i(t) = F_i(t) = m\gamma\dot{r}_i(t) + R_i(t), \quad (1)$$

여기서 m 은 원자의 질량, $r_i(t)$ 는 시간 t 에서 i 번째 원자의 위치 벡터, $F_i(t)$ 는 원자의 상호작용 힘, γ 는 마찰력, 그리고, $R_i(t)$ 는 고려하고 있는 시스템의 온도를 제어하기 위한 랜덤한 힘을 의미한다. 본 계산에서는 van Gunsteren과 Berendsen에 의해서 제안된 시스템이 수치 적분을 위해 적용되었다.¹⁷⁾ 수치 적분을 위해 사용된 time step은 0.5 fs로, 마찰력은 5.0 ps⁻¹로 설정하였다. MD cell 내의 원자의 개수는 총 5760개이며, 이 중에서 Si가 1920개, O가 3840개의 원자가 각각 함유되어 있다. 비정질 SiO₂를 제조하기 위하여, alpha-quartz 구조를 가지는 MD cell을 5000 K로 설정된 thermal bath에 넣어 250 ps 동안 유지하여 용액 SiO₂를 우선 제조하였으며, 제조된 용액 SiO₂의 온도에 따른 구조 변화를 조사하기 위해서 1.0×10¹¹ K/sec의 냉각 속도로 냉각을 하여 비정질 SiO₂를 제조하였다.

2.2. 확산 계수 및 구조 분석

총 SiO₂ 시스템의 동계분포함수(RDF)는 각각 원자에 대한 RDF를 식 (2)로부터 계산을 하여 식 (3)을 이용하여 계산이 되었다.

$$\langle g_{ij}(r) \rangle \Delta r = 4\pi r^2 \Delta r \rho c_j g_{ij}(r), \quad (2)$$

$$g(r) = \sum_{ij} c_i c_j g_{ij}(r), \quad (3)$$

여기서 $\langle \dots \rangle$ 는 ensemble 평균을 나타내며, ρ 는 전체 수밀도, $c_j = N_j/N$ 은 j 종의 농도이다. 각각 원자에 대한 RDF의 첫 번째 최소 위치(r_{min})로부터 배위수 결합은 $|r_j - r_i| < r_{min}$ 의 관계를 가지는 j 원자의 수에 대해서 i 원자의 배위수를 산출하여 계산되었다. r_{min} 은 고려되는 각각의 온도에 대해서 계산되었다. 원자의 결합각 분포는 중앙에 위치한 원자와 RDF의 첫 번째 최소 위치내의 거리에 위치한 두 이웃 원자 사이의 각을 이용하여 계산하였다. 각각의 분포는 80 ps 동안에 선택된 160개의 서로 다른 원자 배열 분포를 가지는 시스템에 대하여 평균을 하였다. 냉각 과정동안 온도에 따른 원자의 이동도는 아래와 같이 정의되는 평균2승변위법을 이용하여 계산을 하였다.

$$R^2(t) = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N |r_i(t) - r_i(0)|^2 \quad (4)$$

$$\sim 6Dt + \text{const} \rightarrow \infty$$

열평형 상태에서 $R_2(t)$ 와 시간 t 의 함수로 얻어지는 기울기는 $D = \lim_{t \rightarrow \infty} R^2(t)/6t$ 로 정의되는 확산 계수에 비례한다. 냉각 과정에 따른 SiO₂의 구조적 특성 변화 및 확산 거동은 냉각 과정동안 특성의 온도에서 system의 원자 배열을 발체하여 ensemble을 평균함으로써 수행되었다.

3. 결과 및 고찰

온도 및 냉각 과정에 따른 SiO₂의 구조적 특성 변화를 고려하기 위해서, 계의 유리 전이 온도를 Si와 O 원자 각각에 대한 확산계수 결과를 이용하여 조사하였다. Fig. 1에 평균2승변위법에 의해 계산된 원자들의 변위를 시간의 함수로 보인다. 냉각과정동안 원자들의 평균2승변위의 기울기로부터 산출된 Si와 O 원자의 확산계수가 약 3000 K 정도에서 거의 변화가 없는 것을 Fig. 2의 결과로 알 수 있다. 3000 K 이상의 온도에서 확산계수의 가시적인

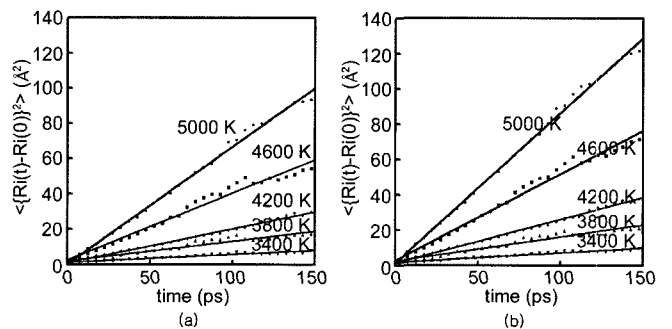


Fig. 1. Time dependence of the mean-square displacement for (a) Si and (b) O atoms with temperatures. The linear fits to the time behavior are shown by solid line.

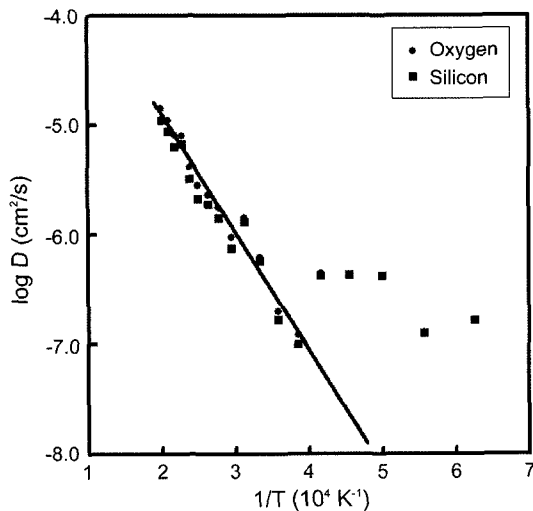


Fig. 2. Coefficients of self-diffusion for Si and O atoms vs temperature during cooling process.

감소는 계가 아직 용액 상태로서 원자들의 움직임이 매우 활발함을 의미한다. 3000 K 이하의 온도에서는 확산 계수는 10^{-6} cm²/sec보다 작은 값을 나타내었으며, 비록 작은 요동은 관찰이 되었으나, 그 변화가 매우 미비하였다. 5000 K에서 용액 SiO₂의 확산 계수는 O 원자에 대해서 1.4×10^{-5} cm²/sec의 값을, 그리고 Si 원자에 대해서는 1.1×10^{-5} cm²/sec의 값을 각각 나타내었다. 이 값은 3500 K에서 용액 SiO₂에 대해서 제일원리 MD계산에 의해서 산출된 결과인 $(9 \pm 2) \times 10^{-6}$ cm²/sec(O atom)과 $(5 \pm 1) \times 10^{-6}$ cm²/sec(Si atom)와 필적할 만하다.¹⁸⁾

확산계수의 온도에 따른 변화로부터 1.0×10^{11} K/sec의 냉각 속도로 냉각된 계에 대해서 SiO₂의 구조적 변화가 3000 K 이하의 온도에서 변화되리라 사료된다. 그러므로 냉각동안 시스템의 원자 배열을 5000 K(alpha-quartz를 초기 용융한 온도), 3600 K(확산 계수의 수치 변화가 거의 없어지는 3000 K 이상의 온도), 2400 K(3000 K 이하의 온도)와 1600 K(원자들의 확산이 거의 일어나지 않을 것으로 사료되는 온도)에 대해서 발췌하여 분석을 하였다.

우선 SiO₂의 단거리 규칙도와 특정 온도에서 온도의 영향을 조사하기 위해서, RDF를 계산하였으며, 그 결과가 Fig. 3에 보인다. 처음 3개의 peak는 각각 Si-O, O-O, Si-Si의 결합 거리에 대응된다. 위의 결과로부터 원자 상호간의 결합 거리가 온도에 매우 의존하여 변함을 알 수 있다. 온도에 따른 각각 peak의 높이와 첫 번째 RDF의 최소 위치의 변화가 우세하였으며, 특히 첫 번째 최인접 원자의 peak에 대해서 온도에 다른 변화가 심하게 관찰되었다. 5000 K에서 용융된 용액 SiO₂의 경우는 계 내에 결합을 생산하면서 Si-O 결합을 끊고 확산이 일어남으로 넓은 Si-O 결합거리 분포를 나타내었다. Si-O 결합에 의한 network 구조를 통하여 간접적으로 결합된 다른 원자들

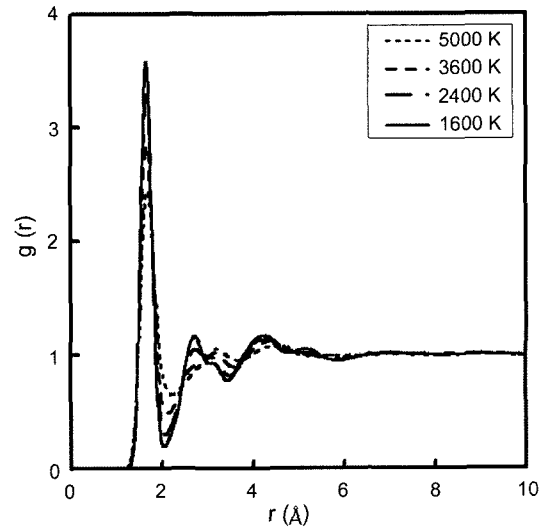


Fig. 3. Radial distribution functions for SiO₂ liquid and glass at finite temperatures.

간의 결합거리 분포도 또한 넓은 분포를 나타내었으며, 온도가 감소함에 따라서 Si-Si 결합거리는 더 작은 값으로 이동을 하였다. 특히, 2400 K 이하의 온도에서는 O-O의 결합 거리에 대응되는 두 번째 peak이 나타나기 시작하였다. 특정 온도에서 SiO₂의 Si-Si, O-O, Si-O에 대한 결합거리의 결과를 Table 1에 보인다.

모든 Si 원자는 정확히 4배위, 그리고 모든 O 원자는 2배위를 한다고 가정하여 특정 온도에서 RDF의 첫 번째 peak의 최소위치 내에 존재하는 원자 수를 산출하여 Si와 O 원자에 대한 배위수 결합을 분석하였으며, 그 결과를 Fig. 4에 보인다. 급격한 배위수 결합의 감소가 3000 K 이하에서 관찰되었다. 이는 3000 K 이하에서는 Fig. 2에서 보이는 것처럼 원자들의 장거리 확산이 감소하나, 시스템 내의 상당한 열에너지로 인하여 국부적인 원자의 재배치가 계속해서 일어난기 때문이다.⁸⁾ 배위수 결합은 온도가 감소함에 따라서 감소하는 일반적으로 예측 가능한 온도 의존성을 나타내었다. Fig. 4로부터 알 수 있듯이 전체 시스템의 배위수 결합의 감소는 주로 산소 원자의 배위수 결합의 감소에 기인하며, Si 원자의 배위수 결합감소는 3000 K 이하의 온도에서는 미비함을 알 수 있다. 온도 감소에 따른 배위수 결합의 지속적인 감소는 SiO₂의 network 구조의 규칙도가 증가함을 나타낸다. 300 K에서 4배위와

Table 1. Simulation Results for the Bond Lengths of SiO₂ Quenched with a Cooling Rate of 1×10^{11} K/sec at Finite Temperatures. The Unit of Bond Length is Å

	5000 K	3600 K	2400 K	1600 K
Si-Si	3.2	3.18	3.16	3.15
O-O	2.67	2.63	2.68	2.68
Si-O	1.67	1.66	1.65	1.65

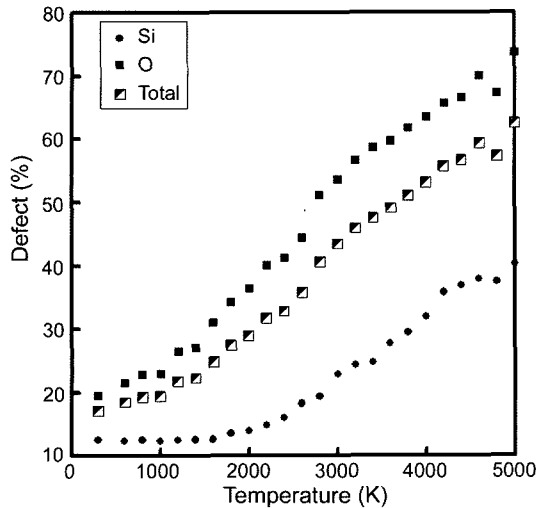


Fig. 4. The coordination defect of systems as a function of temperature during cooling process.

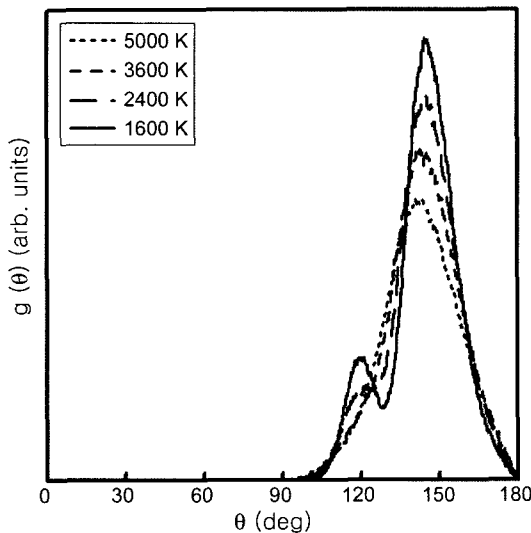


Fig. 5. Si-O-Si bond-angle distributions of SiO₂ at finite temperatures. The cutoff distances to characterize each bond are set at the first minimum position in partial radial distribution function at each temperature.

2배위를 하지 않은 Si와 O 원자는 약 17.1%로 나타났다.

특정 온도에서의 용액 및 비정질 SiO₂의 network 구조의 변화는 결합각 분포 결과를 이용하여 조사되었으며, 그 결과를 Fig. 5에 보인다. 온도가 감소함에 따라서 높은 온도에서 넓은 분포를 나타내는 결합각은 점점 그 폭이 좁아졌으며, peak의 높이도 더욱 높아졌다. 이것은 SiO₂의 tetrahedral 구조가 높은 온도에서는 매우 왜곡되어 있으며, 이 결과는 통계분포함수에서 첫 번째 최인접 원자와 관련된 peak의 높은 온도에서 넓은 영역의 분포를 나타낸 결과와 매우 잘 일치한다. 용액과 비정질 SiO₂의 이 같은 결과는 모서리를 공유하는 tetrahedral 단위 구조

Table 2. Simulation Results for the Bond-angles of SiO₂ at Finite Temperatures. The Unit of Bond Length is Degree

	5000 K	3600 K	2400 K	1600 K
Si-Si-Si	59.75, 94.0	59.25, 98.0	59.0, 98.0	59.0, 98.0
Si-Si-O	19.0, 97.0	18.5, 103.25	17.5, 103.5	16.75, 104.0
Si-O-Si	143.0	144.75	145.0	145.25
O-O-O	58.75	58.75	60.0	59.25
O-O-Si	46.25	45.0	43.5	42.5
O-Si-O	102.5	105.0	108.75	108.75

사이의 가교 결합으로부터 유래되는 것으로 고온과 저온에서 넓은 분포의 Si-O-Si 결합각 분포를 가지도록 한다. 따라서 이 Si-O-Si의 결합각 분포의 형태는 용액과 비정질 SiO₂의 불균일성을 결정하는 직접적인 인자이다. Fig. 5에 보이는 것처럼 이 분포의 peak는 각각의 온도에서 143~145° 영역에서 관찰이 되었으며, 온도가 감소됨에 따라 peak의 위치가 더 큰 각도로 전이되는 것이 관찰되었다. 본 계산에서 얻어진 결과는 Mozzi 등이 310 K에서 X-ray 회절을 이용하여 결정한 비정질 유리의 144°의 Si-O-Si 결합각과 매우 잘 일치하고 있음을 알 수 있다.¹⁹⁾ 그러나 Table 1에 기술된 Si-Si의 결합 길이는 실험 결과인 3.12 Å보다 다소 긴 값이 얻어졌으며, 이 결과가 실험 결과보다 좀 더 넓은 Si-O-Si 결합각 분포를 부여한 것으로 판단된다. 냉각이 진행됨에 따라서 큰 결합각 분포의 변화를 나타내었으며, Table 2에 MD simulation을 이용하여 얻어진 여러 종류의 이중원자들 간의 결합각 분포 결과를 보인다. Table 2에 보이는 것처럼 각 이중원자들 간의 결합각의 주 peak의 위치가 온도 감소와 함께 더 큰 각도로 이동함을 알 수 있다.

3000 K 이하의 온도에서 Si-O-Si의 결합각 분포가 분리되어 120° 부근에서 새로운 peak가 생성되는 것을 알 수 있다. 그 원인을 조사하기 위해서 1600 K까지 냉각된 비정질 SiO₂의 원자 구조를 조사하였으며, 그 결과를 Fig. 6과 Table 3에 보인다. Fig. 6과 Table 3은 관찰된 Si와 O 원자에 대해서 배위수 결합을 가지는 구조를 나타낸다. 낮은 온도에서 이러한 결합각 분포의 분리는 Si와 O 원자의 배위수 결합에 의해 생성되는 것을 Table 3의 결과로부터 유추할 수 있다. Si-O-Si 결합각 분포에서 120° 부근의 peak는 3배위와 5배위를 하고 있는 Si와 O 원자들에 의해서 생성된다. 이렇게 과배위한 O와 저배위한 Si 원자들은 삼각형 구조를 서로 이루고 있음을 알 수 있다. 이 삼각형 구조는 Table 3에 보이는 것처럼 O 원자를 중심으로 하여 약 60°의 결합각을 가지는 3개의 Si 원자가 둘러싸고 있는 구조를 하고 있으며, 본 SiO₂ 시뮬레이션 모델의 주 결합구조이다. 삼각형 구조의 또 다른 특성 중에 하나는 Si-Si 원자간의 거리가 RDF에 의해 관찰된 거리보다 더 짧다는 것이다.

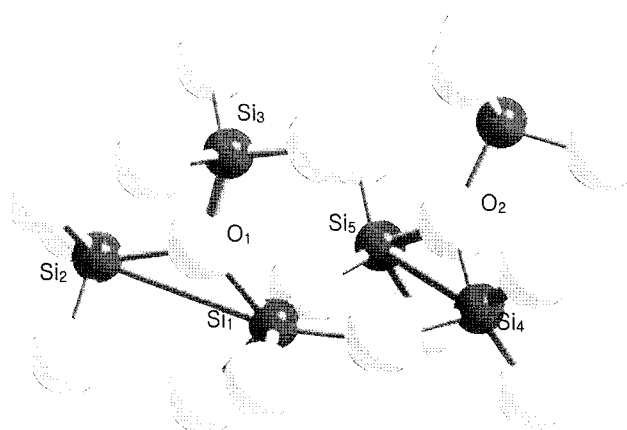


Fig. 6. Atomic configuration of the obtained coordination defect in SiO₂ glass quenched with a cooling rate of 1×10^{11} K/sec at 1600 K.

Table 3. The Bond-angles and Bond Lengths of the Obtained Coordination Defect Structure in Fig. 6

Bond-angle (deg.)		Bond length (Å)	
Si ₁ -Si ₂ -Si ₃	63.7	Si ₁ -Si ₃	3.07
Si ₂ -Si ₃ -Si ₁	57.9	Si ₂ -Si ₁	2.90
Si ₃ -Si ₁ -Si ₂	58.3	Si ₃ -Si ₂	2.91
Si ₁ -Si ₄ -Si ₅	64.6	Si ₁ -Si ₅	3.23
Si ₄ -Si ₅ -Si ₁	61.8	Si ₄ -Si ₁	3.15
Si ₅ -Si ₁ -Si ₄	53.6	Si ₅ -Si ₄	2.88
Si ₁ -Si ₂ -O ₁	32.4	Si ₁ -O ₁	1.72
Si ₄ -Si ₅ -O ₂	32.8	Si ₄ -O ₂	1.70
Si ₁ -O ₁ -Si ₂	114.9		
Si ₁ -O ₁ -O ₃	128.1		
Si ₂ -O ₁ -Si ₃	116.8		

4. 결 론

Si-O 시스템을 위해 새로이 개발된 Tersoff 포텐셜 파라미터를 이용하여 특정 온도에서 SiO₂의 확산 거동 및 구조 분석에 대한 분자 동역학 시뮬레이션 방법을 이용하여 수행하였다. 냉각 과정에 따른 특정 온도에서 용액 및 비정질 SiO₂의 확산 거동 및 구조를 분석하여 다음과 같은 결과를 얻었다.

1. 5000 K에서 용액 SiO₂의 확산 계수는 O 원자에 대해서 1.4×10^{-5} cm²/sec와 Si 원자에 대해서는 1.1×10^{-5} cm²/sec의 값을 나타내었으며, 제일원리 MD계산에 의해서 산출된 결과인 $(9 \pm 2) \times 10^{-6}$ cm²/sec(O atom)과 $(5 \pm 1) \times 10^{-6}$ cm²/sec(Si atom)와 매우 잘 일치하였다. 3000 K 이하의 온도에서 Si와 O 원자들의 확산 거동이 매우 미비하였으므로 3000 K 이하의 온도에서 비정질화가 일어난다

고 사료된다.

2. 원자 상호간의 결합 거리 또한 온도에 매우 민감하게 변화하였으며, Si-Si 결합거리는 온도 감소에 따라 더 작은 값으로 이동하였다. 냉각이 진행됨에 따라 O 원자의 배위수 결합 감소에 따라 전체 계의 결합 농도가 감소하였으며, 300 K에서 전체 배위수 결합의 농도는 17%로 감소하였다.

3. 용액 및 비정질 SiO₂의 구조는 냉각 과정이 진행됨에 따라 온도에 의존하여 큰 변화를 나타내었다. 결합각 분포 결과를 고찰해 보면, 온도가 감소함에 따라 더 규칙적인 구조를 가지는 것을 알 수 있었으며, 이는 SiO₂의 네트워크 구조가 더욱 규칙적인 tetrahedral 구조로 변해가는 것을 의미한다.

4. Si와 O 원자의 배위수 결합에 의해 삼각형 구조의 결합 구조가 관찰이 되었다. 이는 온도가 내려감에 따라 Si-O-Si 결합각 분포에서 120° 부근의 새로운 peak의 근원이 되었으며, Si-O-Si 결합각이 넓은 분포를 가지도록 함을 알 수 있었다.

REFERENCES

1. W. Jin, P. Vashishta, and R. Lalia, "Dynamics Structure Factor and Vibrational Properties of SiO₂ Glass," *Phys. Rev. B* **48** [13] 9359-68 (1993).
2. B. M. Lee, B. S. Seong, S. Munetoh, and T. Motooka, "Heat Flow and Structural Properties of Naturally Cooled a-Si: A Molecular Dynamics Study," *J. Korean Phys. Soc.*, **49** [6] 2353-61 (2006).
3. A. Rahmani, M. Benoit, and C. Benoit, "Signature of Small Rings in the Raman Spectra of Normal and Compressed Amorphous Silica: A Combined Classical and *ab Initio* Study," *Phys. Rev.*, **B 68** [3] 1842021-12 (2003).
4. J. Sarnthein, A. Pasquarello, and R. Car, "Origin of the High-frequency Doublet in the Vibrational Spectrum of Vitreous SiO₂," *Science*, **275** [28] 1925-27 (1997).
5. M. Zhang, Y. Bando, and K. Wada, "Silicon Dioxide Nanotubes Prepared by Anodic Alumina as Templates," *J. Mater. Res.*, **15** [2] 387-92 (2000).
6. H. P. Hentze, S. R. Raghavan, C. A. McKelvey, and E. W. Kaler, "Silica Hollow Spheres by Templating of Catanionic Vesicles," *Langmuir*, **19** [4] 1069-74 (2003).
7. S. Tsuneyuki, Y. Matsui, H. Aoki, and M. Tsukada, "New Pressure-induced Structural Transformation in Silica Obtained by Computer Simulation," *Nature*, **339** [18] 209-11 (1989).
8. B. M. Lee, H. K. Baik, B. S. Seong, S. Munetoh, and T. Motooka, "Generation of Glass SiO₂ Structure by Various Cooling Rates: A Molecular-dynamics Study," *Comp. Mater. Sci.*, **37** [3] 203-8 (2006).
9. D. Herzbach, K. Binder, and M. H. Muser, "Comparison of Model Potentials for Molecular-dynamics Simulations of Silica," *J. Chem. Phys.*, **123** [4] 1247111-1110 (2005).
10. T. Tangney and S. Scandolo, "An *ab Initio* Parametrized

- Interatomic Force Field for Silica," *J. Chem. Phys.*, **117** [19] 8898-904 (2002).
11. T. Motooka, K. Nisihira, S. Munetoh, K. Moriguchi, and A. Shintani, "Molecular-dynamics Simulations of Solid-phase Epitaxi of Si: Growth Mechanisms," *Phys. Rev.*, **B 61** [12] 8537-40 (2000).
 12. T. Motooka, K. Nisihira, R. Oshima, H. Nishizawa, and F. Hori, "Atomic Diffusion at Solid/liquid Interface of Silicon: Transition Layer and Defect Formation," *Phys. Rev.*, **B 65** [R] 813041-44 (2002).
 13. B. M. Lee, S. Munetoh, and T. Motooka, "Molecular Dynamics Study of Velocity Distribution and Local Temperature Change during Rapid Cooling Processes in Excimer-laser Annealed Silicon," *Comp. Mater. Sci.*, **37** [3] 198-202 (2006).
 14. B. M. Lee, H. K. Baik, B. S. Seong, S. Munetoh, and T. Motooka, "Molecular-dynamics Analysis of the Nucleation and Crystallization Process of Si," *Phys.*, **B 392** [1-2] 266-71 (2007).
 15. B. M. Lee, T. Kuranaga S. Munetoh, and T. Motooka, "Surface Nucleation of the (111) Plane of Excimer Laser Annealed Si on SiO₂ Substrates: A Molecular Dynamics Study," *J. Appl. Phys.*, **392** [1-2] 266-71 (2007).
 16. S. Munetoh, T. Kuranaga, B. M. Lee, T. Motooka, T. Endo, and T. Warabisako, "Crystal Growth of Silicon thin Film on Glass by Excimer Laser Annealing: A Molecular-dynamics Study," *J. J. Appl. Phys.*, **45** [5B] 4344-46 (2006).
 17. W. F. Gunsteren and H. J. C. Berendsen, "Algorithms for Macromolecular Dynamics and Constraint Dynamics," *Mol. Phys.*, **34** [5] 1311-27 (1977).
 18. J. Sarnthein, A. Pasquarello, and R. Car, "Structural and Electronic Properties of Liquid and Amorphous SiO₂: An ab Initio Molecular Dynamics Study," *Phys. Rev. Lett.*, **74** [23] 4682-85 (1995).
 19. R. L. Mozzi and B. E. Warren, "The Structure of Vitreous Silica," *J. Appl. Cryst.*, **2** [2] 164-72 (1969).