

机器学习在晶体生长中的应用研究进展

杨明亮^{1,2,3}, 王瑞仙^{1,2,3}, 孙贵花^{1,3}, 王小飞^{1,3}, 窦仁勤^{1,3}, 何 昊^{1,2,3}, 张庆礼^{1,3}

(1. 中国科学院合肥物质科学研究院, 安徽光学精密机械研究所光子器件与材料安徽省重点实验室, 合肥 230031; 2. 中国科学技术大学, 合肥 230026; 3. 先进激光技术安徽省实验室, 合肥 230037)

摘 要: 制备大尺寸优质晶体是材料领域的重要课题, 当前晶体生长仍十分依赖于技术人员的生长经验, 耗时长, 成本高, 导致研制进度十分缓慢。随着计算机科学的发展, 机器学习有望加快大尺寸晶体生长工艺的探索速度。本文概述了机器学习在晶体生长中的应用, 重点介绍了进化算法和神经网络算法, 并概括了国内外相关领域的研究成果。在晶体结构预测方面, 已成功开发出晶体结构预测软件, 如 Crystal Structure Prediction Network (CRYSPNet)、Universal Structure Predictor: Evolutionary Xtallography (USPEX) 和 Crystal structure AnaLYsis by Particle Swarm Optimization (CALYPSO)。在晶体生长条件优化方面, 机器学习已成功用于铸锭炉热场优化、SiC、YAG、Si 单晶温场以及生长工艺参数优化, 取得了显著的效果。在晶体生长控制方法方面, 机器学习已成功改进了激光晶体、Si 单晶的直径控制, 并在 Si 单晶晶体质量控制以及模型的自适应控制方法方面也取得了一定的进展。机器学习具有高精度、高效率的特点, 可避开复杂的物理化学过程, 通过从大量数据中挖掘信息和规律, 实现晶体结构预测、晶体生长条件优化以及晶体生长精准控制。但机器学习在晶体生长中的应用也面临诸多挑战, 包括大尺寸多元复杂体系的晶体结构预测、模型物理解释和数据处理、晶体生长过程的物理机制和控制规律以及多因素的耦合和复杂系统的模拟等。

关键词: 计算机科学; 机器学习; 晶体生长; 结构预测

中图分类号: TP181; O781

文献标志码: A

文章编号: 0454-5648(2024)07-2412-13

网络出版时间: 2024-06-20



晶体生长是由气态、液态或固态的物质, 在特定的物理和化学条件下, 形成具有一定的尺寸、形状及相结构的单晶的过程^[1-3]。近年来, 随着对半导体晶体、压电晶体、电光晶体、激光晶体、非线性光学晶体、金属单晶材料等多种功能晶体材料的发展^[4-6], 以及对大尺寸晶体制备技术的研究^[7-10], 引发了一系列理论技术问题, 其中包括如何实现晶体生长界面的实时观察、晶体结晶微观过程和缺陷的实验观察、晶体结构缺陷的形成与控制等。传统的晶体生长更多的是一种通过经验归纳得到的技艺, 耗时长, 费用高, 实验效果往往不理想, 这就限制了晶体材料应用和发展。因此, 对晶体生长理论和技术的研究成为探索和制备人工晶体的关键。目前, 国内外对晶体生长也逐渐发展出一系列科学理论, 在国际上, 如俄罗斯学者 A. A. Chernov 的 Modern

Theory of Crystal Growth 详细介绍了结晶过程和晶体生长两大部分的现代理论和模型^[11]; 斯坦福大学 William A. Tiller 教授的 The Science of Crystallization 深入讨论了如何理解和科学分析结晶过程中观察到的现象^[12]。在国内, 也有一些重要著作涵盖了晶体生长领域的不同方面, 如闵乃本院士的《晶体生长的物理基础》全面阐述了晶体生长理论, 特别侧重于提拉法熔体生长技术^[13]; 介万奇教授的《晶体生长原理与技术》则主要聚焦于技术层面, 对不同晶体生长技术的共性原理有所论述^[14]; 张克从教授的《晶体生长科学与技术》深入讨论了晶体生长的理论和技术, 重点介绍了中国在晶体领域中取得的突出成就^[15]; 殷绍唐研究员的《晶体生长微观机理及晶体生长边界层模型》突破了晶体生长机理研究的传统思维, 创建了原创性的晶体生长边界层理论模

收稿日期: 2023-08-21。 修订日期: 2023-09-13。

基金项目: 国家重点研发计划(2022YFB3605700); 国家自然科学基金(52272011, 11875248); 中国科学院青年创新促进会(2023463); 安徽省实验室重点基金(AHL20220ZR04)。

第一作者: 杨明亮(1996—), 男, 博士研究生。

通信作者: 张庆礼(1973—), 男, 博士, 研究员。

Received date: 2023-08-21. Revised date: 2023-09-13.

First author: YANG Mingliang (1996—), female, Doctoral candidate.

E-mail: yangmingliang@mail.ustc.edu.cn

Correspondent author: ZHANG Qingli (1973—), male, Ph.D., Professor.

E-mail: zql@aiofm.ac.cn

型^[16]。但关于晶体生长的理论体系仍存在大量不足,许多内容需要借助于实际生长经验,因此,人们普遍认为人工晶体生长是技艺和科学的结合^[17]。

随着计算机科学技术的高速发展,机器学习的出现为晶体生长领域提供了一种新的思路,例如在晶体生长宏观模拟中,传统的数值模拟需要每次都对炉膛、加热保温装置、晶体、固液界面等进行边界条件设置,从而进行数值计算,而机器学习则只需要对给定的数种晶体生长条件的计算结果作为学习样本,就能实现对晶体生长模拟的快速计算,发现晶体生长中可能存在的问题,从而改进和优化晶体生长条件,实现晶体生长技术的快速突破。目前,国内外许多科研工作者将机器学习应用到晶体生长领域,从多个角度展开研究,取得了重要的研究成果。本文根据目前机器学习在晶体生长中的应用,从微观与宏观两个角度出发,对晶体结构预测、晶体生长条件优化、晶体生长控制方法研究等方面进行总结,概述了这一领域的主要进展,对机器学习在晶体生长中的应用进行展望,为未来研究提供参考。

1 晶体生长模拟中的机器学习

1.1 机器学习概述

机器学习(ML)是人工智能(AI)发展的一个重要分支,在晶体生长领域有着巨大的潜力和意义^[18-19]。与传统的计算机程序不同,机器学习旨在通过输入大量的数据,自动提取潜在的知识 and 规律,使计算机在不进行明确编程的情况下,让计算机程序具备自适应能力。机器学习主要由数据和算法两部分组成^[20]。数据是指用来训练和测试机器学习模型的各种信息,一般是通过实验收集或者软件生成。算法则是指通过数学和计算机科学的方法,对数据进行处理、分析和模拟的操作。机器学习的核心思想是从数据中学习和提取,以便更好地了解数据的本质和规律,并利用这些数据实现预测、分类、聚类、回归等任务^[21]。

大数据信息时代,数据驱动的机器学习方法已经广泛地影响和改变了我们的生活。在各个科研领域,研究人员正在寻找使用机器学习的新方法来提高研究的效率和效果。在这些领域中,晶体生长的研究是一个具有挑战性的研究领域,也是机器学习可以发挥重要作用的领域。晶体生长是许多学科和工程应用的重要一环,例如集成电路、激光、药物开发、太阳能和新能源技术等。机器学习在晶体生长中的应用是一种新颖且强大的方法,它为晶体生

长研究带来了许多可能性,例如,提高数值模拟和工艺探索效率,缩短晶体制备周期,发展新的晶体生长控制方法等。在晶体生长中,传统的晶体生长工业设计和改进往往需要综合考虑众多方面同时考虑,且涉及到复杂的物理和化学过程,因此其设计和控制十分复杂。而机器学习的应用,则可以从大数据的角度出发,充分利用晶体生长过程中蕴藏的大量信息和潜在规律,而不需要深入理解它们的物理和化学性质,仅通过对数据的学习和分析,实现对晶体生长过程的快速预测和控制。因而,预计未来机器学习将会在晶体生长中得到越来越广泛的应用,实现更多创新和突破。

1.2 晶体生长模拟中常用的机器学习算法

1.2.1 进化算法(EA) 进化算法是晶体生长领域中应用最为广泛的优化算法之一^[22-23],其灵感来自于自然进化原理,它的基本思想是通过模拟自然选择、遗传和变异等生物进化过程,通过不断迭代的方式进行搜索,每一代都试图通过优胜劣汰、交叉和变异等操作对种群进行进化,搜索解空间,找出问题的最优解^[24]。通过模拟这些过程,可以解决一些复杂、非线性、高维和多模态等问题。进化算法主要包括协方差矩阵自适应-进化策略、遗传算法、粒子群优化和差分进化等^[25]。

1) 协方差矩阵自适应-进化策略(CMA-ES)

协方差矩阵自适应-进化策略是一种用于非线性、非凸优化问题的进化算法^[26]。它特别适合在连续域中寻找全局优化,且目标函数没有解析表达式,只有黑盒的评估。CMA-ES 算法的关键思想是在进化搜索过程中,学习并不断调整协方差矩阵来适应问题特征,从而寻找最优解。

协方差矩阵由式(1)和式(2)两部分组成:

$$\sigma(x_k, x_k) = \frac{\sum_{i=1}^n (x_{k_i} - \bar{x}_k)^2}{n-1} \quad (1)$$

其中: n 为样本量; $\bar{x}_k$ 为样本的均值; $\sigma(x_k, x_k)$ 为方差; 构成对角线上的元素代表单个随机变量的离散程度。

$$\sigma(x_m, x_k) = \frac{\sum_{i=1}^n (x_{m_i} - \bar{x}_m)(x_{k_i} - \bar{x}_k)}{n-1} \quad (2)$$

其中: $\bar{x}_m$ 、 $\bar{x}_k$ 表示 2 个随机变量样本的均值; $\sigma(x_m, x_k)$ 为协方差,构成非对角线元素度量两两随机变量的相关性。

2) 遗传算法(GAs)

遗传算法是受到生物进化理论的启发而提出的一种优化算法^[27-28]。它模拟了生物进化中的遗传、

变异和选择过程,通过逐代地演化产生出更好的解决方案。基本思想是通过对组成问题解空间的候选解,进行编码,然后使用遗传操作(选择、交叉、变异)对编码进行操作,最后通过选取适应度高的解,作为下一代的种群。这个过程会循环迭代多次,直到达到满意的解。遗传算法因其特点,被广泛应用于求解优化问题。在晶体生长领域,遗传算法被广泛应用到晶体结构预测,晶体性能预测,晶体生长工艺优化等。

3) 粒子群优化(PSO)

粒子群优化是一种来源于鸟类捕食行为的演化计算方法,粒子群算法的基本思想是将解空间中的每个可行解,看做是一个粒子,每个粒子根据自己当前的速度和位置进行自适应调整,同时根据群体中历史最优位置进行信息传递和协作,以找到全局最优解^[29–30]。总的来说,粒子群算法是一种用于解决优化问题的启发式搜索算法,通过模拟群体行为来寻找全局最优解。它因具有较好的搜索性能,在晶体结构预测方面应用广泛。

粒子群算法的公式包括粒子速度更新和粒子位置公式^[31–32]。

粒子速度更新公式如式(3):

$$v_{id}^k = w \cdot v_{id}^{k-1} + c_1 \cdot r_1 \cdot (pbest_{id} - x_{id}^{k-1}) + c_2 \cdot r_2 \cdot (gbest_d - x_{id}^{k-1}) \quad (3)$$

粒子位置更新公式如式(4):

$$x_{id}^k = x_{id}^{k-1} + v_{id}^k \quad (4)$$

其中: v_{id}^k 是粒子第 k 次迭代粒子 i 第 d 维的速度向量; x_{id}^k 为粒子 i 在第 k 次迭代中第 d 维的位置向量; w 为惯性权重; c_1 、 c_2 为加速度因子; r_1 、 r_2 是取到 0~1 之间的随机数; $pbest_{id}$ 为在第 i 个粒子搜索得到的个体最优解; $gbest_d$ 为整个粒子群体中的全局最优解。

4) 差分进化(DE)

差分进化是一种全局优化算法,常用于求解函数优化问题^[33]。它是基于群体搜索的进化算法之一,由 Storn 等提出^[34]。差分进化的基本思想是通过种群中的个体进行差分操作,生成新的个体,并利用适应度函数评估它们的适应度值,从而逐步改进当前的种群。这一过程是一个迭代的优化过程,直到满足终止条件为止。

1.2.2 人工神经网络算法(ANN) 神经网络是深度学习的核心,是一种模仿人脑神经系统原理的计算模型。由于神经网络的高度并行性和非线性处理能力,它在处理大规模数据和解决复杂问题方面具有很

大的优势,被广泛应用于各种机器学习任务^[35–36]。例如在晶体生长领域,神经网络可以用于晶体生长控制、加快晶体生长模拟速度等方面。

神经网络的训练通常通过一种称为反向传播(backpropagation)的算法进行的^[37]。具体步骤是先通过网络接收一组输入,并产生一个输出。然后,将该输出与预期的输出进行比较,产生一个误差。这个误差被反向传播到网络中,然后根据反向传播算法不断调整权重,使得下一次的输出更接近预期的输出。需要注意的是,神经网络因其特点,需要大量的数据进行训练,所以往往需要大量的计算资源。此外,虽然神经网络在许多任务上都取得了非常好的效果,但是它们往往被视为一种“黑箱”模型,因为它们的内部工作原理很难解释。一个典型的神经元数学模型如下图 1 所示。

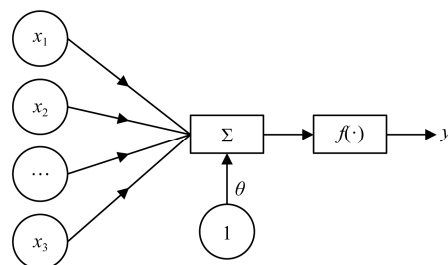


图 1 神经元数学模型

Fig. 1 Mathematical model of neurons

其中: θ 是截距项,图中输入值为 1 时,权重为 θ 。数学模型表达式如(5)所示:

$$y = f\left(\sum_{i=1}^n x_i w_i + \theta\right) \quad (5)$$

其中:函数 $f(\cdot)$ 是响应函数,代表神经元输入输出特性,响应函数的作用是引入非线性变换,使神经网络能够更好地处理非线性问题和表示非线性关系。

2 机器学习在晶体生长中的应用

2.1 晶体结构预测

晶体的结构预测是在给定化学组分的条件下,确定晶体的微观结构。晶体的微观结构是深入理解其宏观物理和化学性质,以及分析这些性质如何影响晶体的形成和稳定性的基础^[38]。长期以来,对晶体结构的研究,大多都是通过实验法进行的。但实验法是一个耗时长、成本高的过程,且受到实验条件限制,测量结果的精度和完整性难以得到保证。因此,如何在实验开展之前,能预测出晶体结构,一直是凝聚态物理和材料科学领域长期以来的挑战^[39–40]。

近年来,随着机器学习技术的发展,机器学习也被应用于晶体结构预测中^[41]。机器学习方法可以从大量的晶体结构数据中学习,并预测新的晶体结构。这种方法可以显著提高晶体结构预测的效率和准确性,目前机器学习在晶体结构预测方面,各国学者已展开了大量研究工作,并公开了众多晶体结构预测代码。如美国马里兰大学 Valentin Stanev 研究员提出的 CRYSPNet^[42];俄罗斯 Oganov 教授团队提出的 USPEX^[43];吉林大学马琰铭教授团队提出的 CALYPSO^[44];日本国立材料研究所 Yamashita 等提出的 CrySPY^[45];美国卡内基梅隆大学 Curtis 等提出的 GAtor^[46];法国化学与材料研究所 Nouria 等提出的 CrystalGAN^[47];纽约州立大学 Lonie 和 Zurek 提出的 XtalOpt^[48]等。这里将重点介绍以下 3 种。

2.1.1 CRYSPNet CRYSPNet 可以根据材料的化学成分预测其 Bravais 点阵、空间群和晶格常数。

研究人员通过在无机晶体结构数据库的 100 000 多个条目上进行训练和验证,证明了其强大的预测能力。同时 CRYSPNet 既可以独立作为一个预测方法使用,也可以用于生成候选结构,以供进一步的计算和实验验证。CRYSPNet 的工作流程如图 2 所示。

二维材料因其独特的光电特性和结构性能而备受关注。Song 等^[49]结合 CRYSPNet,开发出一种基于模板的晶体结构预测方法,并通过密度泛函理论(DFT)验证其结构的稳定性。Li 等^[50]基于随机森林算法和 CRYSPNet,提出了一个基于深度学习的二维生成材料框架,该框架使用机器学习中的随机森林分类算法,按结构相似性进行筛选来识别二维材料,筛选的过程如图 3 所示。首先利用 CRYSPNet 预测二维候选材料的 Bravais 点阵、空间群和晶格常数,将二维候选材料的空间群与二维材料数据库中的空间群进行比较,然后测量用来衡量化学成分

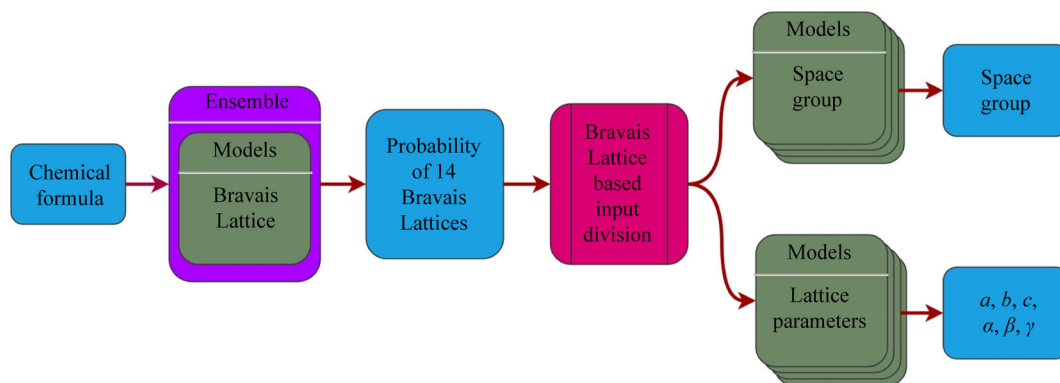


图 2 CRYSPNet 的工作流程图^[42]
Fig. 2 Workflow diagram of CRYSPNet^[42]

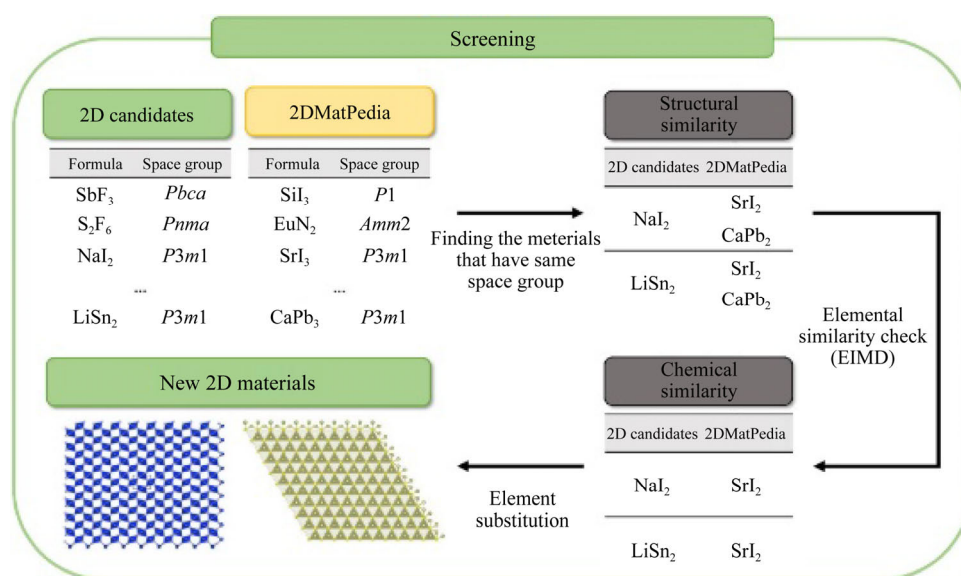


图 3 筛选过程示例图^[50]
Fig. 3 Example diagram of the screening process^[50]

相似性的元素运动距离(EIMD)值,选择 EIMD 值低于 2 的候选者,最后进行元素替换获得新的二维材料结构。

2.1.2 USPEX USPEX 是一种基于进化算法及第一性原理计算的晶体结构预测软件。USPEX 结合了全局搜索和精确能量计算的方法,能够高效搜索和纠正结构,找到最稳定的晶体结构。其设计目标是通过自动化方法,仅通过给定化学组分,而无需手动调整,即可预测出稳定的晶体结构。图 4 为 USPEX 的工作流程图^[51]。

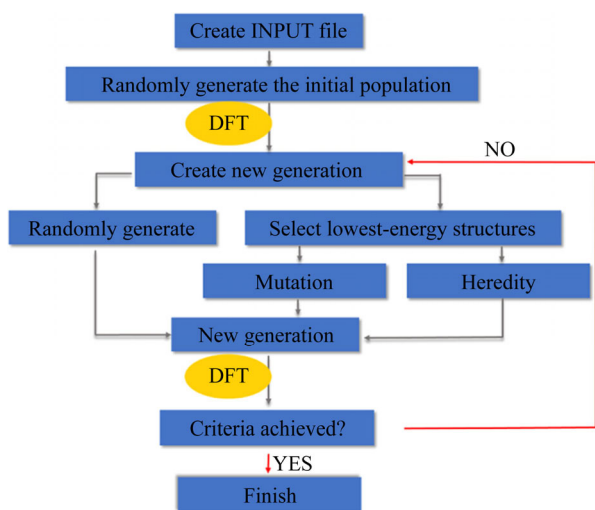


图 4 USPEX 的工作流程图^[51]

Fig. 4 Workflow diagram of USPEX^[51]

Kuklin 等^[51]使用 USPEX 对磁性过渡二元金属氧化物 NiO、CoO、 α -Fe₂O₃、V₂O₃ 和 CuO 进行了

晶体结构预测。他们首次报道了由 Perdew、Burke 和 Ernzerhof 三位科学家提出的杂化泛函 Perdew-Burke-Ernzerhof (PBE0)方法进行 USPEX 的磁性结构预测,并成功地预测了 Cu₂O 的非磁性结构,证明了该方法在非磁性结构的预测上的可行性。Pakhnova 等^[52]利用 USPEX 对季戊四醇四硝酸酯(PETN)、三硝基甲苯(TNT)、六硝基六氮杂异伍兹烷(CL-20)、三氨基三硝基苯(TATB)和环四亚甲基四硝胺(HMX)的晶体和共晶体进行研究,旨在找到固定成分中最稳定的结构。最后将 PETN、TATB 和 HMX, USPEX 预测的晶体结构与实验结果进行对比,结果非常接近,证明了稳定分子晶体和高能分子共晶体的晶体结构可以使用进化算法 USPEX 结合力场或从头计算来研究。使用 USPEX, Zhang 等^[53]成功预测出高压条件下 NaCl 可以形成多种稳定的化合物,包括 NaCl₃、NaCl₇、Na₂Cl、Na₃Cl 和 Na₃Cl₂。通过合成立方和正交的 NaCl 以及二维金属四方晶系 Na₃Cl,研究者验证了这些预测结果。这一研究表明,在非环境条件下,违反化学直觉的化合物可能具有热力学上的稳定性。不同化学计量比的钠-氯化物结构如图 5 所示^[53]。

2.1.3 CALYPSO CALYPSO 是一种以粒子群优化算法为基础,采用高度并行化的计算架构,具备自动搜索功能的晶体结构预测软件。使用 CALYPSO,用户只需提供晶体结构的化学组成等基本信息,就能自动进行结构预测。可帮助研究者发现未知的、具有新颖性和潜在应用的晶体结构。图 6 为 CALYPSO 的工作流程图^[54]。

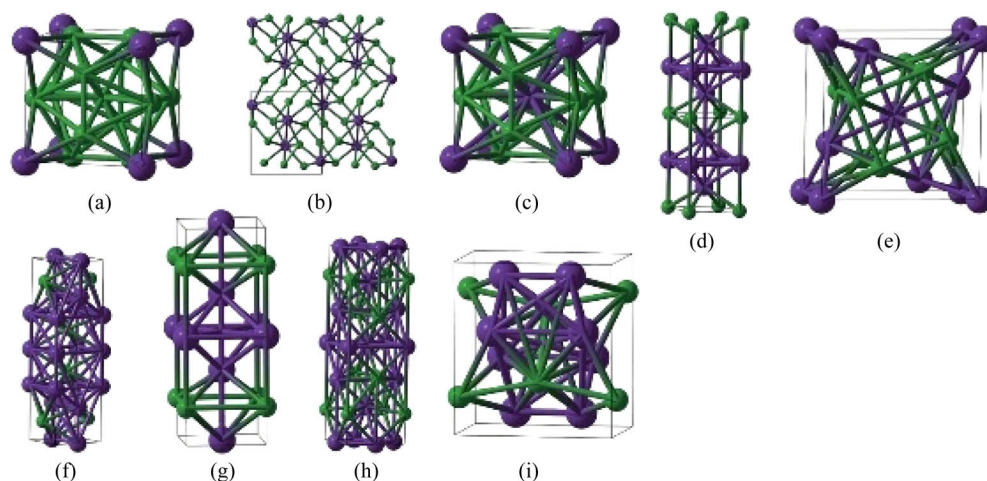


图 5 不同化学计量比的钠-氯化物结构^[53]: (a) $Pm3$ -NaCl₇, (b) $Pnma$ -NaCl₃, (c) $Pm3n$ -NaCl₃, (d) $P4/mmm$ -Na₃Cl, (e) $P4/m$ -Na₃Cl₂, (f) $Cmmm$ -Na₃Cl₂, (g) $P4/mmm$ -Na₂Cl, (h) $Cmmm$ -Na₂Cl, (i) $Imma$ -Na₂Cl (紫色: 钠原子; 绿色: 氯原子)

Fig. 5 Structures of sodium-chlorine compounds with different stoichiometric ratios. (a) $Pm3$ -NaCl₇, (b) $Pnma$ -NaCl₃, (c) $Pm3n$ -NaCl₃, (d) $P4/mmm$ -Na₃Cl, (e) $P4/m$ -Na₃Cl₂, (f) $Cmmm$ -Na₃Cl₂, (g) $P4/mmm$ -Na₂Cl, (h) $Cmmm$ -Na₂Cl, (i) $Imma$ -Na₂Cl. Purple and green spheres denote Na and Cl atoms, respectively^[53]

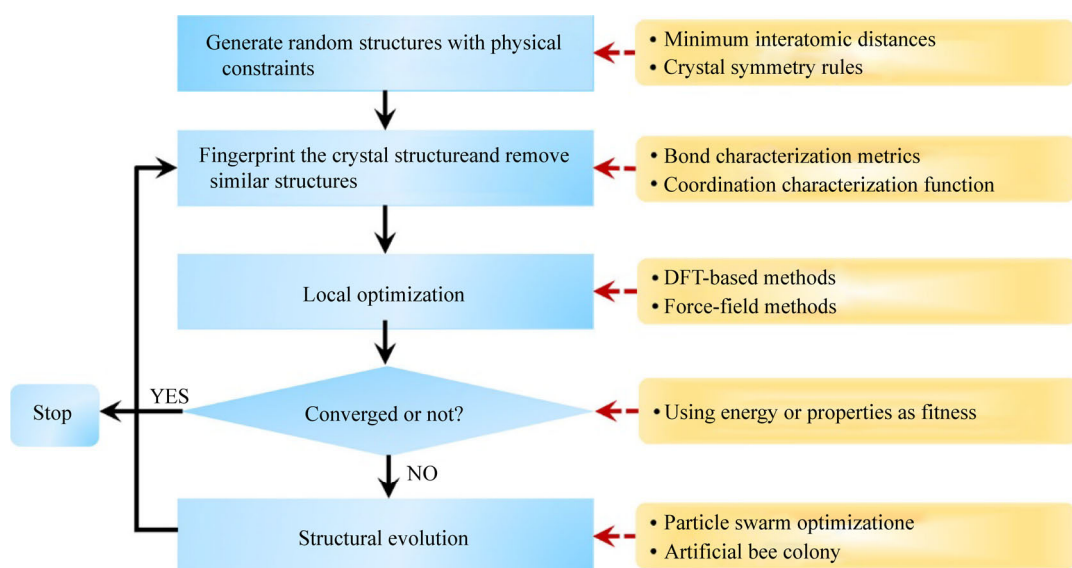


图 6 CALYPSO 的工作流程图^[54]
Fig. 6 Workflow diagram of CALYPSO^[54]

Gao 等^[55]利用 CALYPSO 进行固-固界面结构预测,再现了石墨烯扶手椅-锯齿型 GB 和金红石 TiO_2 的 $\Sigma 3(112)$ GB 的已知界面结构,且发现了金红石 TiO_2 的 $\Sigma 5(210)$ GB 中含有来自 O 缺陷的 Ti^{3+} 的两种新型稳定 GB 结构(r-GB 和 p-GB),计算表明,预测的 GB 结构中存在的 Ti^{3+} 可以缩小带隙,并可能有利于提高 TiO_2 的可见光活性。Lu 等^[56]利用 CALYPSO 在金刚石(100)表面发现了以前未知的自组装碳纳米管的形成,展示了 CALYPSO 在搜索能力方面的强大表现,也凸显了机器学习在材料科学中的应用潜力。Yang 等^[57]使用 CALYPSO 进行结构预测,并结合密度泛函理论进行结构优化,获得了高浓度 Ho^{3+} 掺杂的 BYF 的基态结构,计算得到的晶格常数与实验数据一致,误差仅为 1% 左右。然后,计算了 Ho^{3+} 掺杂的 BYF 的能带结构、态密度(DOS)和电子定域化函数(ELF),这些结果为研究 Ho^{3+} 掺杂的 BYF 提供新的有效的思路。图 7 为 CALYPSO 结构搜索得到的纯 BaY_2F_8 和 $\text{Ho}^{3+}:\text{BaY}_2\text{F}_8$ 的基态结构。

2.2 晶体生长条件优化

晶体生长中的生长装置几何结构和工艺参数是影响晶体的质量和尺寸的重要原因,如坩埚厚度、线圈位置、晶体的转速、提拉速度、坩埚转速、加热温度等^[58-61]。传统的晶体生长大多是通过实验不断试错,以获取最佳生长条件,这种方法耗时长、成本高。

20 世纪 80 年代,计算机数值模拟技术的兴起,研究人员开始尝试通过计算流体动力学(CFD)建立

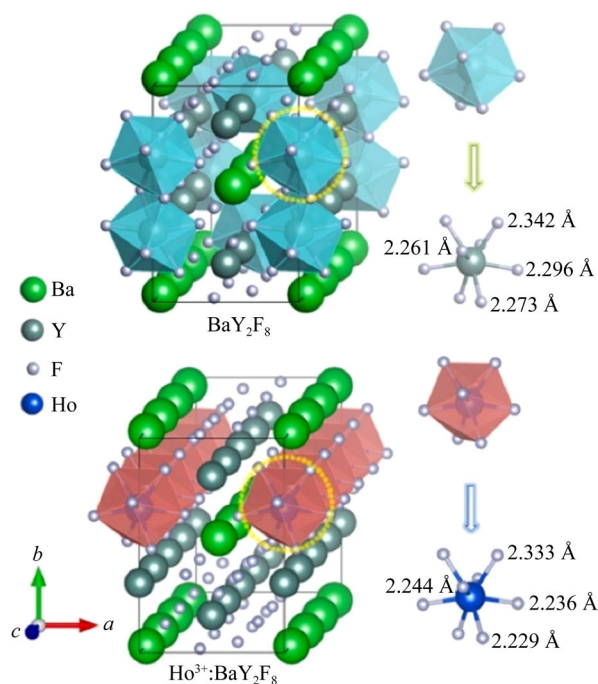


图 7 CALYPSO 结构搜索得到的纯 BaY_2F_8 和 $\text{Ho}^{3+}:\text{BaY}_2\text{F}_8$ 的基态结构^[57]

Fig. 7 Ground state structures of the pure BaY_2F_8 and $\text{Ho}^{3+}:\text{BaY}_2\text{F}_8$ through the CALYPSO structure search method^[57]

晶体生长过程的数学模型,揭示晶体复杂的生长机理,从而实现对晶体生长条件的优化^[62-65]。CFD 模拟虽然在某种程度上可以替代实验对生长条件进行优化,但其也存在明显的局限性。比如在处理复杂模型时仍需要花费大量时间,且无法实现多目标、多工艺参数的协同优化。然而机器学习能够绕过复

杂的物理问题，直接通过学习和归纳大量的实验或计算数据，深度发掘数据中的内在关联，实现快速且精确的预测。因此，研究人员已经开始尝试利用机器学习算法来优化晶体生长条件。

在几何结构方面，Boucetta 等^[66]利用人工神经网络(ANN)成功预测出安装热电偶的最佳位置，实现仅通过少量热电偶，便可以精准监测晶体炉的温度分布。郝佩瑶等^[67]利用人工神经网络建立了 G7 铸锭炉的热场几何结构参数与热场评价参数间的映射模型，随后，通过迁移学习算法将该模型迁移至 G8 铸锭炉，并通过遗传算法(GA)优化了 G8 铸锭炉的热场几何结构。Yu 等^[68]提出了一种利用机器学习算法优化 SiC 生长系统几何设计的新方法。首先，通过 CGSIM 软件进行 CFD 模拟，然后，利用模拟的数据训练人工神经网络模型。最后，利用遗传算法对热场几何结构中的坩埚侧壁厚度、坩埚底部厚度、坩埚高度、溶剂半径、溶剂高度、线圈位置、坩埚位置等参数进行优化，成功筛选出 150 mm SiC 晶体的最优生长条件。图 8 显示了 CFD 模拟和神经网络模拟结果的对比。可以看到，两种方法获得的温度分布几乎相同，并且通过遗传算法结合神经网络模型优化晶体生长条件仅需 10^4 s，而对传统的

CFD 模拟进行优化则需要 5×10^{10} s。

在工艺参数方面，Kutsukake 等^[69]通过机器学习模型分析了工艺参数坩埚转速和氩气流速对硅晶体中间隙氧浓度 O_i 浓度的影响。Asadian 等^[70]以优化晶体固液界面的形状和位置为目标，利用人工神经网络和遗传算法来优化 CZ 法 YAG 单晶生长过程，对提拉速度、晶体转速、环境气体和坩埚壁温度等工艺参数进行优化，最终得到了紧密平坦的固液界面。张晶等^[71]基于响应面法对直拉单晶硅的生长条件进行优化，确定最佳热场分布下晶转、坩转及拉速等工艺参数的设定值，并通过晶体生长实验进行验证，结果大大提高了拉晶的效率。Tsunooka 等^[72]使用神经网络构建了一个高速模型，能够预测 SiC 晶体生长的 CFD 模拟结果，并实现了生长条件优化。该方法的预测速度比 CFD 模拟快 10^7 倍，可以详细预测溶液中过饱和度分布和流速，解决了 CFD 模拟面对复杂模型模拟速度慢的问题。Qi 等^[73]基于 CFD 模拟的数据，利用人工神经网络建立了硅晶体生长过程的模型。图 9 展示了 CFD 模拟与人工神经网络模型对比图。建立的神经网络模型利用遗传算法，以晶体旋转速度和坩埚旋转速度为优化变量，以平坦的固液界面和降低界面氧浓度为优化目

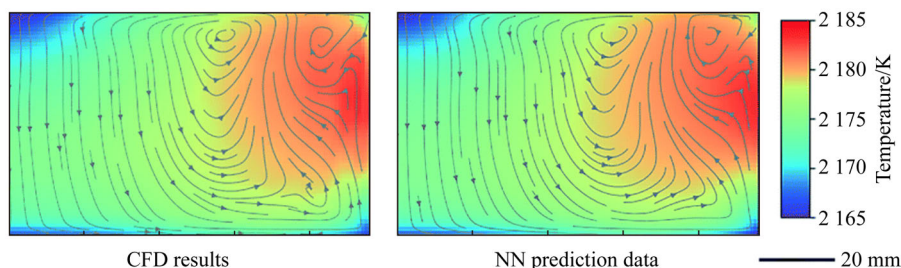
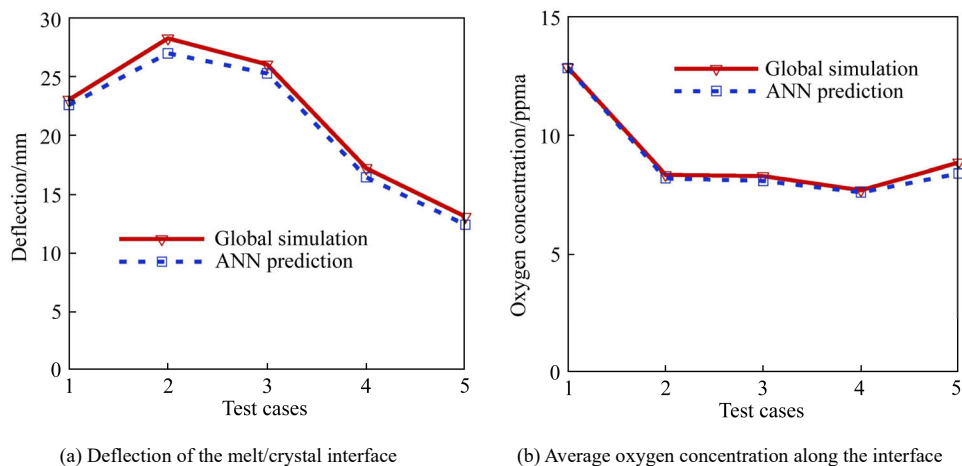


图 8 CFD 模拟与神经网络模拟结果对比图^[68]

Fig. 8 Comparison of CFD simulation and NN simulation results^[68]



(a) Deflection of the melt/crystal interface

(b) Average oxygen concentration along the interface

图 9 CFD 模拟与人工神经网络模型对比^[73]

Fig. 9 Comparison between calculation and ANN prediction^[73]

标, 并将优化后的最佳参数与原始参数进行对比实验, 图 10 为原始和最佳参数的对比图。这些研究表明, 机器学习在晶体生长条件优化方面具有重要的应用潜力。机器学习不仅可以通过预测最佳参数组合来指导实际生产中的参数选择, 还能显著加速参数优化过程。相比传统的实验和 CFD 模拟方法, 机器学习能够更快地获得结果。

2.3 晶体生长控制方法

晶体生长过程复杂多变, 涉及到多种因素的相互作用, 因此, 如何实现对晶体生长的控制具有重要的研究意义^[74-77]。传统的控制方法大多都是依靠经验和实际操作, 但随着机器学习和自动控制方法的发展应用, 使得晶体生长控制不再局限于人的主观和经验判断, 而能够利用计算机算法和数据分析的能力, 实现更加准确和精确的晶体生长控制。因此, 研究人员开始关注如何利用机器学习的方法实现晶体生长控制, 以提高晶体生长过程的稳定性和晶体生长的质量。通过利用大量的数据训练和优化机器学习模型, 可以预测和判断晶体生长的动态变化, 并及时进行调整和控制, 从而实现更好地控制

晶体生长过程。这种基于机器学习的晶体生长控制方法为研究者提供了一种全新的思路 and 工具, 以推动晶体生长领域的发展和进步。

为了实现对晶体直径的精确控制, 以确保生长出具有恒定直径的低缺陷硅单晶体, 研究者们提出了多种改进的控制方法。例如, 李建鸿等^[78]将改进的反向传播(BP)神经网络算法与传统的 PID 控制结合, 应用于激光晶体生长过程中, 并通过 Simulink 进行了模拟仿真实验。建立的系统仿真框架如图 11 所示。结果显示, 改进的 BP 神经网络 PID 控制在响应速度、调节时间和抗干扰能力等方面明显优于常规 PID 控制和传统 BP 神经网络 PID 控制。任俊超等^[79]针对传统 PID 控制方法难以实现精准晶体直径控制的问题, 提出了基于蚁狮优化(ALO)算法优化求解的自适应非线性预测控制(NMPC)方法。同样地, 林光伟等^[80]提出了无模型自适应控制(MFAC)的硅单晶直径控制方法, 并通过贝叶斯参数优化算法对超参数进行了优化。通过仿真实验测试, 优化后的参数提升了硅单晶的稳定性。针对 CZ 硅单晶生长过程中热场温度与晶径的非线性和时滞特性,

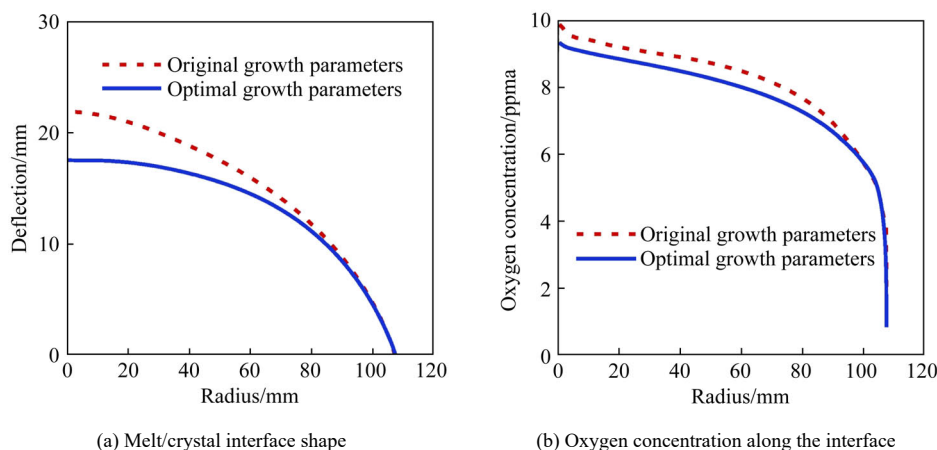


图 10 原始和最佳参数的对比^[73]

Fig. 10 Comparison of the original and optimal cases^[73]

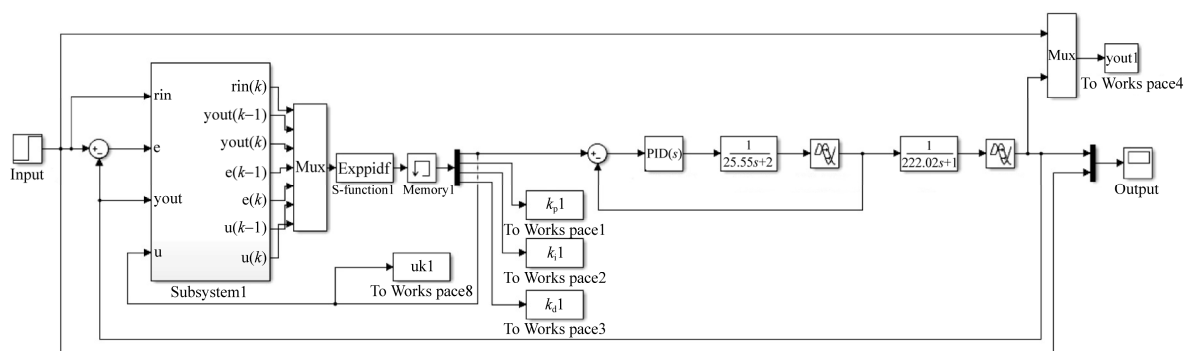


图 11 基于 BP 神经网络 PID 控制的激光晶体生长控制仿真^[78]

Fig. 11 Simulation of laser crystal growth control based on BP neural network PID control^[78]

Liu 等^[81]指出传统的 PID 控制方法难以实现精准有效的控制。为了解决这个问题,提出了一种新的拉速恒定的控制结构和基于堆叠稀疏自编码器(SSAE)的广义预测控制(GPC)算法,并进行了数值仿真和实验验证。图 12 展示了不同控制策略下的直径输出曲线和提拉速度曲线。通过对比曲线 6 和 7,可以发现新的控制结构在避免拉速波动方面表现出更好的优越性。此外,通过对比曲线 2 和 3,可以得出基于 SSAE 的 GPC 算法在性能上优于传统的 PID 控制方法。

除了在晶体直径控制方面的应用之外,机器学习还在晶体生长控制的其他方面有广泛的应用。如 Yin 等^[82]提出了一种基于迭代学习的模型预测控制-迭代学习控制-扩张状态观察器(MPC-ILC-ESO)控制策略,用于单晶 Si 晶体质量的控制研究。这种控制

策略不仅可以稳定热场温度,而且能够有效处理多批次生产过程中的不确定性和干扰,具有出色的控制性能和稳定性。为在具有动态环境变化的不稳定生长系统中保持合适的生长条件,Dang 等^[83]设计了一种随时间变化的控制策略,并提出了一种基于高速机器学习预测模型的自适应控制方法,将其应用于 SiC 晶体的溶液生长。该方法通过自适应控制设计了一个持续 50 h、包含 100 个时间步长的生长过程。研究还比较了使用固定策略和自适应策略后的溶液域配置,图 13 展示了比较结果。结果显示,自适应策略能够提供更高的生产效率、更好的表面平整度和更长的可用生长时间。而且与传统的 CFD 模拟相比,该方法还加快了整个设计和优化过程的速度,提高了 300 倍的效率。这项研究展示了实时优化在晶体生长中的潜力,并具有重要的应用前景。

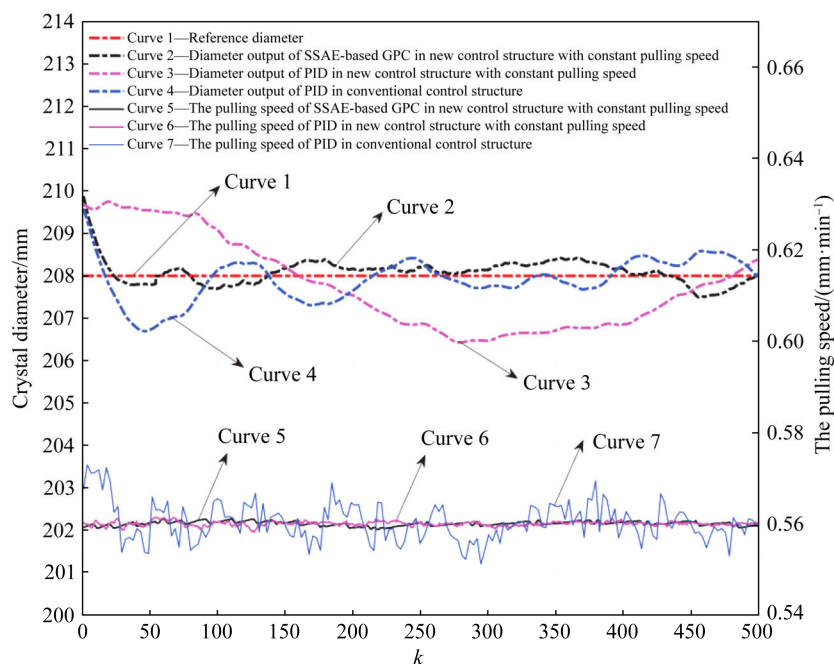


图 12 不同控制策略下的直径输出曲线(左坐标)和提速曲线(右坐标)^[81]

Fig. 12 Diameter output curves (left coordinate) and pulling speed curves (right coordinate) in different control strategies^[81]

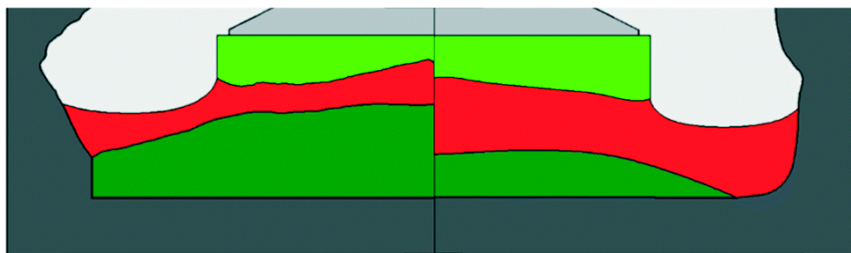


图 13 在固定(左)和自适应策略(右)下 50 h 后的溶液域配置。红色、浅绿色、深绿色和深灰色分别代表溶液、单晶、多晶和坩埚^[83]

Fig. 13 Solution domain configuration after 50 h under the fixed (left) and adaptive (right) recipes. Red, light green, dark green, and dark gray represent the solution, single crystal, polycrystals, and crucible, respectively^[83]

3 总结与展望

本文对机器学习在晶体生长中的应用研究进展进行了简要总结,介绍了机器学习的基本概念,阐述了机器学习在晶体生长领域的意义,并对晶体结构预测、晶体生长条件优化和晶体生长控制方法 3 个方面的国内外研究现状进行了较为全面的总结。

1) 晶体结构预测方面,对于一些简单体系的结构预测,机器学习取得了很大的成功。目前已发展了多种工具的机器学习方法来预测晶体结构,开发了快速高效的软件,将极大推动晶体结构预测的研究,为材料的设计和开发提供重要支持。然而,机器学习预测晶体结构的准确性和计算效率仍然是研究所面临的重大挑战之一,对于大尺寸多元复杂体系的预测仍然十分吃力,因此,未来需要进一步改进和发展算法,面向更多更复杂体系,提高预测模型的准确性和计算效率。

2) 晶体生长条件优化方面,机器学习方法通过对已有的晶体生长数据进行分析和学习,不仅能够预测出最佳的参数组合,指导实际生产中的参数选择,而且还能加速参数优化过程。虽然机器学习在晶体生长条件优化中具有潜力,但也存在一些问题和挑战。如数据的准确度,机器学习模型是基于大量数据训练的,数据的准确度直接决定了模型的准确度;晶体生长过程复杂性,晶体生长涉及许多物理和化学过程,这些过程之间相互耦合,相互影响,使得建模和预测变得更加困难;模型的解释性,机器学习模型其内部的决策过程往往是黑盒的,缺乏物理机制和过程的解释。因此,未来的研究方向需要引入更多机器学习算法,同时结合理论和实践研究,开发可靠且具有解释的模型。

3) 晶体生长控制方法方面,通过机器学习算法的建模和优化,可以实现对晶体生长过程的精确控制,提高晶体生长过程的稳定性和晶体质量。目前,机器学习在晶体生长控制方法方面的研究主要集中于建立模型和算法的优化,以及实时数据的收集和處理。通过建立适当的机器学习模型,可以根据输入的参数和条件,实现对晶体生长过程的控制和优化。同时,及时收集和分析晶体生长过程中的数据,可以实时调整控制策略,从而提高晶体生长的效果和质量。然而,晶体生长控制方法的研究仍面临一些挑战。一方面,晶体生长过程的物理机制和控制规律有待深入研究和理解,另一方面,晶体生长是一个动态的过程,控制方法涉及到多个参数和条件

的综合调节,如何建立合理的模型仍然是一个难题。因此,未来需要深入挖掘晶体生长的物理机制和控制规律,结合先进的机器学习算法和优化方法,加强多因素的耦合和复杂系统的模拟,进一步提高晶体生长控制能力,推动晶体生长领域的发展和创新。

参考文献:

- [1] 张绶庆. 人工晶体[J]. 科学通报, 1964(9): 787-797.
ZHANG Shouqing. Chin Sci Bull, 1964(9): 787-797.
- [2] 郑燕青, 施尔畏, 李汶军, 等. 晶体生长理论研究现状与发展[J]. 无机材料学报, 1999, 14(3): 321-332.
ZHENG Yanqing, SHI Erwei, LI Wenjun, et al. J Inorg Mater, 1999, 14(3): 321-332.
- [3] 孙德贇. AIMD 模拟碳酸铈晶体生长机理的研究[D]. 包头: 内蒙古科技大学, 2022.
SUN Deyun. Study on the growth mechanism of cerium carbonate crystals simulated by AIMD[D]. Baotou: Inner Mongolia University of Science & Technology, 2022.
- [4] 杨金凤, 孙军, 秦娟, 等. 从矿物宝石到光电功能晶体: 解读蒋民华先生《晶体赋》[J]. 人工晶体学报, 2022, 51(9/10): 1541-1559.
YANG Jinfeng, SUN Jun, QIN Juan, et al. J Synth Cryst, 2022, 51(9/10): 1541-1559.
- [5] WANG J Y, YU H H, WU Y C, et al. Recent developments in functional crystals in China[J]. Engineering, 2015, 1(2): 192-210.
- [6] XUE D F, SUN C T. Study on the crystallization process of function inorganic crystal materials[J]. Sci Sin-Tech, 2014, 44(11): 1123-1136.
- [7] MA Z Z, CHEN Y Z, HE Y, et al. Growth, thermal properties and laser performance of Er, Pr:Y_{2.8}Sc₁Al_{4.2}O₁₂: A promising multi-wavelength laser crystal[J]. Appl Phys A, 2021, 127(7): 1-9.
- [8] DING S J, REN H, ZOU Y, et al. Single crystal growth and property investigation of Dy³⁺ and Tb³⁺ co-doped Gd₃Sc₂Al₃O₁₂ (GSAG): Multiple applications for GaN blue LD pumped all-solid-state yellow lasers and UV or blue light chip excited solid-state lighting[J]. J Mater Chem C, 2021, 9(30): 9532-9538.
- [9] CHEN X F, YANG X L, XIE X J, et al. Research progress of large size SiC single crystal materials and devices[J]. Light Sci Appl, 2023, 12(1): 28.
- [10] ZHANG C Q, WANG J Y, HU X B, et al. Growth of large K₂Al₂B₂O₇ crystals[J]. J Cryst Growth, 2002, 235(1/4): 1-4.
- [11] CHERNOV A A, MÜLLER KRUMBHAAR H. Modern theory of crystal growth I[M]. Springer Science & Business Media, 2012.
- [12] TILLER W A. The science of crystallization: macroscopic phenomena and defect generation[M]. Cambridge: Cambridge University Press, 1991.
- [13] 闵乃本. 晶体生长的物理基础[M]. 南京: 南京大学出版社, 2019.
- [14] 介万奇. 晶体生长原理与技术[M]. 2 版. 北京: 科学出版社, 2019.
- [15] 张克从, 张乐惠. 晶体生长科学与技术-上册[M]. 2 版. 北京: 科学出版社, 1997.
- [16] 殷绍唐. 晶体生长微观机理及晶体生长边界层模型[M]. 北京: 科学出版社, 2020.
- [17] 徐亚东. 晶体人生 | 陶绪堂: 从有机-无机复合材料走进多彩晶体世界[J]. 人工晶体学报, 2022, 51(9/10): 1519-1522.
XU Yadong. J Synth Cryst, 2022, 51(9/10): 1519-1522.
- [18] YAO T S, TANG C Y, YANG M, et al. Machine learning to instruct

- single crystal growth by flux method[J]. *Chin Phys Lett*, 2019, 36(6): 068101.
- [19] MIAO L, WANG L W. Liquid to crystal Si growth simulation using machine learning force field[J]. *J Chem Phys*, 2020, 153(7): 074501.
- [20] ZHANG J M, HARMAN M, MA L, et al. Machine learning testing: Survey, landscapes and horizons[J]. *IEEE Trans Softw Eng*, 2022, 48(1): 1–36.
- [21] AMERSHI S, BEGEL A, BIRD C, et al. Software engineering for machine learning: A case study[C]//2019 IEEE/ACM 41st International Conference on Software Engineering: Software Engineering in Practice (ICSE-SEIP). Montreal, QC, Canada. IEEE, 2019: 291–300.
- [22] KIM S, NOH J, GU G H, et al. Generative adversarial networks for crystal structure prediction[J]. *ACS Cent Sci*, 2020, 6(8): 1412–1420.
- [23] WOODLEY S M. Prediction of crystal structures using evolutionary algorithms and related techniques[M]//Applications of Evolutionary Computation in Chemistry. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 2004: 95–132.
- [24] REWARD B C, TIPTON W W, HENNIG R G. Structure and stability prediction of compounds with evolutionary algorithms[J]. *Top Curr Chem*, 2014, 345: 181–222.
- [25] 梁静, 刘睿, 瞿博阳, 等. 进化算法在大规模优化问题中的应用综述[J]. *郑州大学学报(工学版)*, 2018, 39(3): 15–21.
LIANG Jing, LIU Rui, QU Boyang, et al. *J Zhengzhou Univ Eng Sci*, 2018, 39(3): 15–21.
- [26] HANSEN N. The CMA evolution strategy: A comparing review[M]//Towards a New Evolutionary Computation. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 2007: 75–102.
- [27] LIEPINS G E, HILLIARD M R. Genetic algorithms: foundations and applications[J]. *Ann Oper Res*, 1989, 21(1): 31–57.
- [28] GREFFENSTETTE J J. Genetic algorithms and machine learning[C]//Proceedings of the sixth annual conference on Computational learning theory. Santa Cruz, California, USA. New York: ACM, 1993: 3–4.
- [29] POLI R, KENNEDY J, BLACKWELL T. Particle swarm optimization[J]. *Swarm Intell*, 2007, 1(1): 33–57.
- [30] JAIN M, SAIHIPAL V, SINGH N, et al. An overview of variants and advancements of PSO algorithm[J]. *Appl Sci*, 2022, 12(17): 8392.
- [31] LI G Q, WANG T, CHEN Q, et al. A survey on particle swarm optimization for association rule mining[J]. *Electronics*, 2022, 11(19): 3044.
- [32] ELSHEIKH A H, ABD ELAZIZ M. Review on applications of particle swarm optimization in solar energy systems[J]. *Int J Environ Sci Technol*, 2019, 16(2): 1159–1170.
- [33] HU J J, YANG W H, DONG R Z, et al. Contact map based crystal structure prediction using global optimization[J]. *CrystEngComm*, 2021, 23(8): 1765–1776.
- [34] STORN R, PRICE K. Differential evolution-A simple and efficient heuristic for global optimization over continuous spaces[J]. *J Glob Optim*, 1997, 11(4): 341–359.
- [35] ZOU J M, HAN Y, SO S S. Overview of artificial neural networks[M]//Artificial Neural Networks, 2008: 14–22.
- [36] ZHANG Z H. Artificial neural network[M]//Multivariate Time Series Analysis in Climate and Environmental Research. Cham: Springer, 2018: 1–35.
- [37] DONGARE A, KHARDE R R, KACHARE A D. Introduction to artificial neural network[J]. *International J Eng Innov Technol (IJEIT)*, 2012, 2(1): 189–194.
- [38] 王娜, 王静康, 冯涵, 等. 晶体结构预测方法与应用[J]. *化学工业与工程*, 2023, 40(1): 2–14.
- WANG Na, WANG Jingkang, FENG Han, et al. *Chemical Industry and Engineering*, 2023, 40(1): 2–14.
- [39] CHENG G J, GONG X G, YIN W J. Crystal structure prediction by combining graph network and optimization algorithm[J]. *Nat Commun*, 2022, 13(1): 1492.
- [40] GRASER J, KAUWE S K, SPARKS T D. Machine learning and energy minimization approaches for crystal structure predictions: A review and new horizons[J]. *Chem Mater*, 2018, 30(11): 3601–3612.
- [41] RYAN K, LENGVEL J, SHATRUK M. Crystal structure prediction via deep learning[J]. *J Am Chem Soc*, 2018, 140(32): 10158–10168.
- [42] LIANG H T, STANEV V, KUSNE A G, et al. CRYSPNet: Crystal structure predictions via neural networks[J]. *Phys Rev Materials*, 2020, 4(12): 123802.
- [43] GLASS C W, OGANOV A R, HANSEN N. USPEX—evolutionary crystal structure prediction[J]. *Comput Phys Commun*, 2006, 175(11/12): 713–720.
- [44] WANG Y C, LV J A, ZHU L, et al. CALYPSO: A method for crystal structure prediction[J]. *Comput Phys Commun*, 2012, 183(10): 2063–2070.
- [45] YAMASHITA T, KANEHIRA S, SATO N, et al. Cr₃SPY: A crystal structure prediction tool accelerated by machine learning[J]. *Sci Technol Adv Mater Meth*, 2021, 1(1): 87–97.
- [46] CURTIS F, LI X Y, ROSE T, et al. GATOR: A first-principles genetic algorithm for molecular crystal structure prediction[J]. *J Chem Theory Comput*, 2018, 14(4): 2246–2264.
- [47] NOUIRA A, SOKOLOVSKA N, CRIVELLO J C. Crystalgan: Learning to discover crystallographic structures with generative adversarial networks. arXiv. <https://arxiv.org/abs/1810.11203> (2018).
- [48] LONIE D C, ZUREK E. XtalOpt: An open-source evolutionary algorithm for crystal structure prediction[J]. *Comput Phys Commun*, 2011, 182(2): 372–387.
- [49] SONG Y Q, SIRIWARDANE E M D, ZHAO Y, et al. Computational discovery of new 2D materials using deep learning generative models[J]. *ACS Appl Mater Interfaces*, 2021, 13(45): 53303–53313.
- [50] LEE I, KIM J, PARK T, et al. Predicting mechanical properties of newly generated two-dimensional materials with minimum uncertainty[J]. *Mater Today Adv*, 2023, 18: 100374.
- [51] KUKLIN M S, KARTTUNEN A J. Crystal structure prediction of magnetic transition-metal oxides by using evolutionary algorithm and hybrid DFT methods[J]. *J Phys Chem C Nanomater Interfaces*, 2018, 122(43): 24949–24957.
- [52] PAKHNOVA M, KRUGLOV I, YANILKIN A, et al. Search for stable cocrystals of energetic materials using the evolutionary algorithm USPEX[J]. *Phys Chem Chem Phys*, 2020, 22(29): 16822–16830.
- [53] ZHANG W W, OGANOV A R, GONCHAROV A F, et al. Unexpected stable stoichiometries of sodium chlorides[J]. *Science*, 2013, 342(6165): 1502–1505.
- [54] WANG Y C, LV J, GAO P Y, et al. Crystal structure prediction via efficient sampling of the potential energy surface[J]. *Acc Chem Res*, 2022, 55(15): 2068–2076.
- [55] GAO B, GAO P Y, LU S H, et al. Interface structure prediction via CALYPSO method[J]. *Sci Bull*, 2019, 64(5): 301–309.
- [56] LU S H, WANG Y C, LIU H Y, et al. Self-assembled ultrathin nanotubes on diamond (100) surface[J]. *Nat Commun*, 2014, 5: 3666.
- [57] YANG J N, XIAO Y, KUANG X Y. The local structure and electronic properties of Ho³⁺-doped BaY₂F₈: A first-principles method[J]. *Mater*

- Chem Phys, 2023, 298: 127459.
- [58] MIYAZAWA H, LIU L J, KAKIMOTO K. Numerical analysis of influence of crucible shape on interface shape in a unidirectional solidification process[J]. J Cryst Growth, 2008, 310(6): 1142–1147.
- [59] LI Z Y, LIU L J, ZHANG Y F, et al. Preservation of seed crystals in feedstock melting for cast quasi-single crystalline silicon ingots[J]. Int J Photoenergy, 2013, 2013: 1–7.
- [60] FÜHNER T, JUNG T. Use of genetic algorithms for the development and optimization of crystal growth processes[J]. J Cryst Growth, 2004, 266(1/3): 229–238.
- [61] SU J A, CHEN X J, LI Y A, et al. A niching genetic algorithm applied to optimize a SiC-bulk crystal growth system[J]. J Cryst Growth, 2017, 468: 914–918.
- [62] LIIRI M, ENQVIST Y, KALLAS J, et al. CFD modelling of single crystal growth of potassium dihydrogen phosphate (KDP) from binary water solution at 30 °C[J]. J Cryst Growth, 2006, 286(2): 413–423.
- [63] LI Z X, SMIRNOV A. Application of computer modeling to pulling rate and productivity of Czochralski pullers in PV Si crystal growth[J]. J Cryst Growth, 2023, 611: 127178.
- [64] RYU J H, LEE W J, LEE Y C, et al. CFD analysis for effects of the crucible geometry on melt convection and growth behavior during sapphire single crystal growth by Kyropoulos process[J]. J Korean Cryst Growth Cryst Technol, 2012, 22(3): 115–121.
- [65] 穆宏赫, 王鹏飞, 施宇峰, 等. 热交换坩埚下降法制备大尺寸氟化铯晶体的热场设计与优化[J]. 无机材料学报, 2023, 38(3): 288–295. MU Honghe, WANG Pengfei, SHI Yufeng, et al. J Inorg Mater (in Chinese), 2023, 38(3): 288–295.
- [66] BOUCETTA A, KUTSUKAKE K, KOJIMA T, et al. Application of artificial neural network to optimize sensor positions for accurate monitoring: An example with thermocouples in a crystal growth furnace[J]. Appl Phys Express, 2019, 12(12): 125503.
- [67] 郝佩瑶, 郑丽丽, 张辉, 等. 基于迁移学习的大尺寸铸锭晶体硅热场设计[J]. 人工晶体学报, 2022, 51(8): 1323–1336. HAO Peiyao, ZHENG Lili, ZHANG Hui, et al. J Synth Cryst, 2022, 51(8): 1323–1336.
- [68] YU W C, ZHU C, TSUNOOKA Y, et al. Geometrical design of a crystal growth system guided by a machine learning algorithm[J]. CrystEngComm, 2021, 23(14): 2695–2702.
- [69] KUTSUKAKE K, NAGAI Y T, BANBA H. Virtual experiments of Czochralski growth of silicon using machine learning: Influence of processing parameters on interstitial oxygen concentration[J]. J Cryst Growth, 2022, 584: 126580.
- [70] ASADIAN M, SEYEDEIN S H, ABOUTALEBI M R, et al. Optimization of the parameters affecting the shape and position of crystal–melt interface in YAG single crystal growth[J]. J Cryst Growth, 2009, 311(2): 342–348.
- [71] 张晶, 潘亚妮, 刘丁, 等. 基于响应面法的直拉硅单晶生长工艺参数优化方法[J]. 人工晶体学报, 2018, 47(12): 2429–2435. ZHANG Jing, PAN Yani, LIU Ding, et al. J Synth Cryst, 2018, 47(12): 2429–2435.
- [72] TSUNOOKA Y, KOKUBO N, HATASA G, et al. High-speed prediction of computational fluid dynamics simulation in crystal growth[J]. CrystEngComm, 2018, 20(41): 6546–6550.
- [73] QI X F, MA W C, DANG Y F, et al. Optimization of the melt/crystal interface shape and oxygen concentration during the Czochralski silicon crystal growth process using an artificial neural network and a genetic algorithm[J]. J Cryst Growth, 2020, 548: 125828.
- [74] 刘丁, 赵小国, 赵跃. 直拉硅单晶生长过程建模与控制研究综述[J]. 控制理论与应用, 2017, 34(1): 1–12. LIU Ding, ZHAO Xiaoguo, ZHAO Yue. Contr Theory Appl, 2017, 34(1): 1–12.
- [75] ZHANG N, LIU D, WAN Y. Numerical modeling and control of the dynamic single silicon crystal growth process[J]. IEEE Trans Semicond Manuf, 2021, 34(1): 94–103.
- [76] SONG D J, TAN B X, LIU J C. Improvement of crystal growth control system[J]. Adv Mater Res, 2012, 433–440: 7569–7573.
- [77] 王庆, 姜雷, 张婷曼. 晶体生长过程建模及解耦控制[J]. 人工晶体学报, 2011, 40(5): 1353–1357. WANG Qing, JIANG Lei, ZHANG Tingman. J Synth Cryst, 2011, 40(5): 1353–1357.
- [78] 李建鸿, 纪文刚, 宋星, 等. 基于改进 BP 神经网络算法的激光晶体生长控制研究[J]. 人工晶体学报, 2019, 48(8): 1438–1444. LI Jianhong, JI Wengang, SONG Xing, et al. J Synth Cryst, 2019, 48(8): 1438–1444.
- [79] 任俊超, 刘丁, 万银. 基于混合集成建模的硅单晶直径自适应非线性预测控制[J]. 自动化学报, 2020, 46(5): 1004–1016. REN Junchao, LIU Ding, WAN Yin. Acta Autom Sin, 2020, 46(5): 1004–1016.
- [80] 林光伟, 王珊, 张西亚, 等. 基于贝叶斯参数优化的无模型自适应硅单晶直径控制[J]. 人工晶体学报, 2022, 51(2): 229–241. LIN Guangwei, WANG Shan, ZHANG Xiya, et al. J Synth Cryst (in Chinese), 2022, 51(2): 229–241.
- [81] LIU D, ZHANG N, JIANG L, et al. Nonlinear generalized predictive control of the crystal diameter in CZ-Si crystal growth process based on stacked sparse autoencoder[J]. IEEE Trans Contr Syst Technol, 2020, 28(3): 1132–1139.
- [82] WAN Y, LIU D, REN J C. Iterative learning-based predictive control method for electronic grade silicon single crystal batch process[J]. IEEE Trans Semicond Manuf, 2023, 36(2): 239–250.
- [83] DANG Y F, ZHU C, IKUMI M, et al. Adaptive process control for crystal growth using machine learning for high-speed prediction: application to SiC solution growth[J]. CrystEngComm, 2021, 23(9): 1982–1990.

Research Progress on the Application of Machine Learning in Crystal Growth

YANG Mingliang^{1,2,3}, WANG Ruixian^{1,2,3}, SUN Guihua^{1,3}, WANG Xiaofei^{1,3}, DOU Renqin^{1,3}, HE Yi^{1,2,3}, ZHANG Qingli^{1,3}

(1. The Key Laboratory of Photonic Devices and Materials, Anhui Province, Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Hefei Institutes of Physical Science, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China; 2. University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China; 3. Advanced Laser Technology Laboratory of Anhui Province, Hefei 230037, China)

Extended Abstract

With recent development on various functional crystal materials and large-size crystal preparation technologies, the reliance on experience and technological bottlenecks in traditional crystal growth becomes increasingly prominent. To meet the growing theoretical and technical demands, some methods and technologies for crystal growth are developed. Also, the development of computer science and machine learning technologies provides some opportunities in this field. Machine learning, through the analysis of vast amounts of data, can automatically extract the underlying knowledge and patterns, thereby enabling a prediction of crystal structures and an optimization/control of the crystal growth process.

Crystal structure prediction involves determining the microstructure of a crystal under given chemical compositions. Traditionally, the structure of crystals can be just determined through the related experiments. However, the experimental methods are time-consuming and costly processes. In contrast, machine learning methods can learn from the crystal structural data and predict the structure of crystals without the experiments. A series of crystal structure prediction softwares named CRYSPNet, USPEX, and CALYPSO are developed.

Conventional methods of optimizing growth conditions usually require extensive experience and experimental trial-and-error. Machine learning, via analyzing the existing data on crystal growth, can predict the optimal parameter combinations, guide the selection of parameters in actual production and accelerate the optimization process. Compared to conventional experiments and CFD simulations, machine learning offers faster and more accurate predictions. For instance, model construction based on neural networks is approximately 10^7 times faster than the CFD simulation. The application of such novel technologies in crystal growth can promote the research and development in the related fields.

The crystal growth process is complex and variable, involving the interaction of multiple factors. Conventional control methods largely rely on experience and actual operations. However, with the application and development of machine learning and automatic control methods, crystal growth control is no longer limited to subjective and empirical judgments, but can leverage the capabilities of computer algorithms and data analysis to achieve more accurate and precise control of crystal growth. Machine learning via utilizing large datasets to train and optimize machine learning models can predict and determine the dynamic changes in crystal growth, and timely adjust and control, thereby achieving an effective control over the crystal growth process.

Summary and prospects This review provided a brief summary of the research progress in the application of machine learning to crystal growth, and discussed mainly three aspects, *i.e.*, crystal structure prediction, optimization of crystal growth conditions, and methods of controlling crystal growth. In terms of crystal structure prediction, machine learning achieves significant results, but the accuracy and computational efficiency still need to be improved, especially for large-size, multi-component complex systems. In the future, it is necessary to further improve and develop algorithms to increase the accuracy and computational efficiency of prediction models. Regarding the optimization of crystal growth conditions, machine learning methods can predict the optimum parameter combinations, speeding up the optimization process. However, there are still some issues with data accuracy, process complexity, and model interpretability that need to be addressed. Future work should involve the integration of more machine learning algorithms, combined with theoretical and practical research, to develop reliable and interpretable models. In terms of methods for crystal growth control, machine learning algorithms can precisely control the crystal growth process, improving the stability and quality of crystal growth. However, there are still some challenges such as in-depth studies on the physical mechanisms of crystal growth, the laws of control, and the simulation of complex systems with multiple coupled factors. In the future, it is necessary to combine advanced machine learning algorithms and optimization methods to enhance the simulation of multi-factor coupling and complex systems, further improving the control capability of crystal growth.

Keywords computer science; machine learning; crystal growth; structure prediction