第 54 卷第 1 期
2026 年 1 月

硅 酸 盐 学 报
JOURNAL OF THE CHINESE CERAMIC SOCIETY

Vol. 54，No. 1
January，2026

http://jccsoc.cbpt.cnki.net

DOI：10.14062/j.issn.0454-5648.20250815

综 合 评 述

数据驱动与机器学习辅助的硫系相变材料研究进展

张烜广，周 健，孙志梅

(北京航空航天大学材料科学与工程学院，北京 100191)

摘 要：硫系相变材料(Phase Change Materials, PCMs)因其独特的电学和光学特性而被广泛研究。PCMs 已被成功应用于各类光盘，并在数据存储领域取得显著进展，例如相变随机存取存储器(Phase Change Random Access Memory, PCRAM)。此外，PCMs 在光子学领域展现出良好的应用前景，可用于调控光的传播与相互作用；同时也适用于模拟人脑功能的神经拟态计算系统。本综述全面总结了大数据分析与机器学习方法辅助下的 PCMs 相关研究：高通量计算与机器学习模型可以实现最优掺杂剂筛选与相变材料性能预测；机器学习势函数可以深化对相变材料的相变动力学及热力学特性的理解；在 PCRAM 器件级模拟与设计中，机器学习在存储器优化及 PCMs 神经拟态计算潜力挖掘方面发挥了关键作用。最后，总结了 PCMs 的未来研究方向与当前面临的挑战。

关键词：硫系相变材料；高通量计算；数据分析；机器学习
中图分类号：O472　　**文献标志码**：A　　**文章编号**：0454–5648(2026)01–0070–20
网络出版时间：2026–01–06



自 20 世纪 60 年代 Stanford R. Ovshinsky 发现硫系非晶半导体的可逆电开关特性以来[1]，硫系相变材料(Phase Change Materials, PCMs)得到广泛研究。20 世纪 80 年代中期，Yamada 等[2]在 GeTe–Sb_2Te_3 伪二元体系中发现了 GeSbTe 系列相变合金，该合金随后被成功应用于各类光盘。此后，硫系 PCMs 在数据存储领域取得了显著进展。在相变随机存取存储器(Phase Change Random Access Memory, PCRAM)中进行写入操作时，施加足够高的电流脉冲可使 PCMs 从低电阻晶态转变为高电阻非晶态[3–12]，对应逻辑“1”和“0”的存储。这种相变通过施加短电流脉冲实现，脉冲会将材料加热至其晶化温度以上。进行读取操作时，施加相对较小的探测电流，通过测量相变材料的电阻值判断其处于晶态还是非晶态，进而读取存储数据。进行擦除操作时，施加相对低幅度的长电流脉冲，使非晶态材料恢复为低电阻晶态，为下一轮数据写入做准备[13]。除作为存储单元外，硫系 PCMs 还可在 PCRAM 中充当阈值开关[14]。这种开关被称作双向阈值开关(Ovonic Threshold Switch, OTS)，其工作原理是当施加电压超过某一阈值时，其电导率会发生突变。当施加电压达到阈值时，开关从高阻态转变为低阻态，允许电流通过，从而实现对存储单元的访问与数据操作。当施加电压移除或降至阈值以下时，硫系 PCMs 恢复高阻态，这一特性确保了对存储访问过程的精确控制。

PCMs 在光子学及神经拟态计算中也得到了广泛研究。在光子学领域，PCMs 可实现对光传播与相互作用的调控[15–17]。相变过程中，PCMs 的折射率会发生显著变化，这一特性源于原子结构重排引发的介电函数改变。晶态下，p 轨道的定向排列使其介电常数显著高于非晶态[18]。以 PCMs 为核心的功能模块衍生出多种可调谐光学特性，包括可调透射率、可调颜色、可调吸收率及可调发射率[18]。PCMs 可实时动态调控光学特性，使其在光调制、光开关、光存储及光学传感器等各类光子学应用中极具吸引力[18–23]。此外，PCMs 正被探索应用于神经拟态计算领域，该领域旨在通过人工神经网络模拟人脑功能[24–25]。PCMs 的相变行为可模拟突触可塑性，类似于大脑突触随神经活动改变连接强度的过程。在基于 PCMs 的神经拟态器件中，通

收稿日期：2025–11–07。　修订日期：2025–11–27。
基金项目：国家自然科学基金(52332005)；新材料重大专项(2025ZD0618802)。
第一作者：张烜广(1998—)，男，博士研究生。
通信作者：孙志梅(1970—)，女，博士，教授。

Received date: 2025–11–07.　**Revised date:** 2025–11–27.
First author: ZHANG Xuanguang (1998–), male, Doctoral candidate.
E-mail: xgzhang7@buaa.edu.cn
Correspondent author: SUN Zhimei (1970–), female, Ph.D., Professor.
E-mail: zmsun@buaa.edu.cn

过施加电脉冲调控 PCMs 元件的电导率，可模拟突触权重的变化，进而实现学习算法，并支持信息的并行、高能效处理。PCMs 的非易失性至关重要，即使在断电状态下仍能保留突触权重，从而模拟大脑的长期记忆功能。

尽管应用前景广阔，PCMs 仍面临诸多挑战，包括热稳定性[10]、能耗[18]、电阻漂移[26–27]及可扩展性[24]等问题。传统实验方法与第一性原理计算[13, 28–33]已成为 PCMs 研究中不可或缺的工具，它们为理解材料特性提供了深刻见解，对 PCMs 的理论认知与实际应用均做出了重要贡献[34–49]。随着大数据分析与机器学习方法[50–53]的快速发展，PCMs 研究取得了突破性进展。这一范式转变借助大数据与机器学习算法的结合，能够预测并调控传统实验方法及第一性原理计算难以直接获取的 PCMs 特性[54–59]。这种数据驱动的方法能够精确调控材料的合成与制备条件，进而提升其在实际应用中的性能[60–62]。同时还能深入理解原子间的相互作用，并且融合了量子力学计算的精度与经典势函数方法的速度，突破了传统计算方法的局限[58, 61–67]。本文以材料基础特性挖掘和器件功能优化为主线，系统性地综述了在数据分析和机器学习方法的辅助下硫系 PCMs 研究的实践和理论进展。下文依次阐述了：1) 高通量计算加机器学习模型如何突破传统试错法局限，实现最优掺杂剂筛选、新型 PCMs 挖掘，精准预测 PCMs 的关键性能；2) 依托机器学习势函数支撑的大规模分子动力学模拟，从原子尺度揭示 PCMs 相变动力学规律与热输运特性；3) 聚焦器件以及尺度的原子级建模，并展示机器学习在 PCMs 神经拟态器件与 PCMs 光子器件中的智能优化应用；4) 总结当前研究面临的数据缺口、多物理场耦合等核心挑战，同时指出晶–晶转变机制探索与晶体结构预测等未来的重点研究方向。

1　高通量计算支撑的数据驱动型硫系相变材料性质探索

在硫系 PCMs 的研究进程中，传统实验方法的试错成本高、周期长，第一性原理计算虽具精度但受限于体系规模与计算效率，难以满足材料成分优化、性能调控及新型体系发现的迫切需求。而数据驱动方法的兴起，为突破这些瓶颈提供了革命性路径，其核心在于通过系统性的计算与数据挖掘，将材料的结构、成分与宏观性能精准关联起来，既实现了对传统方法难以覆盖的复杂问题的高效求解，又为实验研究提供了明确的方向指引。这一数据驱动的探索范式主要依托两大关键技术：高通量计算作为“数据生产引擎”，通过大规模、标准化的第一性原理计算，快速遍历多元成分空间、筛选最优掺杂剂、解析相分离等微观机制，生成涵盖形成能、晶格结构、电子特性等多维度的海量基础数据，为后续研究奠定坚实的数据基础；机器学习模型则作为“数据解析核心”，基于高通量计算生成的高质量数据集，通过多种机器学习模型，精准预测 PCMs 中难以直接测量或计算的关键性能与微观机制，同时实现对材料特性的快速评估与筛选，大幅提升研究效率。二者协同发力，构建了计算生产数据–模型分析数据–数据指导研究的闭环，推动硫系 PCMs 的性质探索从经验驱动向精准预测与定向设计转型，下文分别详细阐述高通量计算与机器学习模型在 PCMs 性质探索中的具体应用、技术细节及核心成果。

1.1　高通量计算

应用于 PCRAM 存储单元的典型相变材料 $Ge_2Sb_2Te_5$ (GST225)属于 GeTe-Sb_2Te_3 伪二元体系[2]。存储操作中，GST225 在非晶态和亚稳态岩盐相之间进行非易失性的可逆切换。但非晶态存在老化(电阻随时间升高)[27]及再结晶(数据丢失)[33]的稳定性问题，从而对 PCRAM 的循环使用寿命产生不利影响。实验中发现，富 Ge 的 GST 合金的晶化温度更高(GST225 为 420～440 K，富 Ge 合金可达 570 K)[68–69]，兼具高开关速度与高温稳定性，但存在相分离问题。为明确其结晶过程中的相分离机制，Bernasconi 等[70]通过开展高通量第一性原理计算，通过计算生成自由能、反应自由能等性质参数，构建稳定性凸包和分解倾向图，绘制了 Ge_3SbTe_2、Ge_4SbTe_2、Ge_5SbTe_2 在 Ge-$GeSb_2Te_4$ 伪二元线上的分解图。发现多条自由能相近的竞争分解路径，可能形成不同立方合金。并且热处理过程的不同(如升降温速率)会显著影响结晶路径与产物。对于给定的合金组分，存在多个放热的分解反应通道，且它们的反应自由能非常接近。这意味着分解过程可能同时沿多条路径进行，导致最终形成不同组分晶粒共存的纳米复合结构。其中 Sb-GeTe 伪二元线的分解倾向最低。因此推论出 Sb-GeTe 二元线是开发高性能、高热稳定性且低相分离风险的相变存储材料的“黄金区域”。

在下一代非易失性存储器 Sb_2Te_3-GeTe 伪二元线上的硫系相变材料体系中，Sb_2Te_3 具有结晶速度

快、无相分离的优势[71]，但晶态电阻率较低，需高功率电流或电压实现晶态–非晶态相变，不利于降低 PCRAM 功耗，且非晶态热稳定性差，影响存储单元的数据保留能力与可靠性。掺杂是调控 Sb_2Te_3 性能的关键策略[5–7, 43, 72–82]，可提升相变速度[83]、热稳定性[6]，降低功耗[73]并增强器件可靠性与寿命[5]。传统试错法难以从众多候选元素中筛选最优掺杂原子，而随着计算资源发展，高通量第一性原理计算为筛选 Sb_2Te_3 材料的最优掺杂原子提供了新途径。基于高通量第一性原理计算的掺杂方法能快速筛选大量候选掺杂剂，相比传统试错法效率更高。Hu 等[84]通过高通量第一性原理计算筛选多种过渡金属元素，设定带隙、形成能、晶格畸变程度的范围，确定 Sc、Y、Hg 为 Sb_2Te_3 的潜在最优掺杂剂(见图 1a)。Sc/Y 掺杂对 Sb_2Te_3 有多方面显著影响[78, 83]：结构上倾向于取代 Sb 原子，在不同掺杂浓度下随机分布，提升材料均匀性与性能一致性；Sc/Y 共掺杂具协同效应，Sc 收缩晶格、Y 膨胀晶格，二者抵消实现晶格完美匹配，减少内应力与相分离[85]。电子性质上，带隙随掺杂浓度线性增大，利于电子器件性能提升；掺杂后价带顶(Valence Band Maximum, VBM)更平缓，优化有效质量与载流子输运，降低复位电流。电学上，导电性下降，减少能耗、提升能量利用效率。热学上，热导率降低、热稳定性提升，助力降低功耗与温度波动导致的数据风险[6, 7, 85]，其中 Y 掺杂 Sb_2Te_3 室温至熔点的平均热导率下降[77]。Liu 等[7]对 Y 掺杂 Sb_2Te_3 的实验验证表明，无需改变器件结构或添加界面层，其功耗即可低于动态随机存取存储器(Dynamic Random Access Memory，DRAM)，开关速度媲美静态随机存取存储器(Static Random-Access Memory，SRAM)，且无需预编程脉冲，超低功耗源于 Y 掺杂导致的热导率与导电性下降，晶粒细化与晶体结构保持保障了编程速度，器件耐久性较 Sb_2Te_3 基器件提升。$Y_{8.7}Sb_{38.7}Te_{52.6}$ 基器件表现优异：10 年数据保持温度约 132 ℃、功耗约 0.31 pJ、电阻漂移系数约 0.012、置位速率 3.2 ns、循环耐久性> 2×10^6 次，实现 PCMs 综合性能提升(见图 1b)；Y 掺杂还通过提高 Sb 原子迁移能垒稳定 Sb_2Te_3 亚稳态立方相，促成非晶–亚稳态立方–稳定六方相的可逆多级相变，推动多级相变存储发展[5, 43]。Rao 等[83]以几何(非晶态类晶结构基元与 Sb_2Te_3 亚稳态立方相晶格匹配、配位数=6、键长≈3.0 Å)和热力学(熔点 > 900 K、内聚能为键合稳定性指标)为筛选标准(见图 1c)，发现 Sc 掺杂形成的 $Sc_{0.2}Sb_2Te_3$ 可以大幅提升 PCRAM 性能：无预编程时写入速率达 700 ps (远超 GST)，强 Sc—Te 键稳定非晶态结构、降低成核随机性(见图 1d)，热稳定性良好(数据保留与 GST 相当)、复位速度亚纳秒、复位能耗低、循环性能优，为 PCRAM 发展奠定基础。

高通量第一性原理计算还可加速新型 PCMs 的发现。Xu 等[86]对多种立方型二元及三元硫系化物开展系统计算筛选，立方型亚稳态结构是 PCMs 实现晶–晶相变(Crystalline-to-Crystalline Phase Transition, CCPT)与非晶–晶态相变(Non-Crystalline-to-Crystalline Phase Transition, n-CCPT)的关键[87]。研究生成了所有可能的 V_2VI_3 和 $IV_1V_2VI_4$ 同系硫系化物(IV=Si、Ge、Sn、Pb；V=P、As、Sb、Bi；VI=S、Se、Te)的立方岩盐模型，考虑Ⅴ族原子与空位在一个亚晶格的统计分布(另一亚晶格由Ⅵ族原子完全占据)，并对每种成分的 3 个独立模型进行结构与晶胞弛豫。最后筛选出岩盐结构稳定性良好的 9 种二元化合物和 38 种三元化合物。通过对所有材料体系的原子半径比和 sp^3 杂化程度的横向比较，进一步发现了 sp^3 杂化程度大且原子半径比大的成分，其岩盐结构不稳定，3 种不稳定化合物的弛豫模型原子位移超 1.5 Å (键长的一半)，呈类非晶结构。电子局域化方面，弛豫前Ⅴ族原子半径增大、电负性减小，或Ⅵ族原子半径减小、电负性增大时，局域化更显著；弛豫后原子畸变进一步提升局域化程度。该工作极大地扩展了无序控制的硫系 PCMs 家族。从而满足 PCRAM，神经拟态计算和低损耗光子学应用对 PCMs 不同特性的需求(如不同的电阻值范围、热稳定性)[86]。综上所述，高通量第一性原理计算是探究 PCMs 性质和扩充 PCMs 家族不可或缺的工具(见表 1)[88–91]，通过这种方式极大地缩短了候选材料的筛选和研究周期，并加速了 PCMs 领域的发展。

1.2 机器学习模型

高通量第一性原理计算可生成 PCMs 的热学特性[92, 93]、晶态与非晶态结构及物理化学性质[70, 84, 86, 88, 91, 94]等大量数据，通过机器学习模型训练这些数据可预测实验或计算难以直接获取的性能[54, 95, 96]。Gan 等[97–99]基于高通量计算构建 IV-V-VI 族化合物晶体数据集，开发神经网络模型预测其低晶格热导率与最优掺杂类型[92]，筛选出 n 型 $Pb_2Sb_2S_5$ 等半导体，其具有晶格强非简谐性与短声子寿命，从而可以抑制声子热传导，实现超低热导率(300 K 时 0.55 $W\cdot m^{-1}\cdot K^{-1}$，650 K 时 0.25 $W\cdot m^{-1}\cdot K^{-1}$)，为可持续能源领域新型材料探索提供高效路径。Cheng

等[55, 100–102] 结合高通量第一性原理计算与人工神经网络(Artificial Neural Network, ANN)模型，研究 GeTe 的空位形成能与键合环境，ANN 预测结果与 DFT 高度吻合(见图 2a)。模型预测结果发现，GeTe 中 Ge 空位形成能范围为–1.82～0.86 eV，在无序系统中空位的形成比在晶体结构中更容易；3.0～3.6 Å 的 Ge—Te 键对相稳定性至关重要，3.6～4.5 Å 的 Ge-Ge/Te—Te 键也参与体系能量的构成(见图 2b)。

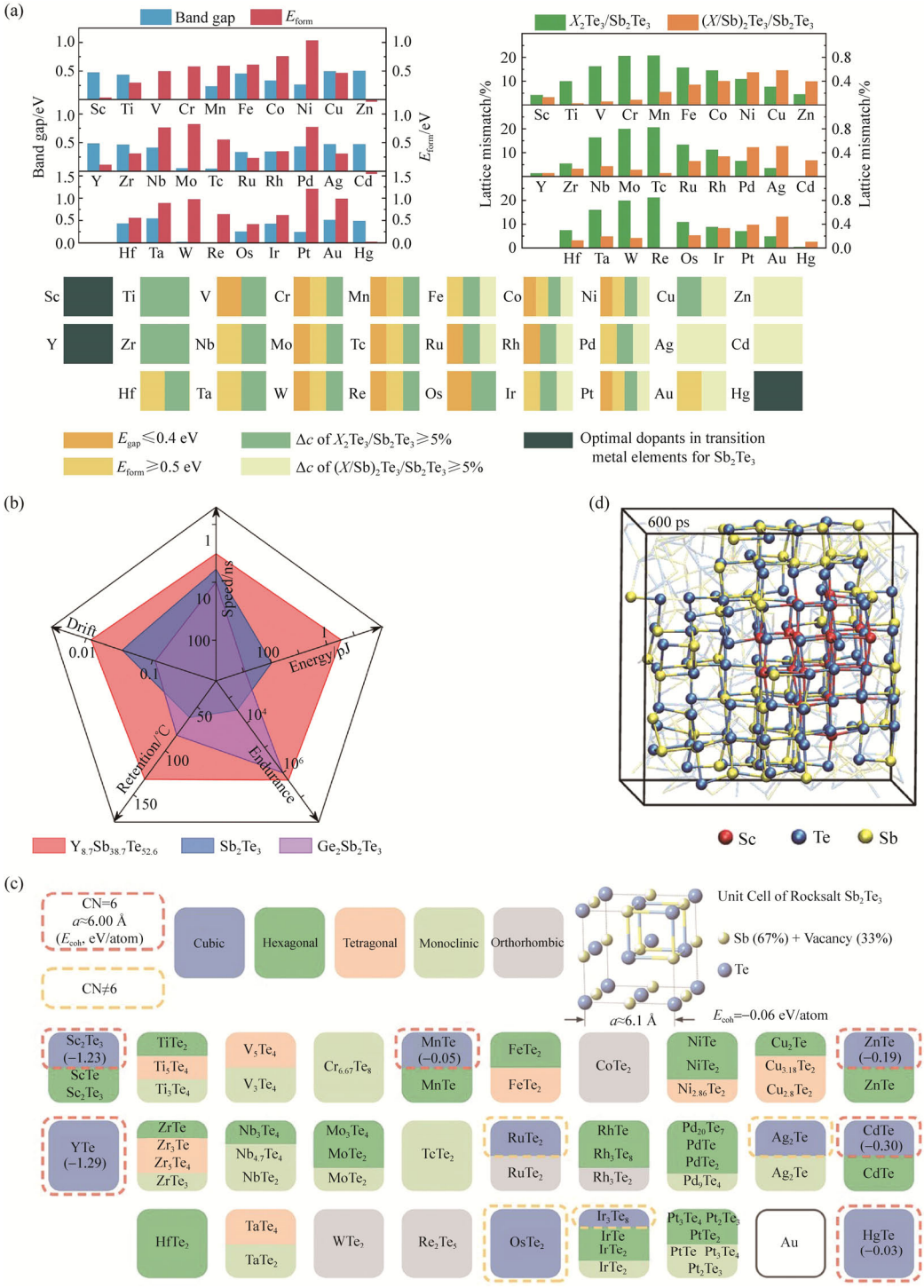


图 1　(a)高通量第一性原理计算筛选掺杂元素[84]。(b) 不同相变材料的性能对比[6]。(c) 基于结构匹配度和热力学稳定性筛选匹配的过渡族金属碲化物[83]。(d) Sc 掺杂 Sb_2Te_3 结晶过程[83]

Fig. 1　(a) High-throughput first-principles calculation for screening doped elements[84]. (b) Performance comparison of different phase change materials[6]. (c) Screening of matched transition metal tellurides based on structural matching and thermodynamic stability[83]. (d) Crystallization process of Sb_2Te_3 doped with Sc [83]

表 1 PCMs 高通量第一性原理计算筛选方法汇总表

Table 1 Summary of high-throughput first-principles calculation screening methods in phase change materials (PCMs)

Material system	Material property	Data size	Data screening criteria	Result
$Ge_xSb_yTe_z$[70]	Free energy of reaction/ decomposition tendency	~18 846	Low decomposition-tendency	Non-phase separation Sb-GeTe Pseudo-binary line
Transition group elements doped-Sb_2Te_3[84]	Band gap Formation energy Lattice mismatch Lattice distortion	~120	Band gap ⩾ 4 eV Formation energy ⩽ 0.5 eV Lattice mismatch ⩽ 5% Lattice distortion ⩽ 2%	The best doping elements Sc and Y
Transition metal tellurides[83]	Coordination number Lattice constant Cohesive energy	~90	Coordination number = 6 Lattice constant = 6.00 Å Cohesive energy < –0.06 eV/atom	The best doping element Sc
V_2VI_3 $IV_1V_2VI_4$ [86]	Maximum atomic displacement Equilibrium lattice constant Band gap Hybridization degree of sp^3 Löwdin charge	~1080	Maximum atomic displacement ⩽ 0.7 Å	47 kinds of potential phase change materials

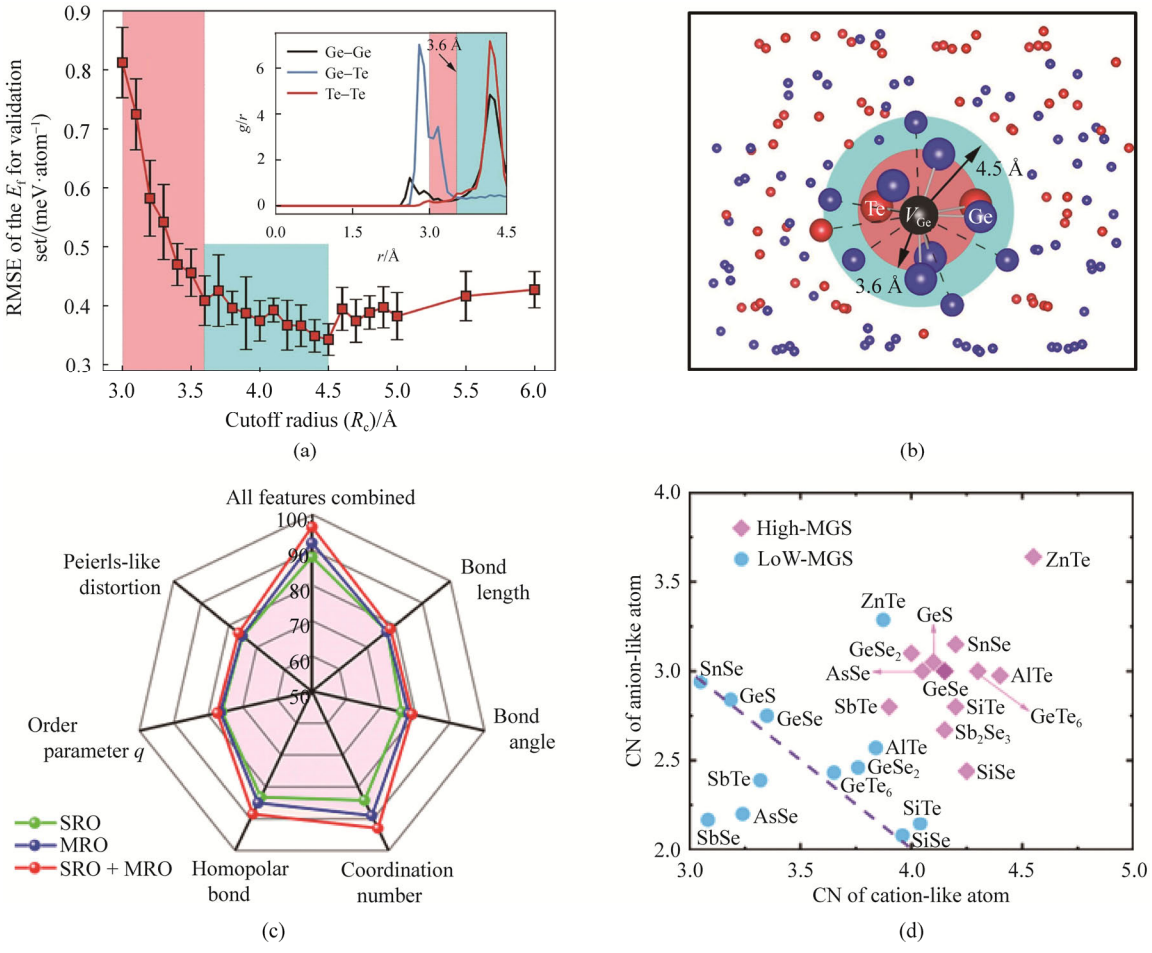


图 2 (a)机器学习模型验证集的均方根误差[55]。(b) 在 Ge 空位周围的不同邻域中原子的分布情况[55]。(c) 每个输入结构特征的“重要性评分”[56]。(d) 典型 OTS 材料中高-MGS 和低-MGS 原子的平均配位数(CN)[56]

Fig. 2 (a) Root mean square error of the validation set of the machine learning model[55]. (b) The distribution of atoms in different neighborhoods around Ge vacancies[55]. (c) “Importance score” for each input structural feature[56]. (d) The average coordination number (CN) of high-MGS and low-MGS atoms in typical OTS materials[56]

OTS 器件作为选择器助力 PCMs 向三维高密度存储扩展[103]，其机制与硫系化物玻璃带隙中的中带隙态(Mid-Gap State, MGS)相关[104]，但 MGS 起源缺乏明确解释。Xu 等[56]结合高通量第一性原理计算

与深度学习模型，大幅缩短复杂数据处理时间，基于硫系化物玻璃模型结构特征训练的多层感知器，MGS 预测准确率达 95%，证实破坏全局 8-N 规则的中程有序(Medium-Range Order, MRO)基元是 MGS 的主要起源(见图 2c 和图 2d)，为 OTS 材料优化提供新思路。PCMs 因光学对比度显著、稳定性高、开关速度快，可集成到超表面实现高可调性与可重构性[105]，还能实现超宽带吸收并随温度动态变化[15]。Patel 等[106]利用 K 近邻(K-Nearest Neighbors, KNN)回归器预测晶态/非晶态 GST 中缺失/中间波长的吸收率，通过 COMSOL 多物理场仿真获取不同条件下的吸收、电场、相变率等数据并构建数据库，模型调整后相关系数 R^2>0.9，预测精度优异。该方法可通过大波长步长仿真结合机器学习预测中间波长吸收值，节省大量仿真资源，为太阳能吸收器的设计优化提供有力支持。借助机器学习模型(见表 2)，使用高通量计算数据作为输入，可以进一步探索实验和计算难以获取的 PCMs 的性质，从而为设计高性能 PCMs 器件和进一步理解 PCMs 的物理化学机制提供指导。

表 2　PCMs 机器学习模型汇总表

Table 2　Summary of machine learning models in PCMs

	IV-V-VI group compounds	GeTe	GeSe	$Ge_2Sb_2Te_5$
Property prediction	Maximum thermoelectric figure of merit Optimal doping type	Atomic energy Vacancy formation energy	Mid-gap state atoms	Absorption efficiency
Feature selection	Temperature Lattice parameter Bond length Electron configuration	Atomic center-symmetry function	Bonding character Coordination number q order parameter Number of Peierls-like pairs	Wavelength range Base thickness Metasurface thickness Grounding plane thickness
Algorithm	Deep neural network + Stochastic gradient descent	Behler-Parrinello neural network + L-BFGS	Artificial neural network + L-BFGS	K-nearest neighbor regression
Validation	Cross-validation Learning curve analysis Hyperparameter testing DFT comparison	Cross-validation DFT comparison	Cross-validation DFT comparison Feature importance score	Cross-validation
Performance	Maximum thermoelectric figure of merit: R^2=0.95 Optimal doping type: Accuracy =91.67%	Atomic energy: RMSE=0.45 meV/atom Vacancy formation energy: σ=0.19 eV/V_{Ge}	Accuracy = 95%	R^2 > 0.90

2　机器学习势函数驱动相变材料性质预测

硬件算力的增强推动计算数据激增，PCMs 的数据驱动特性探索随之快速发展。如前文所述，依托高质量数据集，高通量筛选与机器学习模型已广泛应用于 PCMs 静态性质的研究[107]。而 PCMs 动态性质的研究同样重要，从头算分子动力学(*Ab initio* Molecular Dynamics，AIMD)模拟在 PCMs 的动力学演化过程中发挥了重要作用[3, 43, 44, 48, 108]，但这类方法仅能处理≤900 原子的较小体系[108–110]，时间跨度最多为 8 ns[111]。基于第一性原理计算数据集构建的机器学习势函数(Machine Learning Potential, MLP)，兼具经典势函数的计算效率与准从头算精度(媲美第一性原理赝势)[112, 113]，显著提升了对大规模 PCMs 模型的理解与模拟能力[12, 53, 61, 63, 64, 114–120]。机器学习势函数的出现，使含数千原子的模型可实现准第一性原理精度计算。基于海量第一性原理数据集训练得到的 MLP，既能够精准刻画原子间的复杂成键环境、电子局域化等微观特征，又能支持含数千乃至数十万原子的大规模、长时间尺度分子动力学模拟，实现了对 PCMs 复杂动态过程的高效且精准的表征。下文聚焦 MLP 驱动的大规模分子动力学模拟，探讨其在突破体系规模限制后，对 PCMs 结晶动力学(如成核与生长模式、温度/压力影响机制)、原子迁移特性等关键相变过程的深度揭示；阐述 MLP 在热输运性质研究中的优势，包括非晶态与晶态 PCMs 的热导率计算、纳米结构热输运规律、相变过程中热导率的动态变化等的精准预测，这些研究不仅填补了传统方法在大规模体系微观机制研究中的空白，更为 PCMs 的热稳定性优化、低功耗器件设计提供了关键的理论支撑。

2.1 大规模分子动力学

基于高斯近似势(Gaussian Approximation Potentials, GAP)框架构建的典型 GST225 模型(含 7200 个原子)，其中子衍射图在中程有序区域呈现尖锐衍射峰[62]，而小尺寸模型的模拟图谱中无此特征(见图 3a 和图 3b)，这表明研究非晶 GST225 的中长程有序需构建大尺度结构。此外，研究者通过改变淬火速率(1～100 $K·ps^{-1}$)与模型尺寸(315～24 300 个原子)生成玻璃态 GST[114]，发现淬火速率越慢，结构有序性越高，所研究的最低速率(1 $K·ps^{-1}$)下材料性质接近部分结晶而非玻璃态。

Bernasconi 等[121–122]采用神经网络势(Neural Network Potentials, NNPs)开展大规模分子动力学(Molecular Dynamics, MD)模拟，研究非晶 GeTe 的原子迁移率，发现其在接近玻璃化转变温度时仍保持高原子迁移率，导致过冷液体中自扩散系数与黏度的斯托克斯–爱因斯坦关系失效(见图 3c 和图 3d)，这对理解 PCMs 应用所需的快速结晶行为至关重要。研究还基于黏度的温度依赖性将过冷液体分为脆弱型或强韧型，指出过冷液体的脆性是快速结晶的关键；进一步发现非晶 GeTe 的脆性指数高达 135～140，表明玻璃化转变温度附近黏度急剧上升[123]，这一特性影响非晶–晶态开关行为。该研究成功计算了 GeTe 在 520 K 以下的构型熵，通过亚当–吉布斯关系将其与黏度、弛豫时间等动力学性质相关联，为理解材料热稳定性与行为提供了依据，并估算其玻璃化转变温度约为 398 K，该温度是与 GeTe 基存储技术工作极限与稳定性相关的关键参数。这些预测最终通过非晶 PCMs 相关实验得到验证[124–127]。

MLP 显著推动了 PCMs 结晶动力学领域的发展[65, 128]。MLP 使模拟兼具计算可行性与尺度、时长适配性，能精准捕捉结晶过程中的成核与生长动态，助力研究者探索温度、压力等多环境条件对结晶的影响，这对非易失性存储材料尤为关键。非晶 PCMs 的结晶模式主要分为生长型与形核型，且不同模式对相变转化率影响显著，而传统第一性原理计算与实验观测难以研究该结晶过程。Li 等[59]通过大规模分子动力学模拟了 10 万原子 Sb-Te 基 PCMs 模型，发现 Sb_2Te 以生长型结晶为主，SbTe 与 Sb_2Te_3

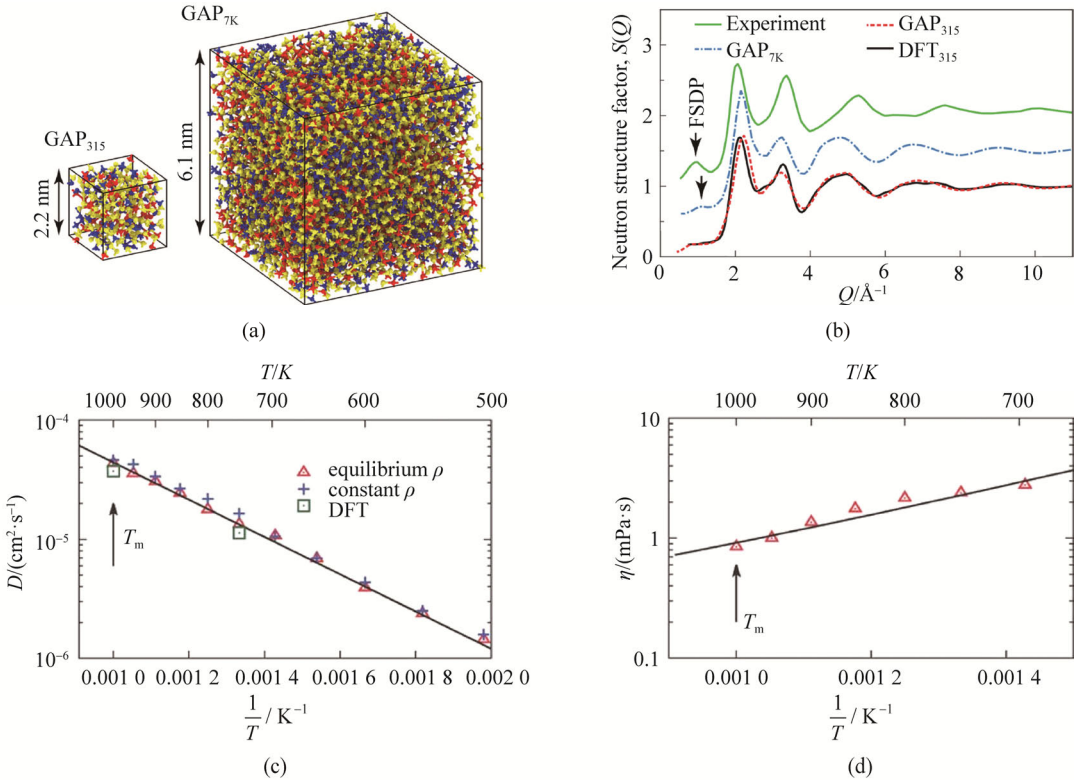


图 3 (a) $Ge_2Sb_2Te_5$ 非晶模型[62]。(b) $Ge_2Sb_2Te_5$ 非晶的结构因子，来自实验数据以及各种模拟模型的计算结果[62]。(c) GeTe 过冷液体中的自扩散系数 D 与温度的关系[121]。(d) GeTe 过冷液体中的黏度与温度的关系[121]

Fig. 3 (a) Amorphous model of $Ge_2Sb_2Te_5$[62]. (b) Structure factors of $Ge_2Sb_2Te_5$ amorphous materials, derived from experimental data and calculation results of various simulation models[62]. (c) The relationship between the self-diffusion coefficient D in GeTe supercooled liquids and temperature[121]. (d) The relationship between viscosity and temperature in GeTe supercooled liquids[121]

以形核型结晶为主(见图 4a)。该研究为 Sb-Te 系 PCMs 结晶动力学提供了重要见解，同时指出需进一步探索异质形核机制，尤其是掺杂影响下不同 Sb-Te 成分的相关机制。

基于 NNPs 的大规模 MD 模拟，可在宽温度范围内探索 GeTe 过冷液相的结晶过程[129]。研究发现，在所考察温度区间内，成核并非结晶过程的限速因素；过冷液体的脆性及黏度与扩散率间斯托克斯–爱因斯坦关系的失效，使原子迁移率显著提升，进而加速超临界晶核生长，且 GeTe 过冷液相的结晶速度与扩散率存在明确关联。进一步的研究[130]探究了过冷液相 GeTe 的动力学特性、慢速和快速移动的原子团簇及 Ge—Ge 同极键链(见图 4b)，发现快迁移原子中含有大量 Ge—Ge 同极键，这些结构特征是导致非晶 GeTe 中斯托克斯–爱因斯坦关系失效的重要原因。上述结果表明，过冷液相的脆性赋予材料高原子迁移率，而这正是 PCRAM 器件高效工作所需快速结晶特性的核心驱动因素。

晶界与相界对 PCMs 结晶过程亦有重要影响。基于 MLP 的 MD 模拟构建多种多晶模型，探究不同晶面对结晶过程的影响[131]：界面暴露的晶面显著影响生长速率，(100)面生长快于(111)面；高温下界面主导晶体生长，低温下则与熔体中的均匀结晶相互竞争(见图 4c)。此外，贴近实际存储器件几何结构的多晶模型，因晶界存在而生长变慢。对纳米尺度 GeTe/$TiTe_2$ 类超晶格的研究发现，纳米受限会轻微降低 GeTe 的晶体生长速率[132]，但其性能仍满足神经拟态应用需求，可有效调控多个中间电阻态，且电阻漂移更小。MD 模拟清晰呈现了成核与生长过程，深化了对纳米受限结构中结晶行为的理解，这些研究为 PCMs 晶体特性认知及材料设计优化以提升 PCRAM 性能提供了重要思路[132−133]。

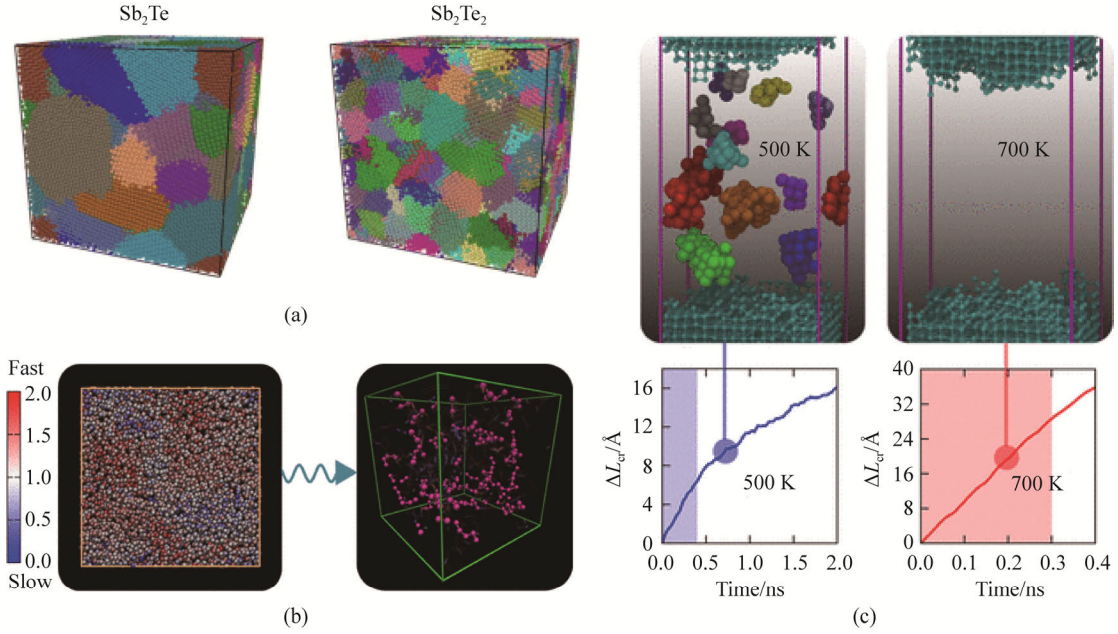


图 4　(a) 在 600 K 温度下经过 2 ns 结晶后的 Sb_2Te 和 Sb_2Te_2 的晶粒图像[59]。(b) 低温下高原子迁移率与包含大量 Ge—Ge 键链的团簇的存在有关[130]。(c) 在 500 K 和 700 K 时的晶体生长速率对比[131]

Fig. 4　(a) Grain images of Sb_2Te and Sb_2Te_2 after crystallization at 600 K for 2 ns[59]. (b) The high atomic mobility at low temperatures is related to the existence of clusters containing a large number of Ge–Ge bond chains[130]. (c) Comparison of crystal growing rates at 500 K and 700 K[131]

2.2　热输运性质

在 PCMs 领域，理解热力学性质对热管理能力开发至关重要[66]。传统实验与理论计算方法在应对 PCMs 复杂局部结构时面临严峻挑战，而 MLP 提供了高效解决方案，助力深化对其热力学行为的认知。MLP 的优势在于能精准模拟纳米尺度模型中的原子相互作用，进而计算热力学性质，而传统原子间势难以捕捉纳米尺度材料的复杂性与特定行为。基于 NNPs 的 MD 模拟与晶格动力学计算，可分析非晶 GeTe 的声子行为与热导率[134]。模拟采用大尺度模型(4096 个原子)和长时间尺度(纳秒级)，以精准捕捉 PCMs 的热输运特性。研究发现，非晶 GeTe 的热载体以扩散模式为主，传播模式对总热导率贡献可忽略；计算得出热导率为(0.27±0.05) W/(m·K)，与同类 PCMs 实验数据吻合。由于传播模式的弹道输运贡献极小[134]，因此体相热导率可有效表征纳米

尺度 GeTe 器件的热输运特性。

非平衡分子动力学(Non-Equilibrium Molecular Dynamics, NEMD)与 MLP 结合，是研究热导率特性的高效方法。Bosoni 等[135]采用 NEMD 模拟研究 GeTe 晶态纳米线热导率，发现其热导率低于体相材料：直径 7.3 nm 纳米线的晶格热导率为 1.57 W/(m·K)，显著低于体相的 3.15 W/(m·K)，这主要归因于纳米线中声子群速率降低；且纳米线直径减小会使热导率升高，凸显了纳米线在降低功耗方面的潜力。Campi 等[136]结合 NNPs 与 NEMD 模拟探究 GeTe 热学特性，通过在模拟胞内建立温度梯度，量化了晶态、非晶态及其界面的传热模式。核心发现为：晶格对界面热阻的贡献与电声相互作用相当，界面温度跃变极小，表明热阻可能低于预期；由于散射效应增强阻碍了高效热输运，Ge 空位的引入会显著降低晶格热导率。

PCMs 在稳定晶态、亚稳晶态与非晶态间的可逆相变伴随显著热导率变化，因其亚纳秒再结晶动力学与长循环稳定性，成为理想热开关候选材料。但其微观结构与热振动的关联尚不明确：实验技术(如中子散射)缺乏时空分辨率，难以直接关联相变时的原子动力学与热导率变化[137]；传统理论模型(非晶相 Allen-Feldman 框架、晶相玻尔兹曼输运方程)无法捕捉 PCMs 中非简谐性与拓扑无序的相互作用[138]。Wang 等[139]通过 MLP 辅助的大规模 MD 模拟发现，$Sc_{0.2}Sb_2Te_3$ 相变时 Sc 中心原子基元发生八面体–七面体的可逆重构，助力亚纳秒结晶。基于流体力学理论的密度涨落分析显示，结晶后热导率提升约 1.4 倍(从 0.13 $W·m^{-1}·K^{-1}$ 增至 0.31 $W·m^{-1}·K^{-1}$)，源于 Te 八面体振动长程有序的恢复；准简谐格林–久保(Quasi-Harmonic Green-Kubo, QHGK)计算表明，晶态 $Sc_{0.2}Sb_2Te_3$ 抑制声子散射，且 Te 主导模式(≈3.0 THz)扩散率增强(见图 5a 和图 5b)，并且该结果经独立正弦平衡趋近分子动力学(Sinusoidal Approach to Equilibrium Molecular Dynamics, SAEMD)模拟得到验证。

Lee 等[140]采用等变图神经网络原子间势结合 Green-Kubo 方法，精准评估 GeTe 的晶格热导率，克服了玻尔兹曼输运方程易高估该数值的局限。他们利用严格局域的 E(3)等变神经网络，可计算 GeTe 不同相(非晶相、菱形相、立方相)的温度依赖型热导率；通过温度依赖有效势(Temperature Dependent Effective Potential, TDEP)方法，获得 α-GeTe 在 300 K 与 600 K 下的温度依赖声子谱(见图 5c 和图 5d)，反映声子分布与温度演化规律，助力理解材料热输运特性与温度的关联。研究还计算了 A_1 和 E 光学声子模式随温度及热导率的演化，并与实验数据对比(见图 5e 和图 5f)，揭示了特定声子模式的温度响应及振动特性的温度诱导变化。该研究通过 Green-Kubo 方法与等变神经网络势的结合，成功计算 GeTe 晶格热导率，且验证的关键相变温度与实验数据一致。

MLP 在硫系 PCMs 大尺度模拟中展现出准 DFT 精度+经典势效率的核心优势。但在势函数训练过程中，为精准模拟 PCMs 和预测性质，需要在训练流程、误差控制、模型稳定性与泛化性评估等方面设置严格标准。在训练流程方面，需要构建高精度的 DFT 数据集，设置合适的交换关联泛函，设置高精度的截断能、K 点密度。数据集需包含不同成分，多种缺陷类型，多种相态和多种温度下的 PCMs 构型。采用精准描述 PCMs 晶体和非晶的原子局域环境的特征描述符，如 Behler-Parrinello 对称性函数[59]，SOAP[62]等。在误差控制方面，能量、力、维里应力等训练数据的 RMSE 需严格控制，从而保证模型精度。在模型稳定性与泛化性评估方面，晶格常数、体系熔点、玻璃化转变温度、扩散系数、不同压力和温度下的材料性质等均要和第一性原理计算结果和实验数据进行比较。未训练的成分、尺寸、性质的预测也要进行计算对比，保证 MLP 对相应 PCMs 体系预测的泛化能力。

但是模型带来的误差是不可避免的。势函数模型内生的误差具有显著的跨尺度传递效应：原子层级描述的微小偏差会随着模拟尺度的攀升而不断累积与放大，最终映射为宏观物性预测的显著偏差。其对 PCMs 的影响主要体现在 3 个方面：1) 能量/力误差–原子级行为偏差–相变机制扭曲：MLP 对原子间作用力的预测误差(如力误差 ＞0.1 eV/Å)，会导致原子迁移能垒计算偏差(如 Sb 原子迁移能垒被低估)，进而改变结晶模式判断(如将 Sb_2Te 的“生长型结晶”误判为“形核型结晶”[59])；若 MLP 对 GST 合金的相分离依赖形成能的预测误差> 0.2 eV/atom，可能遗漏关键的竞争分解路径，导致对材料稳定性的误判[70]；PCMs 的电阻漂移与非晶态空位迁移相关，MLP 对空位形成能的预测误差会扭曲空位扩散系数，进而高估/低估电阻漂移速率[27]。2) 结构描述符误差–中程有序捕捉不足–热力学性质预测偏差：非晶 PCMs 的热导率依赖中程有序结构(如类晶基元的分布)，若 MLP 的描述符无法捕捉 3.6～4.5 Å 的 Ge—Ge/Te—Te 键[55]，会导致声子散射率计算偏差，进而使热导率预测产生误差。3) 尺度累积误差–器件级性能预测失效：

PCMs 器件级模拟(如 50 万原子的 GST 存储单元[115])中，原子级的微小误差会随体系规模扩大而累积；若 MLP 对单原子能量的预测误差为 0.01 eV/atom，50 万原子体系的总能量误差达 5000 eV，足以扭曲熔化/结晶的温度阈值(如将复位电流对应的熔化温度从 1200 K 误判为 1100 K)，导致器件功耗预测偏差[6]。因此理解模型误差对性质预测带来的影响，可以更好地规避和调整模拟计算流程。

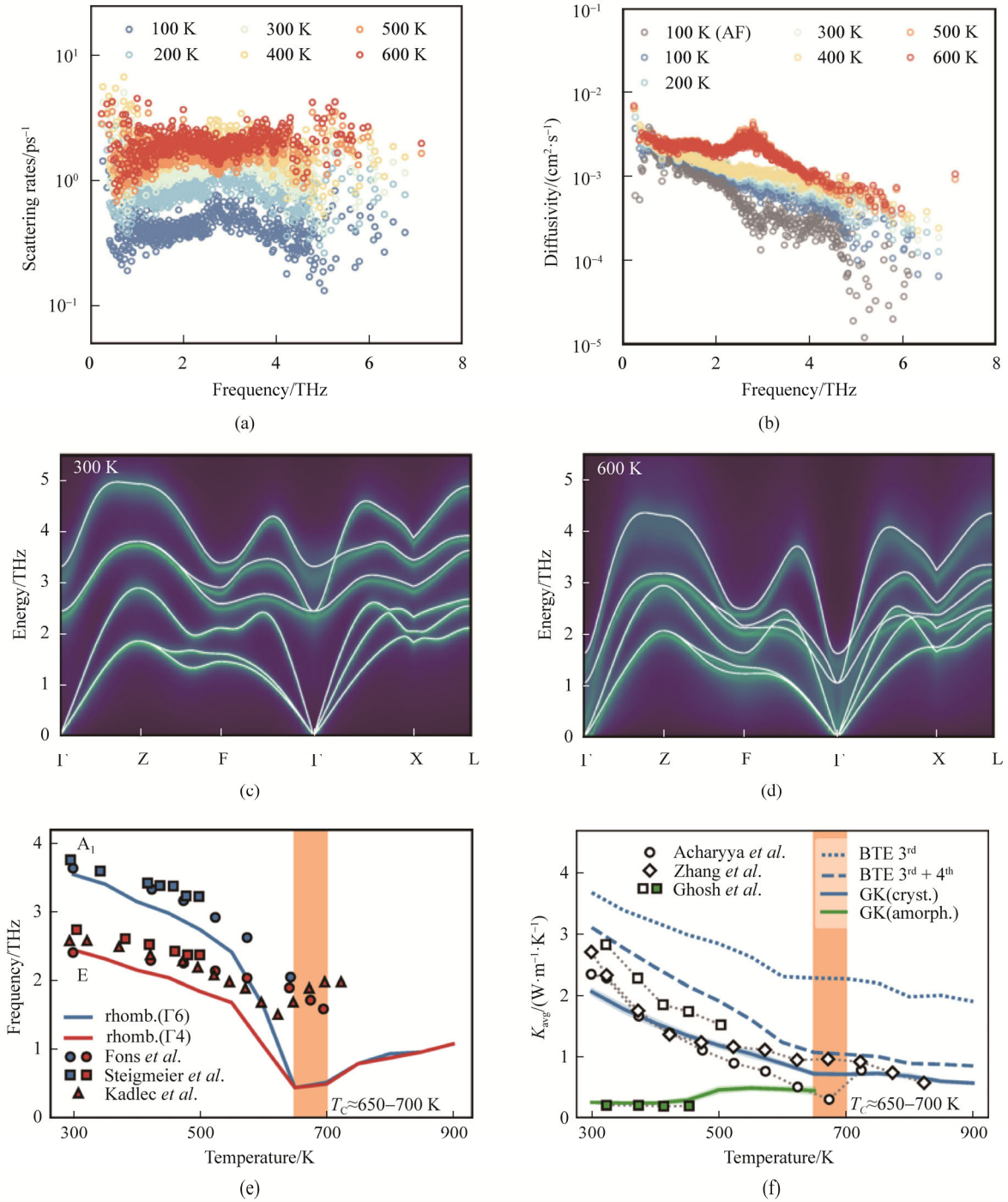


图 5　(a)在特定温度下，晶态和非晶态的 $Sc_{0.2}Sb_2Te_3$ 的声子散射率随频率的变化曲线[139]。(b)使用 QHGK 方法计算出的特定温度下 $Sc_{0.2}Sb_2Te_3$ 中声子模式的扩散率[139]。(c, d)温度依赖的 GeTe 的声子谱[140]。(e) 使用 TDEP 方法计算并与实验结果对比的 A_1 和 E 光学声子模式随温度的变化情况[140]。(f)使用 Green-Kubo 方法计算的非晶和晶态 GeTe 的热导率[140]

Fig. 5　(a) Variation curves of the phonon scattering rate of crystalline and amorphous $Sc_{0.2}Sb_2Te_3$ with frequency at specific temperature[139]. (b) Diffusion rates of phonon modes in $Sc_{0.2}Sb_2Te_3$ at a specific temperature calculated using the QHGK method[139]. (c, d) The temperature-dependent phonon spectrum of GeTe[140]. (e) The changes in A_1 and E optical phonon modes with temperature calculated using the TDEP method and compared with experimental results[140]. (f) The thermal conductivity of amorphous and crystalline GeTe calculated using the Green-Kubo method[140]

综上所述，对 PCMs 的 MLP 性能预测需要构建如下系统性的验证与评估框架：

1) 构建 PCMs 专属的标准化训练数据集：覆盖“成分–结构–温度–压力”全空间，确保 DFT 数据精度；

2) 建立多维度误差评估指标：除能量/力的 RMSE 外，增加“性质相关误差”(如结晶温度误差、扩散系数误差)、“尺度累积误差”(不同体系规模下的误差变化率)，并与 DFT 和实验数据直接对比；

3) 强化稳定性与泛化性测试：通过温度外推测试、成分外推测试、长时间漂移测试(10 ns 模拟中能量/结构的稳定性)来评估 MLP；

4) 构建 DFT–MLP–实验闭环优化体系：通过主动学习策略，让 MLP 自动筛选高不确定性、高科学价值的结构(如新型掺杂剂的界面结构)，用 DFT 补充高精度数据，再通过实验验证，持续提升 MLP 的精度与泛化性。

3 相变材料的器件级模拟和设计

机器学习的发展为 PCMs 器件级研发搭建了从微观原子行为解析到宏观功能精准落地的关键桥梁，也为 PCMs 器件逆向设计提供了发展通道，成为突破传统器件设计瓶颈的核心驱动力。这一技术革新既解决了传统实验难以捕捉器件内部动态演化的难题，又实现了从材料特性到器件性能的高效迭代优化。通过器件级尺度的原子级建模[115]，精准模拟 PCMs 在热循环、置位/复位编程等实际工作条件下的相变过程、材料与电极界面互扩散行为[141]、薄膜沉积生长机制等关键环节[4]，清晰揭示器件性能与原子排列、键合特征及界面反应的内在关联；依托机器学习算法的强大数据处理与优化能力，针对神经拟态计算、光子学等不同应用场景，实现器件结构参数的逆向设计、多目标性能平衡(如功耗、速度、稳定性)及新型功能器件的创新开发，尤其在 PCMs 忆阻器神经网络优化、可调谐光子超表面设计等领域取得显著突破[114, 142]。

3.1 器件级尺度的原子级建模

MLP 用于 PCMs 器件级模拟，是材料科学与计算建模领域的变革性进展[115, 143]。该方法填补了理论精度与计算效率之间的鸿沟，可模拟实际器件尺度下的复杂材料行为，还能为定制材料成分与结构提供参考，进而提升存储器件的基础性能、稳定性与耐久性。Zhou 等[115]采用 MLP 在器件相关条件下模拟多种 GST 成分，涵盖不同热循环及置位、复位等操作。该研究实现了超 50 万个原子的器件级模型模拟，能描述 PCMs 器件中的关键过程；通过模拟累积置位与迭代复位过程，揭示了非等温加热的原子级机制与效应，包括温度梯度模拟及不同编程脉冲对材料结构变化的影响(见图 6a)。模型精准捕捉了影响电子能带结构的 Peierls 畸变，还阐明了原子排列变化(如同极键与异极键的形成与解离)等键合特征与结构转变细节，后续可进一步探究 PCMs 器件的长期可靠性与失效机制。Achar 等[144]开发了 Ge-Se 的矩张量势(Moment Tensor Potential, MTP)，用于研究 Ge-Se 合金与 Ti 电极的相互作用。模拟发现界面存在显著互扩散，Ti 与 Se 跨边界迁移形成明显的 Ti-Se 区与 Se 耗尽型 Ge-Se 区(见图 6b)；该互扩散呈自限生长特性，Ti-Se 层互扩散的活化能仅 0.1 eV，这一过程会显著影响相关存储器件的稳定性与性能，对提升 PCRAM 器件中选择器与存储单元的耐久性至关重要。Perego 等[145]采用 MD 模拟 GeTe 非晶的磁控溅射生长过程，研究原子在基底上的沉积过程，模拟体系含最多 8000 个原子。研究通过改变入射原子动能分析其对薄膜结构的影响：在 1.5～10.0 eV 测试范围内，薄膜结构特性对入射原子能量依赖较小；低动能(25 meV)沉积形成多孔柱状结构，而在 1.5～10.0 eV 典型动能下形成高密度薄膜。研究表明，实验中观察到的沉积态与熔融退火样品的结晶动力学差异，可能并非源于本征多态性，而是因为熔淬态样品中存在预成型晶核(见图 6c)。

当前器件级尺度原子级建模的核心价值是捕捉原子级关键过程(如器件尺度相变中的原子重排、原子界面扩散等)，但与真实器件工况相比存在一些局限性：1) 模拟参数与真实器件工况缺乏定量映射关系，模拟中多采用均匀温度场设定[115]，但真实 PCMs 器件的温度源于电脉冲焦耳热，呈现局部非均匀分布，且温度随脉冲宽度、幅度的动态变化无法被简单恒温/梯度模型完全复刻；模拟建模多简化或忽略电场作用(如仅聚焦热驱动的原子扩散、相变)，但真实 PCMs 器件中，电脉冲不仅提供热量，还会产生电场驱动载流子迁移、原子极化，甚至影响相变动力学；模拟的边界条件多为周期性边界或理想界面，而真实器件存在电极、界面层，边界处的元素互扩散、应力传导(如热膨胀不匹配导致的界面应力)更为复杂，且边界条件随器件工作周期动态演变；模拟中 PCMs 的初始结构(如非晶态纯度、缺陷密度)多为理想模型，但真实器件中 PCMs 薄膜的初始状态受沉积工艺(磁控溅射、蒸镀)影响，存在自

然缺陷(空位、悬键)、界面混合层，这些初始状态差异会显著影响相变效率与可靠性。2) 目前的器件级原子建模往往局限于单一物理场的描述，真实器件中存在多场强耦合：器件级原子建模无法整合 PCMs 器件工作时的热–电–结构–化学多场耦合效应。真实 PCMs 器件中，电脉冲触发的“焦耳热(热场)–原子热振动与扩散(结构场)–载流子输运与电导率变化(电场)–界面元素化学反应(化学场)”是同步发生的，而模拟无法考虑电场，导致了对相变速度、界面稳定性的预测偏差；此外，真实器件的电阻变化不仅依赖原子结构(如晶化度)，还与载流子浓度、迁移率相关，模拟仅捕捉结构变化，未关联电学性能的动态演变。3) 模拟难以覆盖真实器件的长时和宏观需求。模拟的时间跨度多为 ns 级，而真实 PCMs 器件的工作周期包含单次相变(ns 级)–长期数据保留(年级)–循环读写(10^6 次以上)[5]，模拟无法覆盖长时可靠性相关过程；尽管可以实现器件级规模模拟，但仍局限于 PCMs 存储单元核心区域，未包含真实器件的宏观结构，如电极布线、封装层等，而宏观结构的热传导、电场分布会间接影响核心区域的工况，导致模拟结果的局部性偏差。

综上所述，未来建模需围绕工况映射、多物理场耦合、时空尺度、性能验证闭环展开。当前器件级尺度原子级建模的核心价值是捕捉原子级关键过程(如相变中的晶格重排、界面扩散)。未来发展需以多物理场耦合建模为核心，依托机器学习势函数的高精度与高效性，打通宏观器件工况–微观原子行为–器件宏观性能的链路，实现从定性描述到定量预测的转变，最终为 PCMs 器件的低功耗、长寿命、高可靠性设计提供直接支撑。

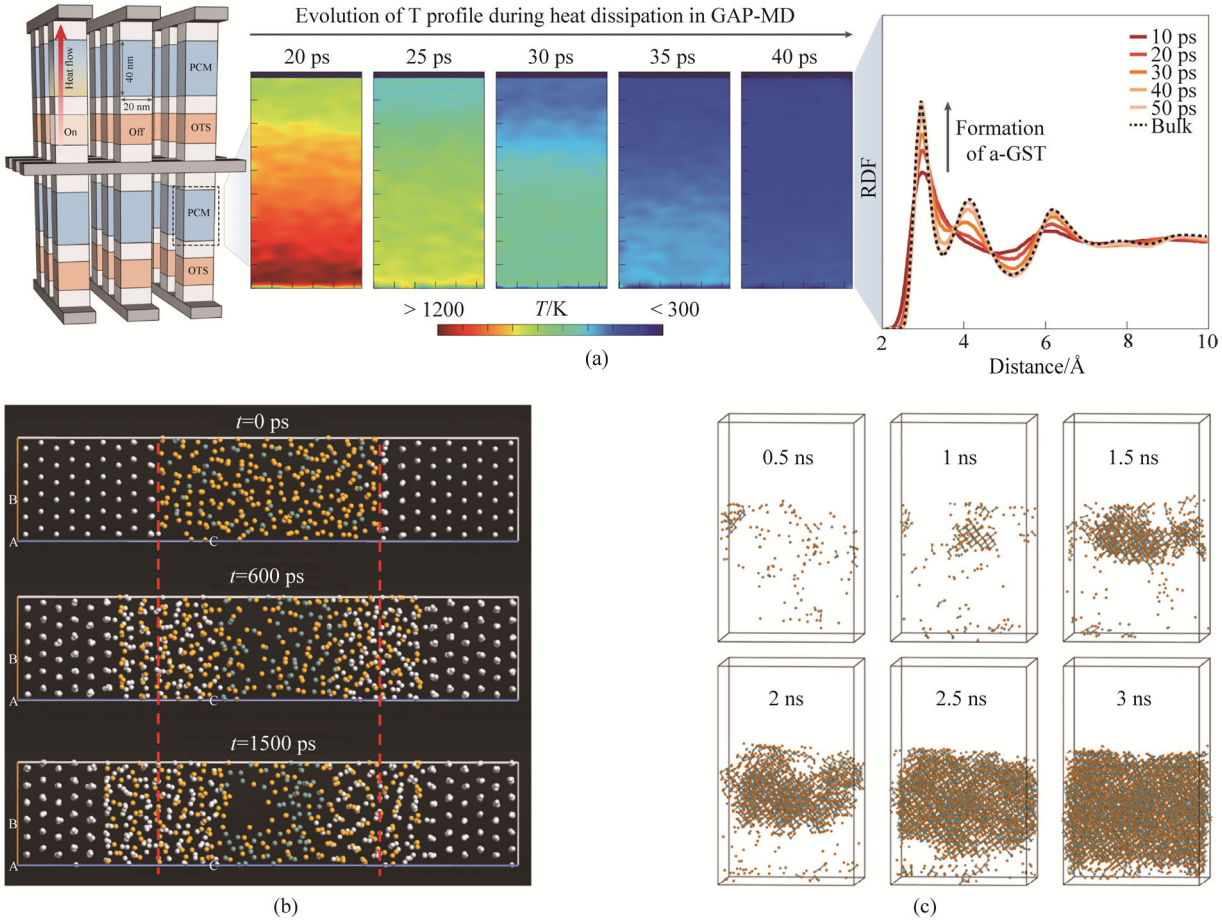


图 6　(a)与相变存储器单元尺寸相匹配的 $Ge_1Sb_2Te_4$ 晶态存储单元的熔化过程[115]。(b)在 T = 500 K 时进行 1.5 ns 的 MD 模拟期间 Ti-$Ge_{20}Se_{80}$ 界面的动力学演变[144]。(c)在 600 K 时不同时间点沉积模型模拟中通过键有序参数数学方程识别出的晶体原子的快照[145]

Fig. 6　(a) Melting process of the $Ge_1Sb_2Te_4$ crystalline memory cell that matches the size of the phase change memory cell[115]. (b) Dynamic evolution of the Ti-$Ge_{20}Se_{80}$ interface during MD simulation of 1.5 ns at T = 500 K[144]. (c) Snapshots of crystal atoms identified through the mathematical equation of bond-ordered parameters in the deposition model simulation at different time points at 600 K[145]

3.2 机器学习驱动的器件设计

神经拟态计算通过融合计算与存储架构，有望突破传统冯·诺依曼架构局限，在人工智能领域极具潜力[146]。硫系化物 PCMs 因开关速度快、耐久性强、能效高，在神经拟态器件研发中应用前景广阔[24, 25, 33, 147–151]，其状态可调特性可模拟突触功能与神经元放电模式(见图 7a)，且兼容性强、易与现有半导体工艺集成，可满足实际应用需求。Lim 等[152]将 PCMs 忆阻器集成到神经网络中，提出自发稀疏学习(Spontaneous Sparse Learning, SSL)方案，利用 PCMs 固有的电阻漂移特性，在不增加计算成本的前提下优化网络训练(见图 7b)。研究构建 39 nm 1 Gb

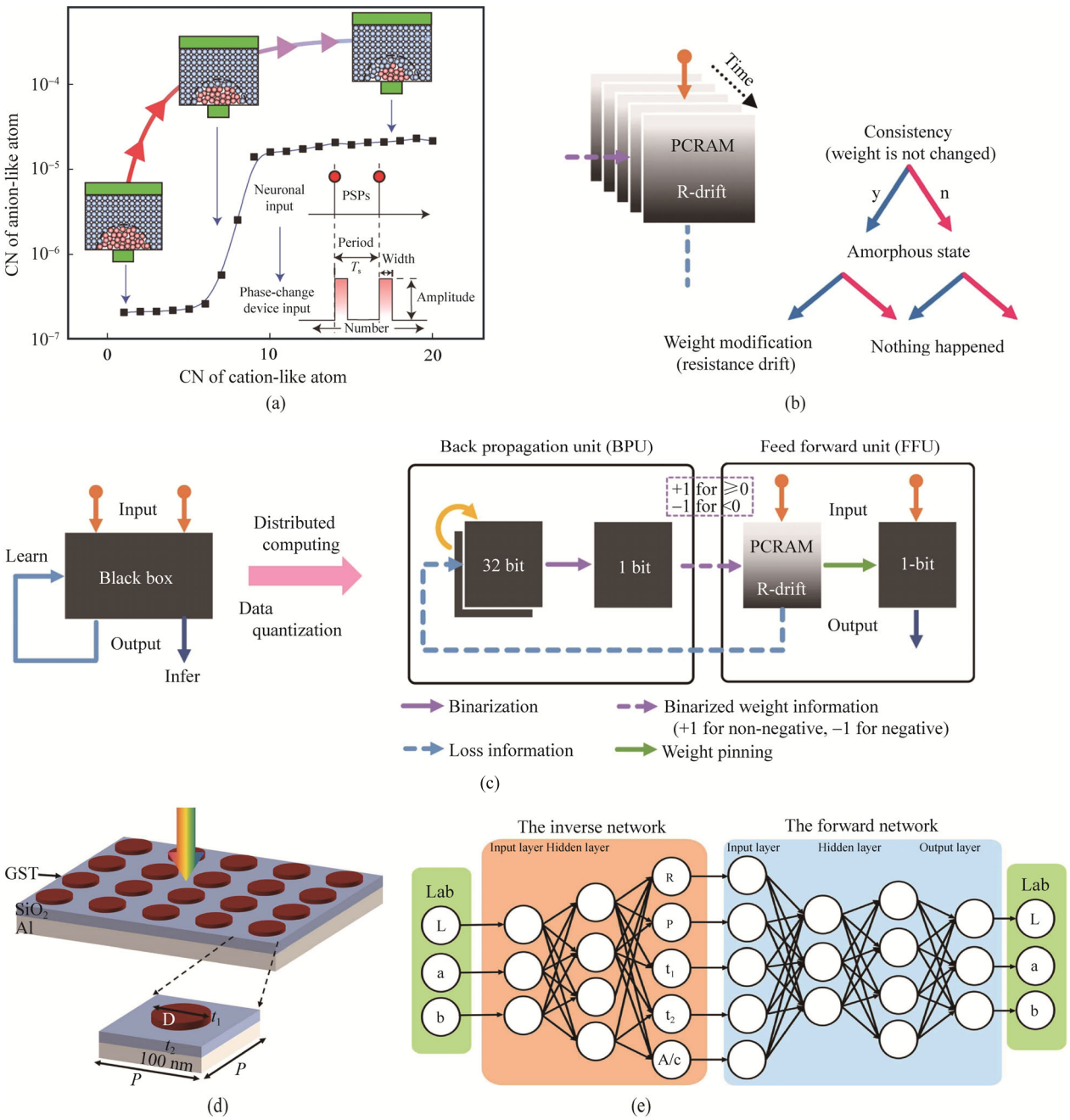


图 7 (a)相变存储器件导电性随结晶脉冲次数变化的演变过程[24]。(b)电阻漂移引起的权重变化[152]。(c)传统的神经网络被分为具有 32 位权重存储的反向传播网络和包含电阻漂移的前馈型网络[152]。(d) GST 基超表面吸收器示意图[157]。(e)串联神经网络架构[157]

Fig. 7 (a) The evolution process of the conductivity of the phase change memory device varying with the number of crystallization pulses[24]. (b) Weight changes caused by resistance drift[152]. (c) Traditional neural networks are classified into back-propagation networks with 32-bit weight storage and feed-forward networks with resistance drift[152]. (d) Schematic diagram of GST-based metasurface absorber[157]. (e) Tandem neural network architecture[157]

PCMs 忆阻器阵列(784-256-10 多层感知器结构)，该网络在用于手写数字识别的 MNIST(修改国家标准与技术研究所)数据集上进行了严格的测试。SSL 使分类准确率从 89.6%提升至 93.2%，并有效调控权重稀疏性，证实了电阻漂移可对神经网络训练发挥积极作用(见图 7c)。Lin 等[153]将 Ge-Ga-Sb(GGS)化合物集成到脉冲神经网络(Spiking Neural Network, SNN)中，该化合物在定制电脉冲作用下呈现突变与渐进式电阻变化，可在单一器件中同时模拟神经元尖峰与突触权重存储，简化 SNN 架构(无需分离突触与神经元组件)。这种全 PCMs 的 SNN 在标准模式识别测试中准确率达 90%，且 GGS 稳定性高、电阻漂移小，提升了器件可靠性与寿命，为类脑计算系统发展了奠定基础。

机器学习在 PCMs 器件设计中发挥重要作用[142, 154–156]。PCMs 材料选择面的广泛性以及器件参数的可调控数量多使超表面等纳米光子结构的逆向设计难度增加[141, 142, 154]。GST 基超表面吸收器可实现动态结构色生成，其晶态与非晶态的折射率差异支持光谱可逆调谐，器件由 SiO_2/Al 基底上的周期性 GST 纳米盘构成，几何参数(直径、高度、周期、SiO_2 厚度)对宽色域调控至关重要(见图 7d)。Prakash 等[157]开发串联神经网络框架，从目标 CIE Lab 色系预测几何参数(见图 7e)，并通过重建光学响应的预训练前馈网络进行验证。该架构解决了 PCMs 优化中的非唯一性难题，精度实现 $\Delta E_{2000} < 1.27$，设计时间较传统电磁仿真大幅缩短。Panda 等[60]采用 ANN 快速扫描海量参数空间，筛选最优设计方案。研究考虑 4 种 PCMs 的全非晶与全晶态，以及任意指定的多边形超原子形状，覆盖广阔结构/材料设计空间，实现材料选择与器件几何的同步优化，高效获得目标光学特性的 PCMs 基超表面。Huang 等[158]优化 PCMs-法诺共振光学涂层(Fano Resonance Optical Coatings, FROCs)的四层厚度(Sb_2Se_3、Ag、ITO、Ag，厚度范围为 1～150 nm)，目标包括最大化峰值透射率、相变峰移、半峰全宽。尽管 PCMs 固有光学损耗使优化难度增加，但该方法仍筛选出平衡上述目标的结构，彰显了机器学习在复杂光学结构设计中的潜力。

4　讨论与展望

大数据分析与机器学习方法的融合，为硫系 PCMs 研究带来革命性变革。通过计算数据探索，可高效筛选潜在掺杂剂、预测材料性能关键特性，既为 PCMs 成分与结构优化提供了理论支撑，又能指导实验方向，加速高性能新型材料的发现。大规模模拟深化了对 PCMs 相变动力学与热力学特性的理解，揭示了结晶过程中的原子级细节，以及温度、压力、器件几何等因素的影响，为设计性能、稳定性与耐久性更优的 PCMs 基器件奠定了基础。在器件级模拟与设计领域，机器学习发挥了关键作用，能弥合理论模型与实际应用之间的鸿沟，助力存储器件优化及 PCMs 在神经形态计算中的潜力挖掘，为先进计算架构发展开辟新路径。尽管已取得显著进展，仍存在挑战与机遇：核心挑战是提升机器学习模型的精度与可靠性，需持续扩充优化数据集、开发更先进的机器学习算法；同时，PCMs 的复杂性(尤其是在实际器件环境中)要求构建更全面的多尺度模拟模型，以捕捉所有相关物理现象。

尽管本综述中机器学习在加速新 PCMs 发现、优化器件设计及揭示原子尺度机制方面取得显著进展，但要实现其实际应用仍需解决若干关键问题。首先，数据缺口问题突出：实际工况下的电阻漂移分布等器件级实验数据仍较匮乏，限制了机器学习模型的泛化能力与实际器件行为预测可靠性[27]。其次，多物理场耦合构成核心障碍：PCMs 器件中热、电、结构效应的复杂相互作用，难以被当前多局限于单一物理域模拟的 MLP 框架捕捉[159]，开发可整合多域动力学的跨物理场联合模型，对精准表征复杂器件行为、实现下一代 PCMs 系统的物理设计至关重要。最后，多数机器学习模型具有固有黑箱特性，难以总结物理规律[95]，例如 ANN 虽成功预测了硫系化物玻璃中 MGS 的起源(见图 2c 和图 2d)，但相关结构基元(如中程有序中破坏的 8-N 规则)仍需密度泛函理论验证补充。

未来，大数据与机器学习将持续拓展硫系 PCMs 的研究领域。硫系 PCMs 中的晶–晶转变意义重大[87]，晶–晶转变的转换过程功耗更低、热稳定性更优(如超晶格 PCRAM 能耗降低)；因无熔融或过冷液相，原子迁移及相关失效减少，循环耐久性更优，且光电信号稳定性提升，不易发生电阻漂移。晶–晶转变已在 Ge-Sb-Te 合金[160]、二元合金(In_2Se_3[161], MnTe[162], $MoTe_2$[163], Y-Sb_2Te_3[5])及超晶格 PCMs[133]中被观测到，但 PCMs 可逆 CCPT 研究仍处于初期，结构与机制认知面临挑战。未来需聚焦 PCMs 晶体结构预测以加速晶–晶转变机制研究。传统的晶体结构预测方法通常依赖于密度泛函理论和全局优化算法，包括结构生成、局部结构优化和

全局结构搜索等步骤。然而，局部结构优化是非常耗时的。而 MLP 兼具 DFT 高精度与经验力场高效率，可大幅缩短计算时间、拓宽搜索范围[95]，未来将有更多机器学习辅助 PCMs 晶体结构预测的研究。总体而言，大数据分析与机器学习辅助的硫系 PCMs 领域有望持续发展创新。

参考文献:

[1] OVSHINSKY S R. Reversible electrical switching phenomena in disordered structures[J]. Phys Rev Lett, 1968, 21(20): 1450–1453.

[2] YAMADA N. Origin, secret, and application of the ideal phase-change material GeSbTe[J]. Phys Status Solidi B, 2012, 249(10): 1837–1842.

[3] SUN Z M, ZHOU J, MAO H K, et al. Peierls distortion mediated reversible phase transition in GeTe under pressure[J]. Proc Natl Acad Sci USA, 2012, 109(16): 5948–5952.

[4] SONG Z T, SONG S N, ZHU M, et al. From octahedral structure motif to sub-nanosecond phase transitions in phase change materials for data storage[J]. Sci China Inf Sci, 2018, 61(8): 081302.

[5] LIU B, LI K Q, LIU W L, et al. Multi-level phase-change memory with ultralow power consumption and resistance drift[J]. Sci Bull, 2021, 66(21): 2217–2224.

[6] LIU B, LI K Q, ZHOU J, et al. Ultrahigh overall-performance phase-change memory by yttrium dragging[J]. J Mater Chem C, 2023, 11(4): 1360–1368.

[7] LIU B, LIU W L, LI Z, et al. Y-doped Sb_2Te_3 phase-change materials: Toward a universal memory[J]. ACS Appl Mater Interfaces, 2020, 12(18): 20672–20679.

[8] LIU B, HU S W, ZHOU J, et al. Polarity-dependent resistance switching in crystalline $Ge_1Sb_4Te_7$ film[J]. AIP Adv, 2019, 9(3): 035131.

[9] SARWAT S G. Materials science and engineering of phase change random access memory[J]. Mater Sci Technol, 2017, 33(16): 1890–1906.

[10] ELLIOTT S R. Chalcogenide phase-change materials: Past and future[J]. Int J Appl Glass Sci, 2015, 6(1): 15–18.

[11] NOÉ P, VALLÉE C, HIPPERT F, et al. Phase-change materials for non-volatile memory devices: From technological challenges to materials science issues[J]. Semicond Sci Technol, 2018, 33(1): 013002.

[12] NEALE R G, ASELTINE J A. The application of amorphous materials to computer memories[J]. IEEE Trans Electron Devices, 1973, 20(2): 195–205.

[13] LENCER D, SALINGA M, GRABOWSKI B, et al. A map for phase-change materials[J]. Nat Mater, 2008, 7(12): 972–977.

[14] PIROVANO A, LACAITA A L, BENVENUTI A, et al. Electronic switching in phase-change memories[J]. IEEE Trans Electron Devices, 2004, 51(3): 452–459.

[15] ABDOLLAHRAMEZANI S, HEMMATYAR O, TAGHINEJAD H, et al. Tunable nanophotonics enabled by chalcogenide phase-change materials[J]. Nanophotonics, 2020, 9(5): 1189–1241.

[16] LIU B, WEI T, HU J, et al. Universal memory based on phase-change materials: From phase-change random access memory to optoelectronic hybrid storage[J]. Chin Phys B, 2021, 30(5): 058504.

[17] WUTTIG M, BHASKARAN H, TAUBNER T. Phase-change materials for non-volatile photonic applications[J]. Nature Photon, 2017, 11(8): 465–476.

[18] WANG D N, ZHAO L, YU S Y, et al. Non-volatile tunable optics by design: From chalcogenide phase-change materials to device structures[J]. Mater Today, 2023, 68: 334–355.

[19] PITCHAPPA P, KUMAR A, PRAKASH S, et al. Chalcogenide phase change material for active terahertz photonics[J]. Adv Mater, 2019, 31(12): 1808157.

[20] AYYANAR N, SREEKANTH K V, RAJA G T, et al. Photonic crystal fiber-based reconfigurable biosensor using phase change material[J]. IEEE Trans Nanobioscience, 2021, 20(3): 338–344.

[21] KIM H J, JULIAN M, WILLIAMS C, et al. Versatile spaceborne photonics with chalcogenide phase-change materials[J]. NPJ Microgravity, 2024, 10(1): 20.

[22] CAO T, CEN M J. Fundamentals and applications of chalcogenide phase-change material photonics[J]. Adv Theory Simul, 2019, 2(8): 1900094.

[23] GERISLIOGLU B, BAKAN G, AHUJA R, et al. The role of $Ge_2Sb_2Te_5$ in enhancing the performance of functional plasmonic devices[J]. Mater Today Phys, 2020, 12: 100178.

[24] XU M, MAI X L, LIN J, et al. Recent advances on neuromorphic devices based on chalcogenide phase-change materials[J]. Adv Funct Mater, 2020, 30(50): 2003419.

[25] BRÜCKERHOFF-PLÜCKELMANN F, FELDMANN J, WRIGHT C D, et al. Chalcogenide phase-change devices for neuromorphic photonic computing[J]. J Appl Phys, 2021, 129(15): 151103.

[26] WUTTIG M, YAMADA N. Phase-change materials for rewriteable data storage[J]. Nat Mater, 2007, 6(11): 824–832.

[27] ZHANG W, MA E. Unveiling the structural origin to control resistance drift in phase-change memory materials[J]. Mater Today, 2020, 41: 156–176.

[28] ZHANG W, YU R, ZHANG H J, et al. First-principles studies of the three-dimensional strong topological insulators Bi_2Te_3, Bi_2Se_3 and Sb_2Te_3[J]. New J Phys, 2010, 12(6): 065013.

[29] SA B S, ZHOU J, SUN Z, et al. Pressure-induced topological insulating behavior in ternary chalcogenide $Ge_2Sb_2Te_5$[J]. Phys Rev B, 2011, 84(8): 085130.

[30] TSAFACK T, PICCININI E, LEE B S, et al. Electronic, optical and thermal properties of the hexagonal and rocksalt-like $Ge_2Sb_2Te_5$ chalcogenide from first-principle calculations[J]. J Appl Phys, 2011, 110(6): 063716.

[31] NGUYEN L T, MAKOV G. GeS phases from first-principles: Structure prediction, optical properties, and phase transitions upon compression[J]. Cryst Growth Des, 2022, 22(8): 4956–4969.

[32] SIEGRIST T, JOST P, VOLKER H, et al. Disorder-induced localization in crystalline phase-change materials[J]. Nat Mater, 2011, 10(3): 202–208.

[33] ZHANG W, MAZZARELLO R, WUTTIG M, et al. Designing crystallization in phase-change materials for universal memory and neuro-inspired computing[J]. Nat Rev Mater, 2019, 4(3): 150–168.

[34] ZHOU J, SUN Z, PAN Y, et al. Vacancy or not: An insight on the intrinsic vacancies in rocksalt-structured GeSbTe alloys from *ab initio* calculations[J]. EPL Europhys Lett, 2011, 95(2): 27002.

[35] SA B S, ZHOU J, SUN Z, et al. Strain-induced topological insulating behavior in ternary chalcogenide $Ge_2Sb_2Te_5$[J]. EPL Europhys Lett, 2012, 97(2): 27003.

[36] SA B S, ZHOU J, AHUJA R, et al. First-principles investigations of

electronic and mechanical properties for stable $Ge_2Sb_2Te_5$ with van der Waals corrections[J]. Comput Mater Sci, 2014, 82: 66–69.

[37] SA B S, ZHOU J, SUN Z M. First-principle investigation on the secondary bond in stable mGeTe·$n$$Sb_2Te_3$ pseudo-binary chalcogenides[J]. Mater Sci Forum, 2015, 817: 778–783.

[38] HE S X, ZHU L G, ZHOU J, et al. Metastable stacking-polymorphism in $Ge_2Sb_2Te_5$[J]. Inorg Chem, 2017, 56(19): 11990–11997.

[39] LI Z, MIAO N H, ZHOU J, et al. High thermoelectric performance of few-quintuple Sb_2Te_3 nanofilms[J]. Nano Energy, 2018, 43: 285–290.

[40] HUANG Y D, ZHOU J, PENG L Y, et al. Antibonding-induced anomalous temperature dependence of the band gap in crystalline $Ge_2Sb_2Te_5$[J]. J Phys Chem C, 2021, 125(35): 19537–19543.

[41] LI K Q, PENG L Y, ZHU L G, et al. Vacancy-mediated electronic localization and phase transition in cubic Sb_2Te_3[J]. Mater Sci Semicond Process, 2021, 135: 106052.

[42] TAO W, LI K Q, HU J, et al. High optical/color contrast of Sb_2Te thin film and its structural origin[J]. Mater Sci Semicond Process, 2022, 144: 106619.

[43] LI K Q, LIU B, ZHOU J, et al. Diffusion-assisted displacive transformation in Yttrium-doped Sb_2Te_3 phase change materials[J]. Acta Mater, 2023, 249: 118809.

[44] SUN Z M, ZHOU J, BLOMQVIST A, et al. Formation of large voids in the amorphous phase-change memory $Ge_2Sb_2Te_5$ alloy[J]. Phys Rev Lett, 2009, 102(7): 075504.

[45] SA B S, ZHOU J, SUN Z M, et al. Topological insulating in GeTe/Sb_2Te_3 phase-change superlattice[J]. Phys Rev Lett, 2012, 109(9): 096802.

[46] DING K Y, WANG J J, ZHOU Y X, et al. Phase-change heterostructure enables ultralow noise and drift for memory operation[J]. Science, 2019, 366(6462): 210–215.

[47] SUN Z M, PAN Y C, ZHOU J, et al. Origin of p-type conductivity in layered nGeTe·$m$$Sb_2Te_3$ chalcogenide semiconductors[J]. Phys Rev B, 2011, 83(11): 113201.

[48] SUN Z M, ZHOU J, AHUJA R. Structure of phase change materials for data storage[J]. Phys Rev Lett, 2006, 96(5): 055507.

[49] JONES R O. Density functional theory: Its origins, rise to prominence, and future[J]. Rev Mod Phys, 2015, 87(3): 897–923.

[50] LECUN Y, BENGIO Y, HINTON G. Deep learning[J]. Nature, 2015, 521(7553): 436–444.

[51] DAI M Y, DEMIREL M F, LIU X H, et al. Graph neural network for predicting the effective properties of polycrystalline materials: A comprehensive analysis[J]. Comput Mater Sci, 2023, 230: 112461.

[52] ZHANG B Y, ZHOU M S, WU J Z, et al. Predicting the materials properties using a 3D graph neural network with invariant representation[J]. IEEE Access, 2022, 10: 62440–62449.

[53] ZHU L G, ZHOU J, SUN Z M. Materials data toward machine learning: Advances and challenges[J]. J Phys Chem Lett, 2022, 13(18): 3965–3977.

[54] WEI J, CHU X, SUN X Y, et al. Machine learning in materials science[J]. InfoMat, 2019, 1(3): 338–358.

[55] CHENG Y X, ZHU L G, WANG G J, et al. Vacancy formation energy and its connection with bonding environment in solid: A high-throughput calculation and machine learning study[J]. Comput Mater Sci, 2020, 183: 109803.

[56] XU M, XU M, MIAO X S. Deep machine learning unravels the structural origin of mid-gap states in chalcogenide glass for high-density memory integration[J]. InfoMat, 2022, 4(6): e12315.

[57] TRIPATHI D, VYAS H S, KUMAR S, et al. Recent developments in Chalcogenide phase change material-based nanophotonics[J]. Nanotechnology, 2023, 34(50): 502001.

[58] ABOU EL KHEIR O, BONATI L, PARRINELLO M, et al. Unraveling the crystallization kinetics of the $Ge_2Sb_2Te_5$ phase change compound with a machine-learned interatomic potential[J]. NPJ Comput Mater, 2024, 10: 33.

[59] LI K Q, LIU B, ZHOU J, et al. Revealing the crystallization dynamics of Sb–Te phase change materials by large-scale simulations[J]. J Mater Chem C, 2024, 12(11): 3897–3906.

[60] PANDA S S, KUMAR S, TRIPATHI D, et al. Deep learning aids simultaneous structure–material design discovery: A case study on designing phase change material metasurfaces[J]. J Nanophoton, 2023, 17(3): 036006.

[61] SOSSO G C, BERNASCONI M. Harnessing machine learning potentials to understand the functional properties of phase-change materials[J]. MRS Bull, 2019, 44(9): 705–709.

[62] MOCANU F, KONSTANTINOU K, LEE T H, et al. Modeling the phase-change memory material, $Ge_2Sb_2Te_5$, with a machine-learned interatomic potential[J]. J Phys Chem B, 2018, 122(38): 8998–9006.

[63] WANG G J, WANG C R, ZHANG X G, et al. Machine learning interatomic potential: Bridge the gap between small-scale models and realistic device-scale simulations[J]. iScience, 2024, 27(5): 109673.

[64] YU W, JI C Y, WAN X H, et al. Machine-learning-based interatomic potentials for advanced manufacturing[J]. Int J Mech Syst Dyn, 2021, 1(2): 159–172.

[65] YU W, ZHANG Z F, WAN X H, et al. High-accuracy machine-learned interatomic potentials for the phase change material $Ge_3Sb_6Te_5$[J]. Chem Mater, 2023, 35(17): 6651–6658.

[66] SOSSO G C, DERINGER V L, ELLIOTT S R, et al. Understanding the thermal properties of amorphous solids using machine-learning-based interatomic potentials[J]. Mol Simul, 2018, 44(11): 866–880.

[67] DRAGONI D, BEHLER J, BERNASCONI M. Mechanism of amorphous phase stabilization in ultrathin films of monoatomic phase change material[J]. Nanoscale, 2021, 13(38): 16146–16155.

[68] PALUMBO E, ZULIANI P, BORGHI M, et al. Forming operation in Ge-rich $Ge_xSb_yTe_z$ phase change memories[J]. Solid State Electron, 2017, 133: 38–44.

[69] NOÉ P, SABBIONE C, BERNIER N, et al. Impact of interfaces on scenario of crystallization of phase change materials[J]. Acta Mater, 2016, 110: 142–148.

[70] ABOU EL KHEIR O, BERNASCONI M. High-throughput calculations on the decomposition reactions of off-stoichiometry GeSbTe alloys for embedded memories[J]. Nanomaterials, 2021, 11(9): 2382.

[71] YAMADA N, OHNO E, NISHIUCHI K, et al. Rapid-phase transitions of GeTe-Sb_2Te_3 pseudobinary amorphous thin films for an optical disk memory[J]. J Appl Phys, 1991, 69(5): 2849–2856.

[72] HU J, LIN C, PENG L Y, et al. Cr-doped Sb_2Te materials promising for high performance phase-change random access memory[J]. J Alloys Compd, 2022, 908: 164593.

[73] PENG L Y, LI Z, WANG G J, et al. Reduction in thermal conductivity of Sb_2Te phase-change material by scandium/yttrium doping[J]. J Alloys Compd, 2020, 821: 153499.

[74] WANG G J, ZHOU J, SUN Z M. First principles investigation on anomalous lattice shrinkage of W alloyed rock salt GeTe[J]. J Phys

Chem Solids, 2020, 137: 109220.

[75] WANG G J, ZHOU J, ELLIOTT S R, et al. Role of carbon-rings in polycrystalline $GeSb_2Te_4$ phase-change material[J]. J Alloys Compd, 2019, 782: 852–858.

[76] ZHANG L C, MIAO N H, ZHOU J, et al. Insight into the role of W in amorphous GeTe for phase-change memory[J]. J Alloys Compd, 2018, 738: 270–276.

[77] LI Z, MIAO N H, ZHOU J, et al. Reduction of thermal conductivity in $Y_xSb_{2-x}Te_3$ for phase change memory[J]. J Appl Phys, 2017, 122(19): 195107.

[78] LI Z, SI C, ZHOU J, et al. Yttrium-doped Sb_2Te_3: A promising material for phase-change memory[J]. ACS Appl Mater Interfaces, 2016, 8(39): 26126–26134.

[79] ZHANG L C, SA B S, ZHOU J, et al. Atomic scale insight into the amorphous structure of Cu doped GeTe phase-change material[J]. J Appl Phys, 2014, 116(15): 153501.

[80] ZHU L G, LI Z, ZHOU J, et al. Insight into the role of oxygen in the phase-change material GeTe[J]. J Mater Chem C, 2017, 5(14): 3592–3599.

[81] WANG B, WANG G J, ZHU L G, et al. Origin of the concentration-dependent effects of N on the stability and electrical resistivity in polycrystalline $Ge_1Sb_2Te_4$[J]. J Mater Chem C, 2022, 10(10): 3971–3979.

[82] LI X L, RAO F, SONG Z T, et al. Instability of nitrogen doped Sb_2Te_3 for phase change memory application[J]. J Appl Phys, 2011, 110(9): 094318.

[83] RAO F, DING K Y, ZHOU Y X, et al. Reducing the stochasticity of crystal nucleation to enable subnanosecond memory writing[J]. Science, 2017, 358(6369): 1423–1427.

[84] HU S W, LIU B, LI Z, et al. Identifying optimal dopants for Sb_2Te_3 phase-change material by high-throughput *ab initio* calculations with experiments[J]. Comput Mater Sci, 2019, 165: 51–58.

[85] HU S W, XIAO J K, ZHOU J, et al. Synergy effect of co-doping Sc and Y in Sb_2Te_3 for phase-change memory[J]. J Mater Chem C, 2020, 8(20): 6672–6679.

[86] XU Y Z, WANG X D, ZHANG W, et al. Materials screening for disorder-controlled chalcogenide crystals for phase-change memory applications[J]. Adv Mater, 2021, 33(9): 2006221.

[87] LIU B, LI K Q, ZHOU J, et al. Reversible crystalline-crystalline transitions in chalcogenide phase-change materials[J]. Adv Funct Mater, 2024, 34(44): 2407239.

[88] FENG H D, PENG S, ZHAO Z Y, et al. Screening $(SbTe)_{1-x}NM_x$ solid solutions towards to phase-change memory materials applications: A high-throughput computational study[J]. J Electron Mater, 2023, 52(5): 3068–3082.

[89] CHEN Q Q, WANG G X, LIU Z J, et al. Optimizing large optical contrast in Ge-Se-Te films *via* high-throughput method[J]. Prog Nat Sci Mater Int, 2025, 35(1): 222–228.

[90] PIKE N A, MATT A, LØVVIK O M. Determining the optimal phase-change material *via* high-throughput calculations[J]. MRS Adv, 2019, 4(50): 2679–2687.

[91] PENG S, TAN Z L, ZHANG J M, et al. High-throughput computational screening of Sb–Te binary alloys for phase-change storage applications[J]. J Mater Res Technol, 2021, 15: 4243–4256.

[92] GAN Y, HUANG Y D, MIAO N H, et al. Novel IV–V–VI semiconductors with ultralow lattice thermal conductivity[J]. J Mater Chem C, 2021, 9(12): 4189–4199.

[93] MATSUNAGA T, YAMADA N, KOJIMA R, et al. Phase-change materials: Vibrational softening upon crystallization and its impact on thermal properties[J]. Adv Funct Mater, 2011, 21(12): 2232–2239.

[94] CHOI M, CHOI H, KWON S, et al. Effects of Y dopant on lattice distortion and electrical properties of In_3SbTe_2 phase-change material[J]. Phys Status Solidi RRL, 2017, 11(11): 1700275.

[95] SCHMIDT J, MARQUES M R G, BOTTI S, et al. Recent advances and applications of machine learning in solid-state materials science[J]. NPJ Comput Mater, 5(1): 83.

[96] WIECHA P R, ARBOUET A, GIRARD C, et al. Deep learning in nano-photonics: Inverse design and beyond[J]. Photon Res, 2021, 9(5): B182.

[97] GAN Y, WANG G J, ZHOU J, et al. Prediction of thermoelectric performance for layered IV-V-VI semiconductors by high-throughput *ab initio* calculations and machine learning[J]. NPJ Comput Mater, 2021, 7: 176.

[98] GAN Y, MIAO N H, ZHOU J, et al. New two-dimensional Ge–Sb–Te semiconductors with high photovoltaic performance for solar energy conversion[J]. J Mater Chem C, 2022, 10(44): 16813–16821.

[99] GAN Y, MIAO N H, LAN P H, et al. Robust design of high-performance optoelectronic chalcogenide crystals from high-throughput computation[J]. J Am Chem Soc, 2022, 144(13): 5878–5886.

[100] WANG G J, PENG L Y, LI K Q, et al. ALKEMIE: An intelligent computational platform for accelerating materials discovery and design[J]. Comput Mater Sci, 2021, 186: 110064.

[101] SUN Z M, WANG G J, ZHANG X G, et al. Novel material design and development accelerated by materials genome engineering[J]. J Beijing Univ Aeronaut Astronaut, 2022, 48(9): 1575–1588.

[102] WANG G J, LI K Q, PENG L Y, et al. High-throughput automatic integrated material calculations and data management intelligent platform and the application in novel alloys[J]. Acta Metall Sin, 2022, 58(1): 75–88.

[103] OWEN A E, ROBERTSON J M. Electronic conduction and switching in chalcogenide glasses[J]. IEEE Trans Electron Devices, 1973, 20(2): 105–122.

[104] MENZEL S, BÖTTGER U, WIMMER M, et al. Physics of the switching kinetics in resistive memories[J]. Adv Funct Mater, 2015, 25(40): 6306–6325.

[105] DING F, YANG Y Q, BOZHEVOLNYI S I. Dynamic metasurfaces using phase-change chalcogenides[J]. Adv Opt Mater, 2019, 7(14): 1801709.

[106] PATEL S K, PARMAR J, KATKAR V, et al. Ultra-broadband and polarization-insensitive metasurface absorber with behavior prediction using machine learning[J]. Alex Eng J, 2022, 61(12): 10379–10393.

[107] KIM H J, SOHN J W, HONG N N, et al. PCM-net: A refractive index database of chalcogenide phase change materials for tunable nanophotonic device modelling[J]. J Phys Photonics, 2021, 3(2): 024008.

[108] SUN Z M, ZHOU J, PAN Y C, et al. Pressure-induced reversible amorphization and an amorphous-amorphous transition in $Ge_2Sb_2Te_5$ phase-change memory material[J]. Proc Natl Acad Sci USA, 2011, 108(26): 10410–10414.

[109] RONNEBERGER I, ZHANG W, MAZZARELLO R. Crystal growth of $Ge_2Sb_2Te_5$ at high temperatures[J]. MRS Commun, 2018, 8(3): 1018–1023.

[110] SUN Z M. Amorphous structure melt-quenched from defective $Ge_2Sb_2Te_5$[J]. J Mater Sci, 2012, 47(21): 7635–7641.

[111] KALIKKA J, AKOLA J and JONES R O. Crystallization processes in the phase change material $Ge_2Sb_2Te_5$: Unbiased density functional/molecular dynamics simulations[J]. Phys Rev B, 2016, 94(13): 134105.

[112] DERINGER V L, BARTÓK A P, BERNSTEIN N, et al. Gaussian process regression for materials and molecules[J]. Chem Rev, 2021, 121(16): 10073–10141.

[113] BEHLER J. Four generations of high-dimensional neural network potentials[J]. Chem Rev, 2021, 121(16): 10037–10072.

[114] MOCANU F C, KONSTANTINOU K, ELLIOTT S R. Quench-rate and size-dependent behaviour in glassy $Ge_2Sb_2Te_5$ models simulated with a machine-learned Gaussian approximation potential[J]. J Phys D Appl Phys, 2020, 53(24): 244002.

[115] ZHOU Y X, ZHANG W, MA E, et al. Device-scale atomistic modelling of phase-change memory materials[J]. Nat Electron, 2023, 6(10): 746–754.

[116] ZHOU Y X, ZHANG H Y, DERINGER V L, et al. Structure and dynamics of supercooled liquid $Ge_2Sb_2Te_5$ from machine-learning-driven simulations[J]. Phys Status Solidi RRL, 2021, 15(3): 2000403.

[117] KONSTANTINOU K, MAVRAČIĆ J, MOCANU F C, et al. Simulation of phase-change-memory and thermoelectric materials using machine-learned interatomic potentials: Sb_2Te_3[J]. Phys Status Solidi B, 2021, 258(9): 2000416.

[118] KONSTANTINOU K, MOCANU F C, LEE T H, et al. Revealing the intrinsic nature of the mid-gap defects in amorphous $Ge_2Sb_2Te_5$[J]. Nat Commun, 2019, 10(1): 3065.

[119] ZHAO Y L, SUN J K, YANG L, et al. Umbrella sampling with machine learning potentials applied for solid phase transition of GeSbTe[J]. Chem Phys Lett, 2022, 803: 139813.

[120] WANG G J, SUN Y Q, ZHOU J, et al. PotentialMind: Graph convolutional machine learning potential for Sb–Te binary compounds of multiple stoichiometries[J]. J Phys Chem C, 2023, 127(51): 24724–24733.

[121] SOSSO G C, BEHLER J, BERNASCONI M. Breakdown of Stokes–Einstein relation in the supercooled liquid state of phase change materials[J]. Phys Status Solidi B, 2012, 249(10): 1880–1885.

[122] SOSSO G C, BEHLER J, BERNASCONI M. Atomic mobility in the overheated amorphous GeTe compound for phase change memories[J]. Phys Status Solidi A, 2016, 213(2): 329–334.

[123] CHEN Y H, CAMPI D, BERNASCONI M, et al. Atomistic study of the configurational entropy and the fragility of supercooled liquid GeTe[J]. Adv Funct Mater, 2024, 34(22): 2314264.

[124] WEI S, EVENSON Z, STOLPE M, et al. Breakdown of the Stokes-Einstein relation above the melting temperature in a liquid phase-change material[J]. Sci Adv, 2018, 4(11): eaat8632.

[125] WEI S, STOLPE M, GROSS O, et al. Structural evolution on medium-range-order during the fragile-strong transition in $Ge_{15}Te_{85}$[J]. Acta Mater, 2017, 129: 259–267.

[126] WEI S, PERSCH C, STOLPE M, et al. Violation of the Stokes–Einstein relation in $Ge_2Sb_2Te_5$, GeTe, $Ag_4In_3Sb_{67}Te_{26}$, and $Ge_{15}Sb_{85}$, and its connection to fast crystallization[J]. Acta Mater, 2020, 195: 491–500.

[127] PRIES J, WEBER H, BENKE-JACOB J, et al. Fragile-to-strong transition in phase-change material $Ge_3Sb_6Te_5$[J]. Adv Funct Mater, 2022, 32(31): 2202714.

[128] LEE D, LEE K, YOO D, et al. Crystallization of amorphous GeTe simulated by neural network potential addressing medium-range order[J]. Comput Mater Sci, 2020, 181: 109725.

[129] SOSSO G C, MICELI G, CARAVATI S, et al. Fast crystallization of the phase change compound GeTe by large-scale molecular dynamics simulations[J]. J Phys Chem Lett, 2013, 4(24): 4241–4246.

[130] SOSSO G C, COLOMBO J, BEHLER J, et al. Dynamical heterogeneity in the supercooled liquid state of the phase change material GeTe[J]. J Phys Chem B, 2014, 118(47): 13621–13628.

[131] SOSSO G C, SALVALAGLIO M, BEHLER J, et al. Heterogeneous crystallization of the phase change material GeTe *via* atomistic simulations[J]. J Phys Chem C, 2015, 119(11): 6428–6434.

[132] ACHARYA D, ABOU EL KHEIR O, CAMPI D, et al. Crystallization kinetics of nanoconfined GeTe slabs in GeTe/$TiTe_2$ -like superlattices for phase change memories[J]. Sci Rep, 2024, 14(1): 3224.

[133] SIMPSON R E, FONS P, KOLOBOV A V, et al. Interfacial phase-change memory[J]. Nat Nanotechnol, 2011, 6(8): 501–505.

[134] SOSSO G C, DONADIO D, CARAVATI S, et al. Thermal transport in phase-change materials from atomistic simulations[J]. Phys Rev B, 2012, 86(10): 104301.

[135] BOSONI E, CAMPI D, DONADIO D, et al. Atomistic simulations of thermal conductivity in GeTe nanowires[J]. J Phys D Appl Phys, 2020, 53(5): 054001.

[136] CAMPI D, DONADIO D, SOSSO G C, et al. Electron-phonon interaction and thermal boundary resistance at the crystal-amorphous interface of the phase change compound GeTe[J]. J Appl Phys, 2015, 117: 015304.

[137] INOUE R, KANAYA T, NISHIDA K, et al. Inelastic neutron scattering study of low energy excitations in polymer thin films[J]. Phys Rev Lett, 2005, 95(5): 056102.

[138] SIMONCELLI M, MAURI F, MARZARI N. Thermal conductivity of glasses: First-principles theory and applications[J]. NPJ Comput Mater, 2023, 9: 106.

[139] WANG C, CHEN Y. Thermal switching across the ultrafast amorphous to crystalline transition in $Sc_{0.2}Sb_2Te_3$[J]. Phys Rev B, 2024, 110(21): 214202.

[140] LEE S H, LI J, OLEVANO V, et al. Equivariant graph neural network interatomic potential for Green-Kubo thermal conductivity in phase change materials[J]. Phys Rev Materials, 2024, 8(3): 033802.

[141] ABDELRAOUF O A M, WANG Z Y, LIU H L, et al. Recent advances in tunable metasurfaces: Materials, design, and applications[J]. ACS Nano, 2022, 16(9): 13339–13369.

[142] WU C M, YU H S, LEE S, et al. Programmable phase-change metasurfaces on waveguides for multimode photonic convolutional neural network[J]. Nat Commun, 2021, 12(1): 96.

[143] ZHOU Y X, DU TOIT D F T, ELLIOTT S R, et al. Full-cycle device-scale simulations of memory materials with a tailored atomic-cluster-expansion potential[J]. Nat Commun, 2025, 16(1): 8688.

[144] ACHAR S K, SCHNEIDER J, STEWART D A. Using machine learning potentials to explore interdiffusion at metal–chalcogenide interfaces[J]. ACS Appl Mater Interfaces, 2022, 14(51): 56963–56974.

[145] PEREGO S, DRAGONI D, GABARDI S, et al. Structure and crystallization kinetics of As-deposited films of the GeTe phase

change compound from atomistic simulations[J]. Phys Status Solidi RRL, 2023, 17(8): 2200433.
[146] MARKOVIĆ D, MIZRAHI A, QUERLIOZ D, et al. Physics for neuromorphic computing[J]. Nat Rev Phys, 2020, 2(9): 499–510.
[147] KIM M K, PARK Y, KIM I J, et al. Emerging materials for neuromorphic devices and systems[J]. iScience, 2020, 23(12): 101846.
[148] ISLAM R, LI H T, CHEN P Y, et al. Device and materials requirements for neuromorphic computing[J]. J Phys D Appl Phys, 2019, 52(11): 113001.
[149] ZHOU W, SHEN X Y, YANG X L, et al. Fabrication and integration of photonic devices for phase-change memory and neuromorphic computing[J]. Int J Extrem Manuf, 2024, 6(2): 022001.
[150] LI T T, LI Y J, WANG Y T, et al. Neuromorphic photonics based on phase change materials[J]. Nanomaterials, 2023, 13(11): 1756.
[151] TUMA T, PANTAZI A, LE GALLO M, et al. Stochastic phase-change neurons[J]. Nat Nanotechnol, 2016, 11(8): 693–699.
[152] LIM D H, WU S, ZHAO R, et al. Spontaneous sparse learning for PCM-based memristor neural networks[J]. Nat Commun, 2021, 12(1): 319.
[153] LIN J, MAI X L, ZHANG D Y, et al. Design of all-phase-change-memory spiking neural network enabled by Ge-Ga-Sb compound[J]. Sci China Mater, 2023, 66(4): 1551–1558.
[154] AN S S, ZHENG B W, JULIAN M, et al. Deep neural network enabled active metasurface embedded design[J]. Nanophotonics, 2022, 11(17): 4149–4158.
[155] AMBROGIO S, CIOCCHINI N, LAUDATO M, et al. Unsupervised learning by spike timing dependent plasticity in phase change memory (PCM) synapses[J]. Front Neurosci, 2016, 10: 56.
[156] WANG J N, ZHAN Y H, MA W, et al. Machine learning enabled rational design for dynamic thermal emitters with phase change materials[J]. iScience, 2023, 26(6): 106857.
[157] RAM PRAKASH S, KUMAR R, MITRA A. Inverse design of dynamically tunable phase-change material based metamaterial absorber induced structural color[J]. Photonics Nanostruct Fundam Appl, 2023, 54: 101135.
[158] HUANG Y S, LEE C Y, RATH M, et al. Tunable structural transmissive color in Fano-resonant optical coatings employing phase-change materials[J]. Mater Today Adv, 2023, 18: 100364.
[159] CHEN L, CHEN L Y, CHEN H L, et al. Role of microscopic coherent force and hot-carrier cooling in photoinduced phase transition for chalcogenide phase-change materials[J]. Phys Rev B, 2024, 110(14): 144105.
[160] LEE J Y, KIM J H, JEON D J, et al. Atomic migration induced crystal structure transformation and core-centered phase transition in single crystal $Ge_2Sb_2Te_5$ nanowires[J]. Nano Lett, 2016, 16(10): 6078–6085.
[161] LI T T, WANG Y, LI W, et al. Structural phase transitions between layered indium selenide for integrated photonic memory[J]. Adv Mater, 2022, 34(26): 2108261.
[162] MORI S, HATAYAMA S, SHUANG Y, et al. Reversible displacive transformation in MnTe polymorphic semiconductor[J]. Nat Commun, 2020, 11(1): 85.
[163] HE H K, JIANG Y B, YU J, et al. Ultrafast and stable phase transition realized in $MoTe_2$-based memristive devices[J]. Mater Horiz, 2022, 9(3): 1036–1044.

Research Progress of Chalcogenide Phase Change Materials Driven by Data and Assisted by Machine Learning

ZHANG Xuanguang, *ZHOU Jian*, *SUN Zhimei*
(School of Materials Science and Engineering, Beihang University, Beijing 100191, China)

Extended Abstract

Chalcogenide Phase Change Materials (PCMs) have emerged as the cornerstone for advanced data storage and computing architectures, particularly Phase Change Random Access Memory (PCRAM) and neuro-inspired computing systems, due to their rapid and reversible switching between high-resistance amorphous and low-resistance crystalline states. However, the traditional trial-and-error research paradigm is increasingly constrained by long development cycles and high costs. Furthermore, conventional theoretical tools like Density Functional Theory (DFT) are limited by small spatial scales and short simulation times, making it difficult to capture complex phase transition dynamics. This review comprehensively elaborates on how the integration of big data analytics and Machine Learning (ML) has revolutionized PCMs research, transitioning it from empirical observation to precise prediction and directional design.

The significant research progress is detailed in three main aspects. High-throughput calculation serves as a data production engine for material property exploration. By automating First-Principles calculations, researchers can rapidly traverse vast compositional spaces. For instance, in the optimization of Sb_2Te_3, High-throughput calculation successfully screened Sc and Y as optimal dopants from transition metals. Calculations revealed that Sc reduces lattice mismatch stress, while Y significantly lowers thermal conductivity, thereby enhancing thermal stability and reducing power consumption. Additionally, high-throughput calculation has accelerated the discovery of novel metastable cubic phases in V-VI and IV-V-VI material systems, establishing a precise correlation between microscopic structure and macroscopic performance.

Machine Learning Potentials (MLPs) have enabled large-scale molecular dynamics simulations. By training on high-precision DFT datasets, MLPs achieve *ab initio* accuracy with the computational efficiency of classical force fields. This breakthrough allows for simulations involving hundreds of thousands of atoms over nanosecond timescales, providing unprecedented insights into

crystallization kinetics. Key findings include the observation of the breakdown of the Stokes-Einstein relation in supercooled liquid GeTe, where viscosity and diffusion decouple. Furthermore, ML-driven simulations have clarified the distinct crystallization mechanisms of different alloys—identifying Sb_2Te as growth-dominated and Sb_2Te_3 as nucleation-dominated. In terms of thermal transport, the combination of MLPs and Non-Equilibrium Molecular Dynamics (NEMD) has successfully quantified the thermal conductivity of amorphous phases and revealed how local structural distortions (*e.g.*, reversible octahedral-heptahedral transformations in Sc-doped PCMs) suppress phonon transport.

ML facilitates device-level simulation and inverse design. At the atomic scale, ML models have simulated entire memory cells (exceeding 500 000 atoms), capturing critical phenomena such as element segregation and interfacial diffusion between electrodes and PCMs layers under thermal cycling. Beyond simulation, ML algorithms are applied to the inverse design of functional devices. In neuromorphic computing, ML optimizes synaptic weight updates by leveraging the resistance drift characteristics of PCMs. In photonics, Deep Learning models enable the rapid inverse design of metasurfaces, accurately predicting geometric parameters for desired optical responses (*e.g.*, specific colors or transmission spectra), thereby overcoming the non-uniqueness problem in electromagnetic simulations.

Summary and prospects While the convergence of data-driven methods and material science has yielded breakthrough progress, the field remains in a nascent stage with significant challenges. The primary challenge is the data gap. There is a scarcity of standardized, high-quality experimental data at the device level (*e.g.*, real-time resistance drift statistics under operating conditions), which limits the generalization ability of ML models. Secondly, multi-physics coupling is a major hurdle. Current ML simulations predominantly focus on thermal-structural interactions. However, real-world PCRAM operation involves a complex interplay of thermal, electrical (Joule heating, carrier transport), and chemical fields. Developing a unified model that integrates these multi-domain dynamics is crucial for predictive device design. Thirdly, the “black box” nature of ML models often obscures the underlying physical laws, necessitating the development of interpretable AI to validate findings against established physical rules, such as the 8-N rule in chalcogenide glasses.

Looking forward, the research focus is expected to shift toward Crystalline-Crystalline Phase Transitions (CCPT). Materials like In_2Se_3 and $MoTe_2$, which switch between different crystalline polymorphs, offer superior energy efficiency and stability compared to traditional amorphous-crystalline transitions. ML will play a vital role in accelerating the discovery of such materials. Additionally, Crystal Structure Prediction (CSP) assisted by ML will become a standard tool for exploring unknown metastable phases. Ultimately, the goal is to establish a closed-loop multi-scale modeling framework that connects microscopic atomic behaviors directly to macroscopic device reliability, providing solid theoretical support for the development of low-power, high-endurance, and high-density storage technologies.

Keywords chalcogenide phase change materials; high-throughput calculation; data analysis; machine learning