

## Al 表面的“类液”结构及其自扩散通道\*

汤富领<sup>1)2)†</sup> 陈功宝<sup>1)2)</sup> 谢勇<sup>1)</sup> 路文江<sup>2)</sup>

1) (兰州理工大学甘肃省有色金属新材料重点实验室, 兰州 730050)

2) (兰州理工大学材料科学与工程学院, 有色金属合金及加工教育部重点实验室, 兰州 730050)

(2010年9月9日收到; 2010年10月13日收到修改稿)

应用分子动力学方法, 采用嵌入势模型在熔点下和熔点上对 Al(001), (110) 和 (111) 表面的原子结构和自扩散现象进行研究. 发现这些表面的第一层原子在低于熔点时, Al(110) 面在  $700 \pm 10$  K, Al(001) 面在  $860 \pm 10$  K, Al(111) 面在  $930 \pm 10$  K 呈现明显自扩散且最终转变为“类液”结构, 而其余各层仍保留有序状态. 对这种“类液”结构进行均方位移、结构有序参数、径向分布函数和  $z$  向粒子密度分析, 发现其结构和扩散行为与熔化的 Al 表面不同, 并能在一定温度区间稳定存在. 在“类液”结构中, 自扩散发生在第一层原子, 且绝大多数发生在与表面平行而非垂直的方向上; 一部分扩散发生在原表面的最外层内, 更多的扩散发生在原表面的最外层之外. 3 个“类液”表面的主要扩散通道不同: Al(110) 面主要在表面之上沿 [001] 方向、Al(001) 面沿 [110] 和  $\bar{1}10$  方向扩散的概率大致相同, Al(111) 面沿  $\bar{1}10$ ,  $\bar{1}01$  和  $0\bar{1}1$  方向扩散的概率大致相同. 在“类液”结构中没有发现层间扩散.

关键词: 表面结构, 分子动力学, 自扩散

PACS: 68.49.Bc, 68.35.Rh, 68.35.Fx

## 1. 引言

虽然温度在  $0^\circ\text{C}$  以下, 人们也会感到冰是润滑的. 实验发现<sup>[1,2]</sup>: 即使在  $-30^\circ\text{C}$  到  $-10^\circ\text{C}$ , 冰的表面也是高度无序的“类水面”(water-like surface), 认为这就是人们感到冰润滑的原因; 随温度升高至熔点, 无序层从冰表面逐渐扩展到深处. 由此, 不妨猜想金属表面在较高温度下(如接近熔点时)也可能有如此表现.

与纯金属和合金体内原子相比, 金属表面原子有较多的自由度, 表面原子所受束缚较体内原子要小, 因此表面形成后其原子容易离开原始位置扩散到其他位置. 这将影响表面的许多特性, 如表面吸附、表面腐蚀与氧化、表面催化与晶体生长和表面粗糙度等. 在较高温度下, 如电子器件的钎焊过程中、微电子工业某些薄膜的生长过程中<sup>[3]</sup> 或者化工行业金属参与的催化反应中<sup>[4]</sup>, 对金属的表面结构和表面扩散机理的深入理解就显得非常重要.

近来, 人们用分子动力学模拟方法在原子尺度

上对金属表面扩散和熔化做了大量研究<sup>[3,5-7]</sup>. 对于表面熔化, 这些工作侧重于研究金属表面作为一个整体的熔化过程和熔体的微观结构变迁, 而对表面熔化前的原子结构和原子运动还知之甚少. 为了验证上述猜想(金属表面低于熔点时可能存在类似液体的结构), 也为了加深对金属表面熔化前原子结构和运动的理解, 本文以 Al 为例, 采用分子动力学方法和原子间嵌入势, 在熔点以下特定的温度对 Al 不同取向表面, 特别是第一层原子的热运动现象进行模拟和分析, 发现在特定温度下其第一层原子呈现的“类液”现象, 且不同取向表面的“类液”结构有不同的自扩散通道.

## 2. 原子嵌入势和原子结构分析

## 2.1. 原子嵌入势

在分子动力学模拟中, 正确描述原子之间相互作用的势参数至关重要, 它决定了模拟结果的可靠性. 本文选择嵌入原子势(embedded atom method,

\* 国家自然科学基金(批准号:10964003)、甘肃省自然科学基金(批准号:096RJZA102)、高等学校博士学科点专项科研基金(批准号:20096201120002)和中国博士后科学基金(批准号:20100470886)资助的课题.

† E-mail: tfl03@mails.tsinghua.edu.cn

简记为 EAM),体系的总能量<sup>[6]</sup>为

$$E_{\text{tot}} = \sum_{i < j} \phi(r_{ij}) + \sum_i F(\rho_i), \quad (1)$$

其中  $\phi(r_{ij})$  表示二体势,  $r_{ij}$  表示两个原子间的距离,  $F(\rho_i)$  是两个原子的嵌入能,  $\rho_i$  是其他所有原子在  $i$  位置的电子密度. 拟合嵌入势采用 Born 和 Mayer 引入的短程排斥势<sup>[8]</sup>, 形式如下:

$$\Phi_{ij} = Ae^{-\frac{r}{\rho}}, \quad (2)$$

其中  $A$  和  $\rho$  都是可调节的参数,  $r$  为两个原子之间的距离.

采用上述原子嵌入势模型和分子动力学方

法<sup>[3-8]</sup>, 我们计算了 Al(001), (110) 和 (111) 三种完美表面 0 K 时的结构弛豫和表面能, 对非完美 Al(111) 表面的预熔化现象<sup>[9]</sup> 和 Al 纳米团簇可能采取的截角八面体结构和成因进行了探讨<sup>[10]</sup>. 利用类似的方法, 我们还探讨了某些氧化物的晶格和表面结构<sup>[11-13]</sup>. 由于 Al 的晶格常数随温度变化而变化, 为避免不同温度下使用同一晶格常数产生热应力, 影响模拟结果, 在模拟计算前先用分子动力学方法模拟计算出 Al 在不同温度下的晶格常数, 如图 1(a) 所示. 不同温度的模拟采用相应的晶格常数来建立表面模型, 其建立方法见参考文献 [9, 10, 13].

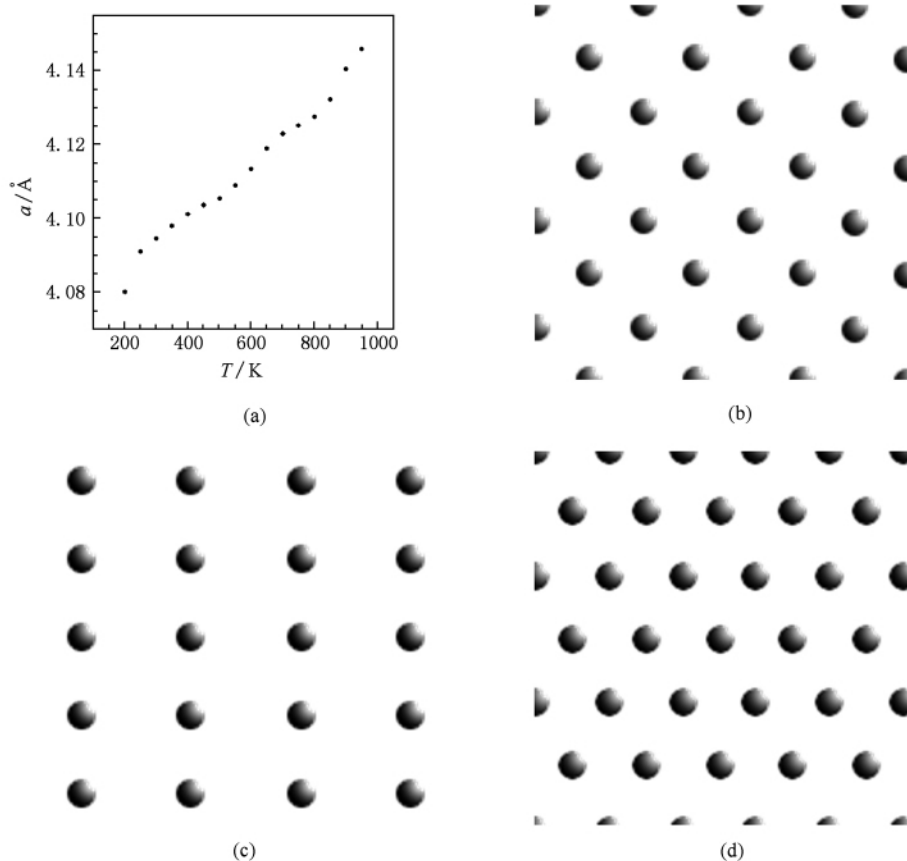


图 1 Al 在不同温度下的晶格常数及原子分布 (a) 晶格常数; (b) Al(001) 原子分布; (c) Al(110) 原子分布; (d) Al(111) 原子分布

对于 Al(001) 面, 模拟构型为  $8 \times 9 \times 15$  结构, 共 1080 个原子,  $x, y, z$  坐标分别对应 [100], [010] 和 [001] 方向. 在  $x$  和  $y$  方向上采用周期性边界条件,  $z$  方向上面 9 层原子为自由原子, 下面 6 层原子被固定在理想晶格位置用以表征没有熔化的晶体结构. 本文是在特定的温度下研究表面原子的运动情况并与熔化表面的结构和运动相比较, 因此对温度的选择比较苛刻. 在选择温度时, 既要求各面原

子发生较强的热振动及扩散运动, 又不能熔化. 正如文献 [14] 指出的那样, Al(001) 面会发生过热现象. 通过模拟选择, 最后对 860 K 和 1000 K 两个温度的模拟结果进行分析比较. 因为前者没有熔化, 后者已明显熔化. 模拟时间步长均为 1 fs. 先将体系弛豫  $3 \times 10^4$  步 (对体系的结构和能量分析,  $3 \times 10^4$  步已足够稳定), 以保证体系预先达到热平衡状态, 弛豫后各模拟  $2 \times 10^5$  步进行统计分析.

Al(110)结构最为开放,是稳定程度最差的面.模拟构型为 $8 \times 8 \times 12$ 结构,共768个原子, $x, y, z$ 坐标分别对应 $[\bar{1}10], [001]$ 和 $[110]$ 方向,上面6层原子为自由原子. Al(110)面在低于熔点时会发生预熔<sup>[15,16]</sup>,本文通过模拟测试,对700和930 K两个温度的模拟结果进行分析,其他控制条件与Al(001)面相同.

Al(111)是密排面,是最稳定表面,模拟构型为 $10 \times 10 \times 12$ 结构,共1200个原子, $x, y, z$ 坐标分别对应 $[\bar{1}10], [\bar{1}\bar{1}2]$ 和 $[111]$ 方向,上面6层原子为自由原子. Al(111)面在高于熔点时会发生过热现象<sup>[17,18]</sup>,通过模拟探索,最后对930和1060 K两个温度模拟计算结果进行详细分析.其他控制条件同上.

### 2.2. 结构分析参数

材料在一定温度下的结构和原子运动有很多种表示方法.我们采用比较直观的均方位移(MSD)、结构有序参数(SOP)、径向分布函数(RDF)和 $z$ 向粒子数密度对模拟结果进行分析.

#### 2.2.1. MSD

MSD是粒子运动轨迹随时间变化的统计平均<sup>[19]</sup>,原子由于热运动将偏离其理想晶格位置,均方位移随时间的变化可以反映出原子在做振动还是扩散运动.当MSD不随时间较快增大时,原子处于振动态;而MSD随时间持续增大时,该原子就有扩散行为. MSD定义如下:

$$D_{MS} = \frac{1}{N} \sum_i |r_i(t) - r_i(0)|^2, \quad (3)$$

其中 $r_i(t)$ 表示原子 $i$ 在 $t$ 时刻的位置矢量, $r_i(0)$ 表示原子 $i$ 在零时刻的位置矢量.(3)式给出了 $N$ 个原子在模拟时间 $t$ 内位移的均方.

#### 2.2.2. SOP

SOP<sup>[7,20]</sup>是描述体系是否发生有序无序相变的

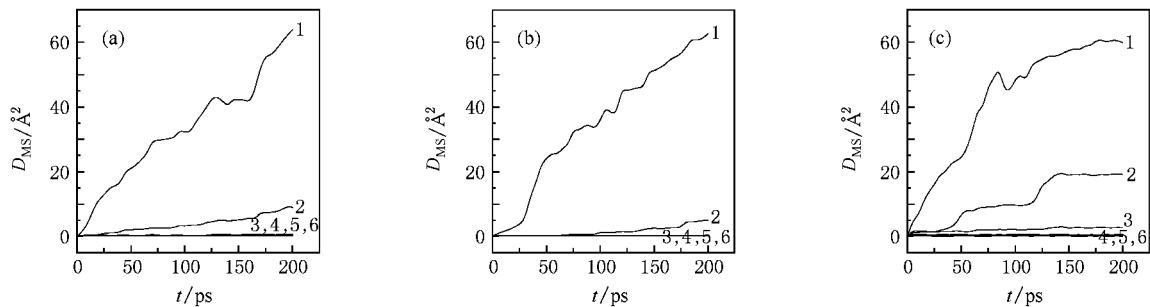


图2 Al(001)面在860K、(110)面在700K、(111)面在930K时1—6层原子的MSD (a) (001)面,860 K;(b) (110)面,700 K;(c) (111)面,930 K

重要参数.理想晶体结构的有序参数为1,温度升高,原子热运动加剧,有序参数会降低,发生相变后液态的有序参数为零. SOP定义如下:

$$s(k) = \left\langle \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \exp(-ik \cdot r_i) \right\rangle, \quad (4)$$

其中 $N$ 表示面内原子总数, $k$ 表示面内倒格矢量, $r_i$ 表示原子位置矢量.

#### 2.2.3. RDF

RDF<sup>[7,10,21]</sup>是描述晶格结构的另一种方法,常用来表征结构的无序化程度.该分布函数是距离一个原子为 $r$ 时找到另一个原子的概率,描述一个原子与周围其他原子按距离分布情况.在本文中用来描述各层原子是否处于短程有序状态,其中二维RDF定义为

$$g(r) = \frac{2A}{N^2} \left\langle \sum_{i < j} \delta(r - r_{ij}) \right\rangle, \quad (5)$$

式中 $\left\langle \sum_{i < j} \delta(r - r_{ij}) \right\rangle$ 是分子动力学计算结果的平均值, $A$ 表示表面积, $N$ 表示原子总数, $r_{ij}$ 表示原子 $i$ 和 $j$ 之间的距离.

#### 2.2.4. $z$ 向粒子数密度

我们把原子在 $z$ 方向上的变化用概率分布函数来描述<sup>[22]</sup>,用于统计原子在 $z$ 向(垂直表面方向)的分布密度.

采用上述4种原子结构或运动表示方法,探讨Al表面“类液”结构中的原子分布和原子运动,并与完全熔化的Al表面的模拟结果相比较.

## 3. 结果与讨论

### 3.1. MSD分析

图2是Al(001)面在860 K、(110)面在700 K、(111)面在930 K分别模拟 $2 \times 10^5$ 步的MSD

曲线. 从图 2 可以看出, Al 三个取向面在相应的温度下第一层原子的 MSD 随时间的增长而增大, 并且三个面第一原子层的 MSD 大致相同; 三个取向面的第二原子层的 MSD 随时间的增长稍有增加, 而其余各层原子的 MSD 几乎都为零. 这表明 Al

(001) 面在 860 K、(110) 面在 700 K、(111) 面在 930 K 下第一层原子具有一定的流动性, 其余各原子层没有较长距离的扩散运动, 还保持相对完整的晶体状态, 扩散主要集中在第一原子层, 没有发现层与层之间的扩散.

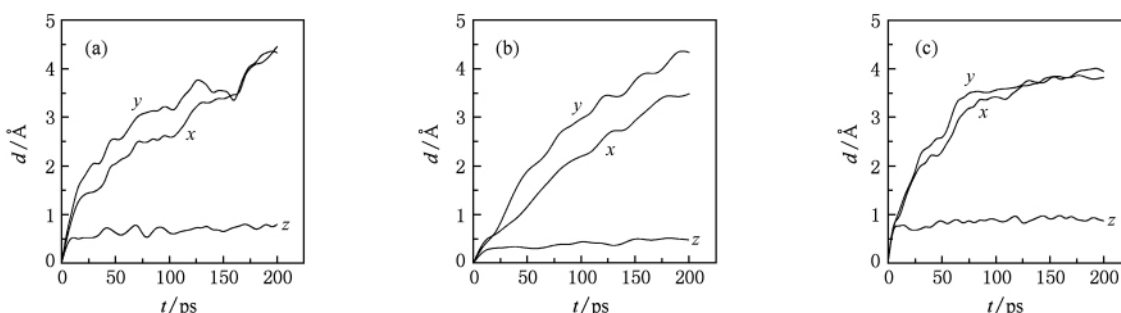


图 3 Al(001)面在 860 K、(110)面在 700 K、(111)面在 930 K 时第一层原子的运动距离 (a) (001) 面, 860 K; (b) (110) 面, 700 K; (c) (111) 面, 930 K

我们还计算了 Al 表面第一层原子沿  $x, y, z$  方向的平均运动距离. 图 3 是 (001) 面在 860 K、(110) 面在 700 K、(111) 面在 930 K 分别模拟  $2 \times 10^5$  步第一层原子沿  $x, y, z$  方向的平均运动距离. 从图 3 可以看出, 不同取向面的第一层原子沿  $x, y$  方向的平均运动距离要远大于沿  $z$  方向的平均运动距离. 这表明 Al 各取向面的第一层原子的热扩散运动主要是发生在  $x-y$  面内. 从图 3 (a) 可以看出, Al(001) 面第一层原子沿  $x, y$  方向的平均运动距离大致相同. 这表明 Al(001) 面在  $x-y$  面内沿各向扩散的概率相同, 与 Al(001) 面的原子分布相符合 (如图 1 (b) 所示). 从图 3 (b) 可以看出, Al(110) 面在  $x-y$  面内原子沿  $y$  方向的平均运动距离除起始阶段的短暂时间外整个模拟时间内都大于沿  $x$  方向的平均运动距离. 这表明在 Al(110) 面在  $x-y$  面内沿  $y$  方向的扩散概率要大于沿  $x$  方向的值. 从图 1 (c) 可以看出, Al(110) 面的原子构型是由沿  $[001]$  方向分布的“沟槽”和沿  $[\bar{1}10]$  方向分布的“原子墙”垂直交叉构成的. 而原子沿  $[001]$  “沟槽”方向扩散的概率要大于沿  $[\bar{1}10]$  方向翻越“原子墙”的概率. 所以在 Al(110) 面上原子扩散的主要通道就是沿  $[001]$  方向的“沟槽”. 从图 3 (c) 可以看出 Al(111) 面第一层原子沿  $x, y$  方向的平均运动距离大致相同, 而且沿  $x, y$  方向的平均运动距离较 (001) 面更接近. 这表明 Al(111) 面的原子构型的对称程度要高于 (001) 面. 从图 1 (d) 可推知, Al(111) 面沿  $[\bar{1}10], [\bar{1}01]$  和  $[0\bar{1}1]$  方向扩散的概率相当, 因此相对于 (001) 面和 (110)

面而言, Al(111) 面原子扩散的方向性更差一些, 这就决定了在  $x-y$  面内沿  $x, y$  方向的平均运动距离大致相同.

我们还对 Al(001) 面在 1000 K、(110) 面在 930 K、(111) 面在 1060 K 分别模拟了  $2 \times 10^5$  步的 MSD (本文没有给出图示), 发现表面层原子熔化后有较大的 MSD 值. 高温下 MSD 沿  $x, y, z$  三个方向的值基本相同, 一方面说明发生了明显的层间扩散, 另一方面说明 Al 表面已经熔化, 比较接近三维块体 Al 的熔化行为. 这与上述第一层表面原子的“类液”行为不同.

### 3.2. SOP 分析

图 4 (a) 是 Al(001) 面在 860 K、(110) 面在 700 K、(111) 面在 930 K 下各原子层的 SOP; 图 4 (b) 是 Al(001) 面在 1000 K、(110) 面在 930 K、(111) 面在 1060 K 下各原子层的 SOP. 从图 4 (a) 可以看出, Al 的三个取向面在上述低温下第一层原子的 SOP 均接近零, 而其余各层原子更接近 1. 这表明 Al 的三个取向面在低温下第一层原子处于长程无序状态, 而其余各层原子还处在接近完美晶格结构的状态. 从图 4 (b) 可以看出, Al 表面在上述高温下第一层、第二层原子的 SOP 几乎为零, 而其余各层原子的 SOP 随着原子层数的增加而增大. 内部各层较大的 SOP 主要是受内层固定晶格结点原子的影响. 这表明此时 Al 的三个取向面最外面数层原子处于长程无序状态, 已经开始熔化, 而且熔化开始于

表面并从表面逐渐向晶格体内扩展. 图 4 说明“类液”结构和已经熔化的表面有序度差别较大.

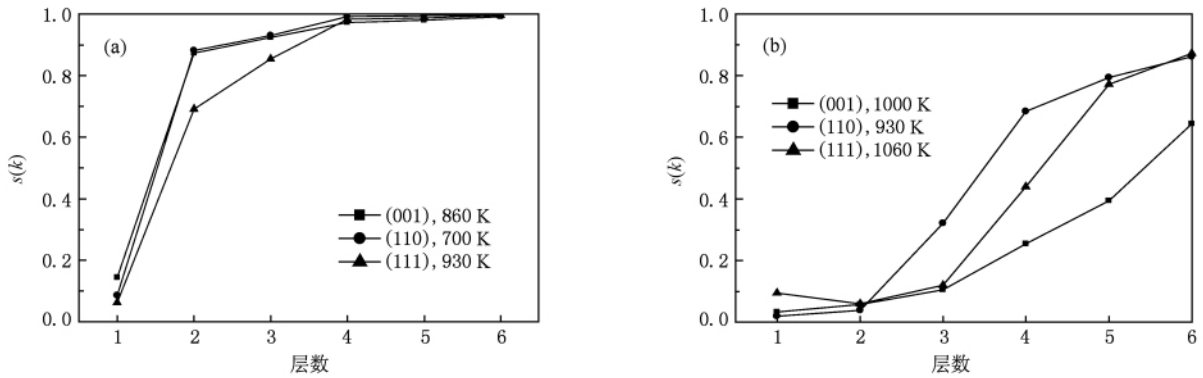


图 4 Al(001), (110) 和(111)面低温和高温下的 SOP (a)在低温下;(b)在高温下

### 3.3. RDF 分析

从图 5 (a) — (c) 可以看出, Al(001) 面在 860 K, (110) 面在 700 K, (111) 面在 930 K 下, 各面的第一层原子的 RDF 曲线的次邻近峰几乎消失, 而其余各原子层的每个峰都保持完好. 这表明 Al 表面在上述低温下除第一层原子丧失了短程有序状态外, 三

个取向面的其余各层原子都保持几乎完美晶格的原子排布. 我们还对 Al(001) 面在 1000 K, (110) 面在 930 K, (111) 面在 1060 K 分别模拟  $2 \times 10^5$  步得到 RDF, 见图 5 (d) — (f). 发现在如此高温下 Al 表面六层原子的次近邻峰基本消失或大幅度降低, 外层原子处于无序状态, 与上述“类液”结构第一层原子无序而其余各层有序的结构不同.

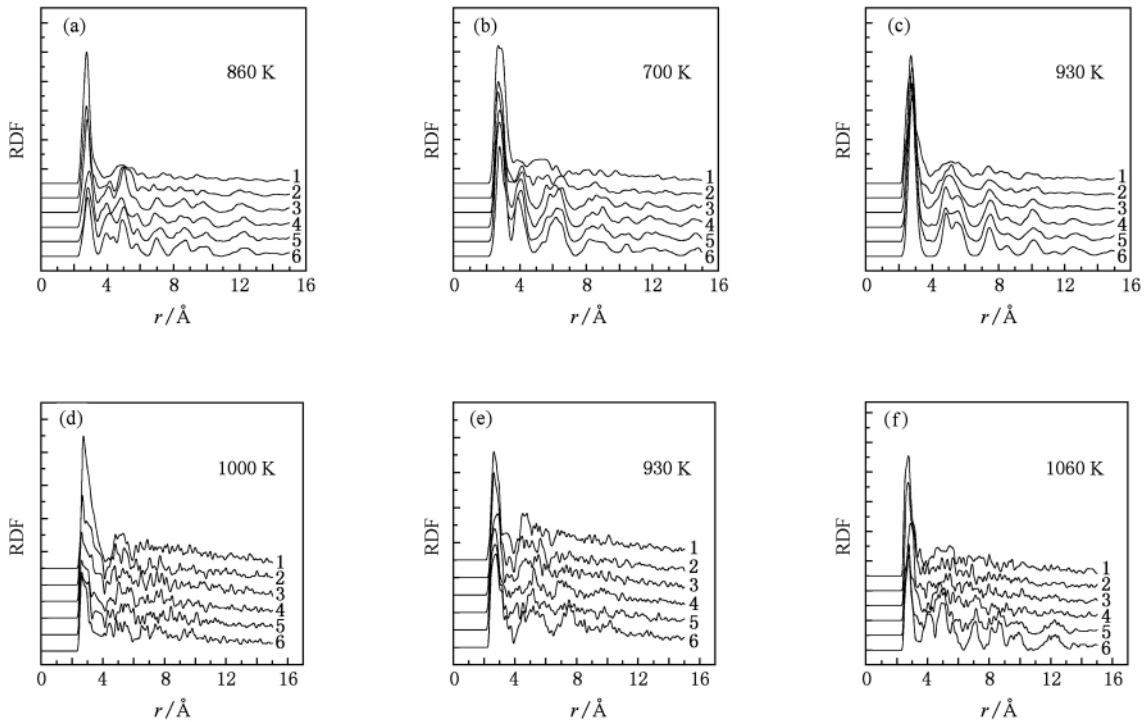


图 5 Al(001), (110) 和(111)面低温和高温下的 RDF (a) (001) 面 860 K; (b) (110) 面 700 K; (c) (111) 面 930 K; (d) (001) 面 1000 K; (e) (110) 面 930 K; (f) (111) 面 1060 K

### 3.4. $z$ 向粒子密度分析

从图 6(a)–(c) 可以看出, Al(001) 面在 860 K、(110) 面在 700 K 和 (111) 面在 930 K 时的  $z$  向粒子密度曲线均呈层带状分布, 而且层带与层带之间有密度为零的空隙. 从图 6(d)–(f) 可以看出, Al(001) 面在 1000 K、(110) 面在 930 K 和 (111) 面在 1060 K 时的  $z$  向粒子密度曲线已经没有先前的层带状分布, 而是处于很多小峰存在的杂乱状态, 且峰与峰之间没有密度为零的空隙. 这表明 Al 表面在上述低温时原子基本都分布在完美晶格的原子层内, 层与层之间均没有杂乱原子存在; 而在 Al

面升温到上述高温时, 原子层之间出现了大量原子, 表面几层原子都处在杂乱无序的状态. 这虽然不能直接说明低温下第一层原子的“类液”结构与高温下完全无序结构的异同, 但能从多层结构上看出低温和高温结构上的态体不同.

综上所述, 我们用四种结构表示方法考察了 Al 三种表面熔点下和熔点上结构的不同, 证实低温下表面第一层原子的“类液”结构和行为 (这种结构和行为与熔化的 Al 表面不同). 我们还考察了 Al(001) 面在  $(860 \pm 10)$  K、(110) 面在  $(700 \pm 10)$  K 和 (111) 面在  $(930 \pm 10)$  K 的“类液”结构, 发现它能稳定存在于上述温度区间.

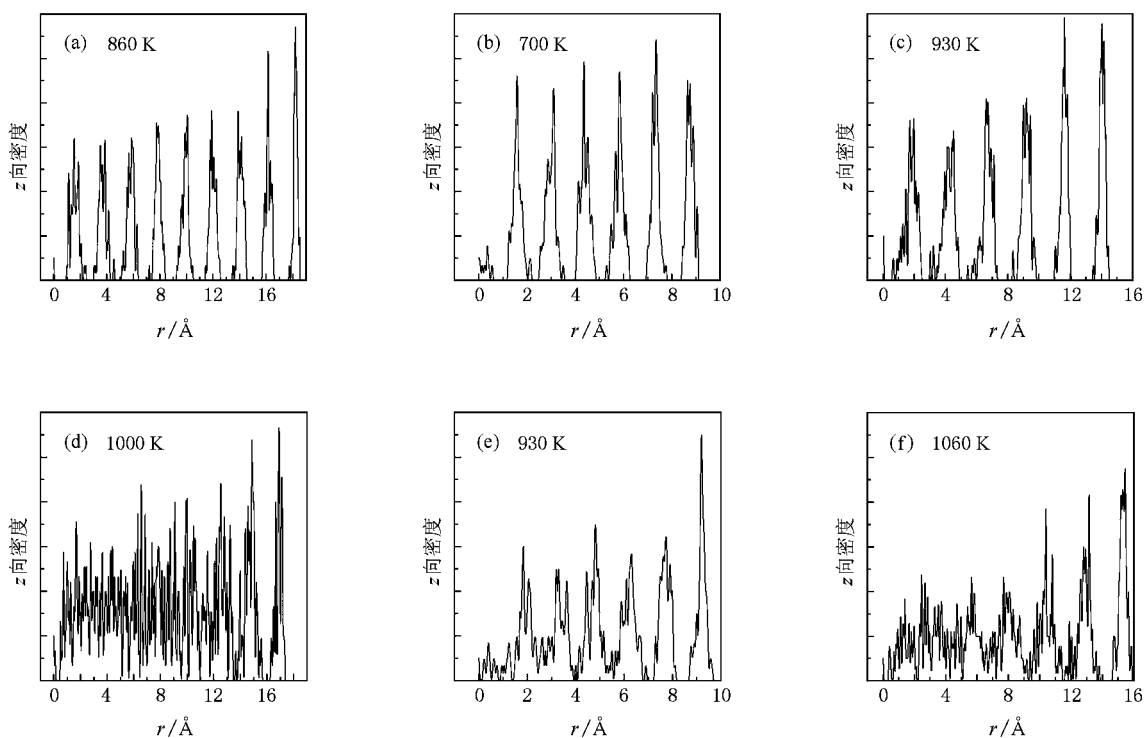


图 6 Al(001)、(110) 和 (111) 面低温和高温下的  $z$  向密度 (a) (001) 面, 860 K; (b) (110) 面, 700 K; (c) (111) 面, 930 K; (d) (001) 面, 1000 K; (e) (110) 面, 930 K; (f) (111) 面, 1060 K

## 4. 结 论

采用 EAM 模型, 利用 MSD, SOP, RDF 和  $z$  向粒子数密度四种结构分析方法, 对金属 Al 三种表面的原子结构和自扩散进行分子动力学模拟研究, 并与熔化表面的模拟结果相比较.

(1) 在三种表面熔点以下, Al(110) 面在  $(700 \pm 10)$  K, Al(111) 面在  $(930 \pm 10)$  K, Al(001) 面在  $(860 \pm 10)$  K, 表面第一层原子发生自扩散, 随着模拟时

间的延长, 第一层原子转变成为“类液”结构, 且“类液”结构能在上述温度区间稳定存在.

(2) 在“类液”结构中, 三个表面的最外层原子高度无序, 而其余各层原子保持在完美晶格结点附近. 熔化的 Al 表面各层原子基本无序.

(3) “类液”结构的自扩散发生在与表面平行而非垂直的方向上, 一部分扩散发生在原表面的最外层内, 更多的扩散发生在原表面的最外层之外. Al 的三种表面“类液”结构由于具有不同的原子排布, 扩散路径不同, Al(110) 面主要在表面之上沿 [001]

方向, Al(001)面沿 $[110]$ 和 $[\bar{1}\bar{1}0]$ 两个方向扩散的概率大致相同, Al(111)面沿 $[\bar{1}\bar{1}0]$ ,  $[\bar{1}01]$ 和 $[0\bar{1}1]$ 三个方向的扩散概率大致相同. “类液”结构层间没有发现扩散, 而熔化的 Al 表面在三维方向上扩散.

本工作的计算在甘肃省超级计算机中心完成, 谨致谢意.

- [1] Goertzt M P, Zhu X Y, Houston J E 2009 *Langmuir* **25** 6905
- [2] Li Y M, Somorjai G A 2007 *J. Phys. Chem. C* **111** 9631
- [3] Meng L J, Li R W, Sun J D, Liu S J 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 2637 (in Chinese) [孟丽娟、李融武、孙俊东、刘绍军 2009 物理学报 **58** 2637]
- [4] James J C, Ashok K S, Richard M L 2000 *J. Am. Chem. Soc.* **122** 2381
- [5] Liu H, Ke F J, Pan H, Zhou M 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 407 (in Chinese) [刘浩、柯浮久、潘晖、周敏 2007 物理学报 **56** 407]
- [6] Xie G F, Wang D W, Ying C T 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 2254 (in Chinese) [谢国锋、王德武、应纯同 2003 物理学报 **52** 2254]
- [7] He A M, Qin C S, Shao J L, Wang P 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 2667 (in Chinese) [何安民、秦承森、邵建立、王裴 2009 物理学报 **58** 2667]
- [8] Born M, Mayer J M 1932 *Z. Phys.* **75** 1
- [9] Tang F L, Cheng X G, Lu W J, Yu W Y 2010 *Physica B* **405** 1248
- [10] Tang F L, Che X X, Lu W J, Chen G B, Xie Y, Yu W Y 2009 *Physica B* **404** 2489
- [11] Tang F L, Zhang X 2006 *Phys. Rev. B* **73** 144401
- [12] Tang F L, Zhang X 2007 *Appl. Phys. Lett.* **90** 142501
- [13] Tang F L, Huang M, Lu W J, Yu W Y 2009 *Surf. Sci.* **603** 948
- [14] Molenbroek A M, Frenken J W M 1994 *Phys. Rev. B* **50** 11132
- [15] Van der Con A W D, Smith R J, Cay J M 1990 *Surf. Sci.* **227** 143
- [16] Stoltze P, Norskov J K, Landman U 1988 *Phys. Rev. Lett.* **61** 440
- [17] Tolla F D, Ercolessi F, Tosatti E 1995 *Phys. Rev. Lett.* **74** 3201
- [18] Balabegovic G 1997 *Phys. Rev. B* **55** 16450
- [19] Ye Y J, Zhang L T, Cheng L F, Xu Y D 2006 *J. Inorg. Mater.* **21** 483 (in Chinese) [叶雅静、张立同、成来飞、徐永东 2006 无机材料学报 **21** 483]
- [20] Rapaport D C 1995 *The Art of Molecular Dynamics Simulation* (Cambridge: Cambridge University Press) p90
- [21] Ciccotti G, Guillope M, Pontakis V 1983 *Phys. Rev. B* **27** 5576
- [22] Yang Q W, Zhu R Z, Wen Y H 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 4245 (in Chinese) [杨全文、朱如曾、文玉华 2005 物理学报 **54** 4245]

# Liquid-like structure and self-diffusion channels on Al surfaces<sup>\*</sup>

Tang Fu-Ling<sup>1)2)†</sup> Chen Gong-Bao<sup>1)2)</sup> Xie Yong<sup>1)</sup> Lu Wen-Jiang<sup>2)</sup>

1) (Key Laboratory of Advanced Non-ferrous Metal Materials of Gansu Province , Lanzhou University of Technology , Lanzhou 730050 , China)

2) (Key Laboratory of Non-ferrous Metal Alloys and Processing of Ministry of Education , School of Material Science and Engineering , Lanzhou University of Technology , Lanzhou 730050 , China)

(Received 9 September 2010; revised manuscript received 13 October 2010)

## Abstract

Molecular dynamics simulation with embedded atom method potentials is performed to study the atomic structure and self-diffusion on three aluminum surfaces: (001) , (110) and (111). Using mean-square displacement , structure ordering parameter , radial-distribution function and z-direction density , we find that their atoms on the first layer present obvious self-diffusion then change into liquid-like structure under melting points: Al(110) at  $700 \pm 10$  K , Al(001) at  $860 \pm 10$  K , and Al(111) at  $930 \pm 10$  K. In the liquid-like structure , self-diffusions always take place on the first layer of the original surface along the direction parallel rather than vertical to the surface: some of the diffusions occur on the outermost layer and more diffusions occur outside the original surface. The main diffusion channels of the three surfaces are different: along [001] on Al(110) , [110] and  $[\bar{1}10]$  on Al(001) , and  $[\bar{1}10]$  ,  $[\bar{1}01]$  and  $[0\bar{1}1]$  on Al(111). No inter-layer diffusion takes place in liquid-like structure , which is different from in the liquid structure of melted surface.

**Keywords:** surface structure , molecular dynamics , self-diffusion

**PACS:** 68.49. Bc , 68.35. Rh , 68.35. Fx

<sup>\*</sup> Project supported by the National Natural Science Foundation of China ( Grant No. 10964003 ) , the Natural Science Foundation of Gansu Province , China ( Grant No. 096RJZA102 ) , the Doctoral Program Foundation of Institution of Higher Education of China ( Grant No. 20096201120002 ) and China Postdoctoral Science Foundation ( Grant No. 20100470886 ).

<sup>†</sup> E-mail: tfl03@mails.tsinghua.edu.cn