用于预测实验时间尺度下氩/氮放电中氮化铝溅射与薄膜沉积的物理分离人工神经网络

Tobias Gergs,[1,*] Thomas Mussenbrock,[1,†] 和 Jan Trieschmann[2,3,‡]1应用电动力学与等离子体技术教席，电气工程与信息科学系，波鸿鲁尔大学，*44780* 波鸿，德国2理论电气工程，电气与信息工程系，基尔大学，凯撒大街*2*号，*24143* 基尔，德国3基尔纳米、表面与界面科学 *KiNSIS*，基尔大学，克里斯蒂安-阿尔布雷希特广场*4*号，*24118* 基尔，德国（日期：2023年1月10日）

arXiv:2301.03524v1 [cond-mat.mtrl-sci] 9 Jan 2023

摘要

理解并建模等离子体-表面相互作用，是一个涉及多尺度和多种物理学问题的问题。已有研究表明，跨尺度的机器学习表面代理模型能够以原子级保真度描述纯金属物理气相沉积过程。然而，数据生成模拟的巨大计算成本，使其无法在实际应用中对相关时间尺度上的过程进行预测。本研究针对氩/N_2 放电中的氮化铝溅射沉积，通过开发一种能够有效填充参数空间的方案，解决了这一问题。研究采用随机化等离子体-表面相互作用/扩散过程的混合反应分子动力学/带时间戳的力偏置蒙特卡罗模拟，构建了一个物理分离人工神经网络。将这一通用机器学习模型应用于一个具体的实验参考案例研究，可系统分析粒子通量发射，以及过程时间长达45分钟内底层系统状态（例如成分、质量密度、应力和点缺陷结构）的演变。

* tobias.gergs@rub.de

† thomas.mussenbrock@rub.de

‡ jt@tf.uni-kiel.de

I. 引言

在等离子体的大多数技术应用中（例如薄膜溅射沉积、催化），都会涉及表面，因此也会涉及等离子体-表面相互作用（例如生长、溅射、表面化学反应）[1–4]。分析、理解并建模后者，被认为是实现知识驱动型工艺设计的关键。然而，这两种物质状态（即等离子体和固态）的物理学要求在长度和时间尺度上进行描述，而这些尺度相差数个数量级（见图1） [5–8]。

常见的尺度衔接方案包括事件依赖系数、查找表和解析公式（例如 Berg 模型 [9, 10], Sigmund–Thompson 理论 [11–13]）。然而，这些方案都缺乏根本的原子级保真度。

这一问题已通过应用机器学习（ML）模型得到解决。研究表明，这些模型能够高精度地描述与等离子体科学相关的物理过程，同时降低统计噪声，并实现良好的泛化 [5, 14–21]。尤其是，研究人员已提出一系列机器学习等离子体-表面相互作用（PSI）代理模型，用于 $Ti_{1-x}Al_x$ 薄膜的溅射沉积。首先，研究人员训练了一个多层感知机（MLP），用于预测氩$^+$ 离子轰击复合靶材 $Ti_{0.5}Al_{0.5}$所诱导的溅射现象 [5]。其次，研究人员针对 $Ti_{1-x}Al_x$ 复合靶材 [20]，构建了一种更先进的人工神经网络（ANN），将专用映射网络与 β变分自编码器（β-VAE [22–26]）的解码器相结合。其中，化学计量比被引入为一种基本的表面状态描述符。这两项研究均基于物质中的离子输运（TRIM）模拟数据。此外，一种物理分离人工神经网络

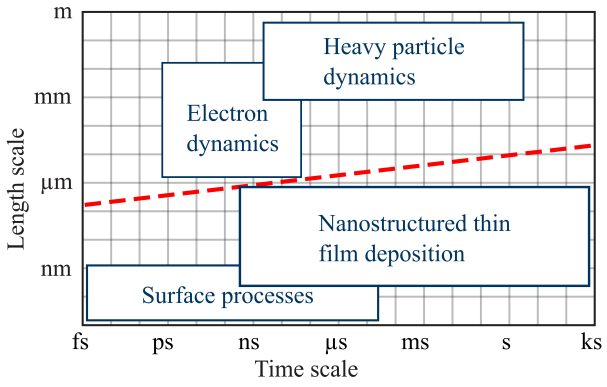

图 1. 薄膜溅射沉积的物理时间与长度尺度示意图。

（PSNN）被提出，用于以通用方式描述铝材料体系和氩工作气体下基底及靶材处的 PSI。PSNN 由两个条件变分自编码器（CVAEs [21, 26, 27]）组成。一个用于描述 PSI（例如溅射、离子轰击诱导的损伤形成）；另一个用于描述缺陷结构（即环统计连接性分布 [28–30]）向表面状态（即化学计量比、质量密度、双轴应力、拉伸应力）的转化。研究表明，两者（即缺陷结构和表面状态）足以完整描述一个随时间演化的系统。然而，由于数据生成基于分子动力学（MD）模拟，受巨大计算成本所限，后者仅模拟了连续两次粒子剂量的轰击（总计： 2.42×10^{15} particles/cm^2）。因此，研究发现，输入参数空间（即粒子通量组成、离子能量、表面状态）的采样不足，无法据此建立用于金属薄膜溅射沉积的长期演化机器学习等离子体-表面相互作用代理模型。

在本研究中，我们通过提出一种随机化数据生成方案等方式，进一步发展了机器学习表面代理模型的概念。该方案使 PSNN 能够预测氩/N_2 放电中氮化铝薄膜的反应溅射沉积过程，预测时长可达数小时。所研究的过程与制备硬质涂层、耐磨保护材料（例如过渡金属氮化铝、过渡金属氮氧化铝）以及能量采集（能量回收） [31–35]有关。本文结构如下：第二节介绍所研究的场景。第三节描述所采用的方法和参数。第四节呈现并讨论研究结果。最后，第五节总结全文。

II. 装置

本文考虑氩/N_2 等离子体放电与氮化铝表面相互作用的一般情形。假设气体放电和溅射粒子输运动力学已预先确定，研究重点在于基底侧的氮化铝薄膜沉积。氮化铝的靶侧溅射并非主要关注内容，但纳入考量的离子能量范围上限为 300 eV。要开发稳健可靠的数据驱动机器学习模型，关键在于高效填充能够表征 PSI 和扩散动力学的相关参数空间。为此，对给定数量的初始

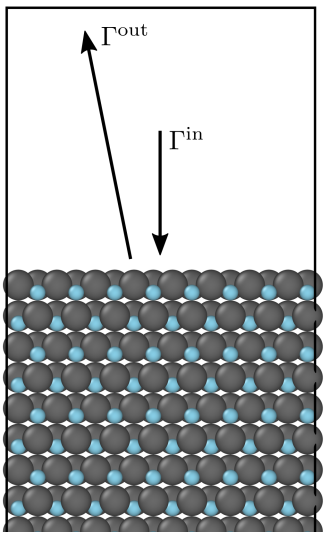

图2。PSI装置示意图。使用Open Visualization Tool（OVITO） [36]呈现原子构型。铝原子和氮原子分别以灰色和浅蓝色表示。

氮化铝体系统进行随机采样，随后对其执行一系列扩散过程和 PSI 模拟（例如离子轰击）。记录相应的演化过程并用于机器学习。具体步骤简述如下：

系统状态 考虑一个纤锌矿AlN体超胞，其点缺陷结构包含最多5%的氩、10%的铝间隙原子和10%的氮间隙原子，以及20%的铝空位和20%的氮空位。假设该缺陷结构足以定义系统 [21, 37]。原子构型弛豫后，确定补充属性。系统由质量密度 ρ、晶格常数 a、生成热 ΔH_{f}、体模量 B_0及其导数 B_0'，以及12种点缺陷数量 $\rho_{\text{v}_{\text{Al}}}$, $\rho_{\text{Al}_{\text{N}}}$, $\rho_{\text{Al}_{\text{i}}}$, $\rho_{\text{v}_{\text{N}}}$,$\rho_{\text{N}_{\text{Al}}}$, $\rho_{(\text{N-N})_{\text{Al}}}$, $\rho_{\text{N}_{\text{i}}}$, $\rho_{(\text{N-N})_{\text{N}}}$, $\rho_{(\text{N-N})_{\text{i}}}$, $\rho_{\text{Ar}_{\text{Al}}}$, $\rho_{\text{Ar}_{\text{N}}}$, $\rho_{\text{Ar}_{\text{i}}}$表征。缺陷类型采用Kr¨oger-Vink记号（下标） [38]表示。缺陷数量决定系统中的原子总数：

$$n_{\text{tot}} = (1 + \rho_{\text{v}_{\text{Al}}} + \rho_{\text{v}_{\text{N}}} - \rho_{\text{Al}_{\text{i}}} - \rho_{\text{N}_{\text{i}}} - \rho_{\text{Ar}_{\text{i}}} - 2\rho_{(\text{N-N})_{\text{i}}} - \rho_{(\text{N-N})_{\text{N}}} - \rho_{(\text{N-N})_{\text{Al}}})^{-1} n_{\text{tot}}^{\text{ideal}} \qquad (1)$$

$n_{\text{tot}}^{\text{ideal}}$表示理想AlN超胞中的原子总数（每个晶胞含8个原子）。点缺陷结构决定了铝、氮和氩的浓度 c_{Al}、 c_{N}和 c_{Ar}，这些浓度

表示为成分：

$$c_{\mathrm{Al}} = 0.5\frac{n_{\mathrm{tot}}^{\mathrm{ideal}}}{n_{\mathrm{tot}}} - \rho_{\mathrm{v_{Al}}} + \rho_{\mathrm{Al_i}} + \rho_{\mathrm{Al_N}} - \rho_{\mathrm{N_{Al}}} - \rho_{\mathrm{(N\text{-}N)_{Al}}} - \rho_{\mathrm{Ar_{Al}}} \tag{2a}$$

$$c_{\mathrm{N}} = 0.5\frac{n_{\mathrm{tot}}^{\mathrm{ideal}}}{n_{\mathrm{tot}}} - \rho_{\mathrm{v_N}} + \rho_{\mathrm{N_i}} + 2\rho_{\mathrm{(N\text{-}N)_i}} + \rho_{\mathrm{(N\text{-}N)_N}} + 2\rho_{\mathrm{(N\text{-}N)_{Al}}} - \rho_{\mathrm{Al_N}} - \rho_{\mathrm{Ar_N}} \tag{2b}$$

$$c_{\mathrm{Ar}} = \rho_{\mathrm{Ar_i}} + \rho_{\mathrm{Ar_{Al}}} + \rho_{\mathrm{Ar_N}} \tag{2c}$$

方程（2a）和（2b）右侧的第一项对应理想构型，因为在不存在点缺陷时，$0.5n_{\mathrm{tot}}^{\mathrm{ideal}}$是铝原子或氮原子的数量。质量密度由晶格常数、原子总数 n_{tot}以及成分决定：

$$\rho = \frac{m_{\mathrm{Al}}c_{\mathrm{Al}} + m_{\mathrm{N}}c_{\mathrm{N}} + m_{\mathrm{Ar}}c_{\mathrm{Ar}}}{\sqrt{3}n_{\mathrm{uc}}a^2c}n_{\mathrm{tot}} \tag{3}$$

m_{Al}、 m_{N}和 m_{Ar} 分别是铝、氮和氩原子的质量。 n_{uc} 是晶胞的数量（稍后详述），晶格常数 $c = 1.6a$ 保持不变（不考虑各向异性形变）。

等离子体-表面相互作用和扩散 对于每个初始化的系统，交替进行七次扩散和等离子体-表面相互作用模拟（稍后详述）。首先，研究体扩散过程对系统状态的影响。为此，设定温度 T 。其次，沿着 $[100]$ 或 $[002]$方向劈开体相系统，得到氮化铝表面。第三，研究单个粒子 s （即铝、氮、N_2, 氩）以指定动能 E_{kin} 轰击氮化铝表面的影响。等离子体对表面的作用通过粒子通量 Γ_s^{in}、粒子的动能 E_{kin}以及物种 s来表征。发射通量记为 Γ_s^{out}。

前两者和最后一者用于构建两个独立的机器学习回归模型（即 PSI-CVAE、Diffusion-CVAE），最终用于组成 PSNN。

III. 方法

首先，介绍用于数据生成的混合反应分子动力学（RMD）/时间戳力偏置蒙特卡罗（tfMC）模拟。其次，介绍数据处理、训练流程以及所采用的度量指标。第三，概述 PSNN 的结构和信息流。第四，介绍物理约束及其实现方式。第五，介绍超参数（HP）优化。第六，介绍生产运行。

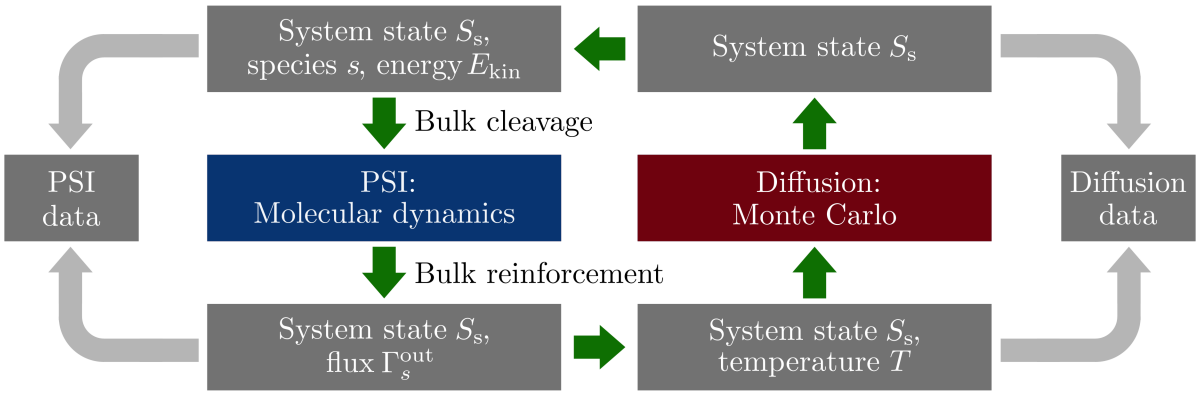

图 3. 数据生成混合 RMD/tfMC 模拟的工作流程与信息流示意图。

A. Hy混合反应分子动力学 / 时间戳力偏置蒙特卡罗

RMD、tfMC 及混合 RMD/tfMC 模拟均使用开源的大规模原子/分子大规模并行模拟器（LAMMPS） [39–43]进行。氮化铝复合物之间的相互作用由第三代电荷优化多体（COMB3）势描述；该势与齐格勒–比尔萨克–利特马克（ZBL）势相结合（COMB3/ZBL 势），通过纳入屏蔽核排斥来描述高能碰撞 [44–46]。COMB3 形式体系见 [44]。COMB3 氮化铝参数化及其与 ZBL 势的结合方式见 [46]。其前身原本用于纳米结构和异质界面，后经重新审视，以更准确地描述等离子体–表面相互作用（例如离子轰击诱导的损伤产生）[46, 47]。为描述 PSI 期间（例如离子轰击、溅射）发生的有意义的电荷交换，通过应用电荷转移平衡（QTE$^+$）方法使原子电荷达到平衡 [48]。下文所说的电荷平衡，均指采用时间步长为 10^{-2} fs 的 QTE$^+$ 方法。用于重叠积分计算的 1s 斯莱特型轨道指数分别为：铝为 0.668 $\mathrm{\AA}^{-1}$，氮为 1.239 $\mathrm{\AA}^{-1}$ [48]。

a. 系统状态初始化 已有研究论证并证明，缺陷结构足以描述一个系统 [21, 37]。因此，通过指定点缺陷结构来构建初始原子构型。氩和铝（氮）间隙原子数量 $\rho_{\mathrm{Ar_i}}$ 和 $\rho_{\mathrm{Al_i}}$ 从正态分布 $\mathcal{N}(0,\sigma)$中采样，其标准

差分别为 $3\sigma = 5$ % 和 $3\sigma = 10$ %。N间隙原子数量包括单个间隙原子和分裂间隙原子（N-N） [49]。在表面状态初始化结束时，二者会彼此区分。Al和N空位数量 $\rho_{\mathrm{v_{Al}}}$ 和$\rho_{\mathrm{v_N}}$ 从正态分布 $\mathcal{N}(0,\sigma)$中采样，标准差为 $3\sigma = 20$ %。初始时，不定义任何反位点（即 $\mathrm{N_{Al}}$、$\mathrm{(N\text{-}N)_{Al}}$、$\mathrm{Al_N}$、$\mathrm{Ar_{Al}}$、$\mathrm{Ar_N}$）。

表面取向（即 AlN(002)、AlN(100)）由抛硬币决定。无论哪种情况，都会构建一个由 $8 \times 5 \times 7$ 个正交晶胞组成的体相超胞，其晶格常数为 a=3.136 °Å 和 $c = 1.6a$。理想 AlN 超胞中的原子总数（每个晶胞含 8 个原子）为 $n_{\mathrm{tot}}^{\mathrm{ideal}} = 2240$。目标原子总数 n_{tot} 根据点缺陷数量，按照公式（1）计算。点缺陷的绝对数量通过将原子总数乘以各类点缺陷的数量得到。

首先，通过从系统中移除所需数量的铝原子和氮原子，生成铝空位和氮空位。其次，通过将新原子（即铝、氮、氩）随机插入模拟区域来处理间隙原子。氩原子在表面法向上的坐标被限制在模拟区域上下边界之外 5 °Å 的范围内。若新原子彼此重叠或与原有原子重叠，则将其删除。重复第二步，直至生成正确数量的铝、氮和氩原子。

随后对原子构型进行弛豫。COMB3相互作用势存在的微小不连续性，妨碍了单一共轭梯度下降算法的成功应用。为解决这一问题，我们按照图 4 所示执行多次能量最小化（弛豫）。交替进行电荷平衡（即应用 $\mathrm{QTE^{+}}$）与弛豫，旨在提高计算效率。与收缩的原子构型相比，膨胀的原子构型更容易弛豫。因此，当瞬时压力低于 -1 MPa 时，系统会受到压缩。

通过将映射到晶胞中的每个原子的位置与理想 AlN(002) 或 AlN(100) 结构中的铝原子位点和氮原子位点进行比较，确定所得点缺陷结构（同时考虑周期镜像）。距离容差定义为 Al-N键长的一半，即 1.9/2 °A。通过搜索氮原子之间小于 1.5 °A 的原子间距，可识别氮分裂间隙原子 $\mathrm{(N\text{-}N)_i}$、$\mathrm{(N\text{-}N)_N}$ 或反位点 $\mathrm{(N\text{-}N)_{Al}}$ （N-N键长等于 1.3 °A [49]）。最后计算铝和氮的数量

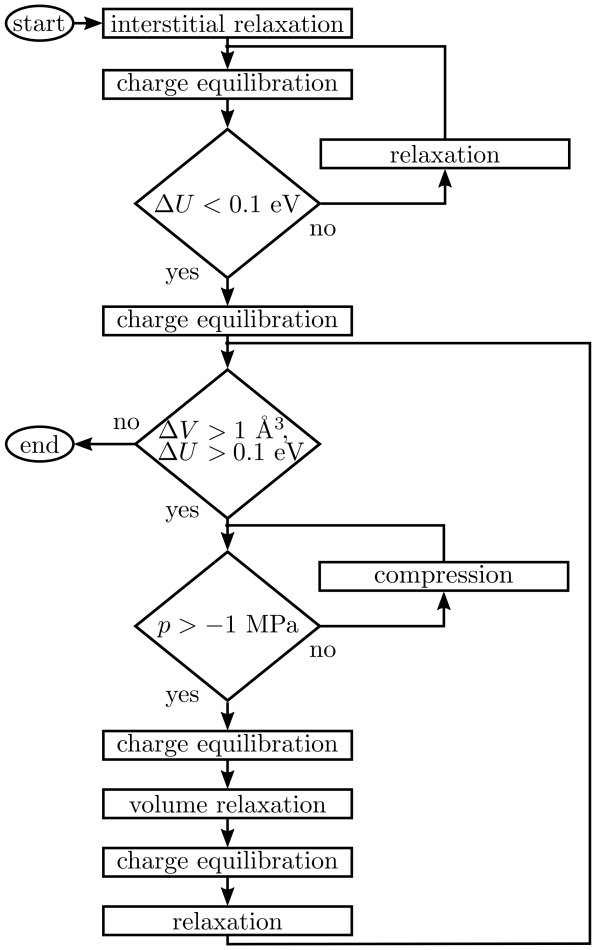

图 4. 体相弛豫的工作流程。弛豫：应用 LAMMPS 中实现的共轭梯度下降算法。任意原子上的残余力容差为 1 eV/ ˚A。电荷平衡：应用 QTE$^+$ 方法执行一个时间步长。ΔU、 ΔV 和 p 分别表示势能、体积和瞬时压力值的变化。压缩：沿各个方向施加应变 -10^{-6} 。体积弛豫：除了原子位点弛豫外，还对模拟盒的尺寸进行各向同性调整，以消除系统中的残余应力。

空位，以满足粒子平衡：

$$n_{\mathrm{v_{Al}}} = 0.5n_{\mathrm{tot}}^{\mathrm{ideal}} - n_{\mathrm{tot,Al}} + n_{\mathrm{Al_i}} + n_{\mathrm{Al_N}} - n_{\mathrm{N_{Al}}} - n_{\mathrm{(N-N)_{Al}}} - n_{\mathrm{Ar_{Al}}} \tag{4a}$$

$$n_{\mathrm{v_N}} = 0.5n_{\mathrm{tot}}^{\mathrm{ideal}} - n_{\mathrm{tot,N}} + n_{\mathrm{N_i}} + n_{\mathrm{(N-N)_N}} + 2n_{\mathrm{(N-N)_i}} + n_{\mathrm{N_{Al}}} + 2n_{\mathrm{(N-N)_{Al}}} - n_{\mathrm{Al_N}} - n_{\mathrm{Ar_N}} \tag{4b}$$

符号 n 表示点缺陷的绝对数量，而下标表示特定的点缺陷类型。当所提供的距离容差导致空位数量为负时

则会添加弗伦克尔对（即空位与间隙原子之和），以消除这一诊断伪影。不过，这种处理很少使用，目的仅在于确保结果具有物理意义（即空位数量非负）。

最后，通过将三阶 Birch-Murnaghan 状态方程（EOS）拟合到刚弛豫结构 [50, 51] 的 p-V/n_{tot} 和 U/n_{tot}-V/n_{tot} 曲线上，得到势能的最小值及相应的晶格常数。系统尺寸按各向同性缩放，在 -10^{-2} 和 10^{-2} 之间等间距取十个应变进行评估。先压缩系统，再将其扩张。对每个探测到的原子构型，均弛豫其原子位点。

b. 扩散 采用时间戳力偏置蒙特卡罗方法模拟扩散过程[39–41]。最轻原子（即氮）的最大位移长度为 $\Delta = 0.19$ Å，约为氮化铝典型最近邻距离的 10%。温度从 300 至 1000 K 之间的均匀分布中采样。同时，采用 QTE^{+}方法，时间步长为 10^{-2} fs，容差为 1 V，阻尼常数为 0.45 [48]。模拟运行 10^{4} 步。随后弛豫所得的原子构型，并按前文所述进行评估（跳过间隙原子弛豫）。

c. 等离子体-表面相互作用 沿 $[100]$ 或 $[002]$ 方向切开体相系统，并沿表面法向将模拟区域额外延长 35 Å，即可建立表面。该数值定义为 11 Å 和 24 Å 之和，分别对应 COMB3 截断半径，并作为缓冲区，用于识别反射粒子或溅射粒子。通过交替进行电荷平衡（即 QTE^{+}，固定原子构型）和弛豫（即执行共轭梯度下降最小化，直至每个原子感受到的残余力低于 1 eV/Å，电荷分布保持固定），调整原子位点，直到每次迭代的势能变化小于 0.1 eV。表面层沿两个平行于表面的方向随机位移，以包含不同的撞击位置（入射粒子位于表面层上方中央）。

按照此流程，系统可划分为四个区域，如图5所示：i）表面法向坐标低于阈值 $z_{\mathrm{th}} = h_z - 15$ Å $-(h_z - 15$ Å$)E_{\mathrm{kin}}/E_{\mathrm{kin,\ max}}$的排除原子。随着入射粒子 E_{kin}动能的增加，z_{th} 线性减小，动能范围为0 eV至300 eV（$E_{\mathrm{kin,\ max}} = 300$ eV）。 h_z 为表面层高度。排除原子不得与任何其他原子相互作用，

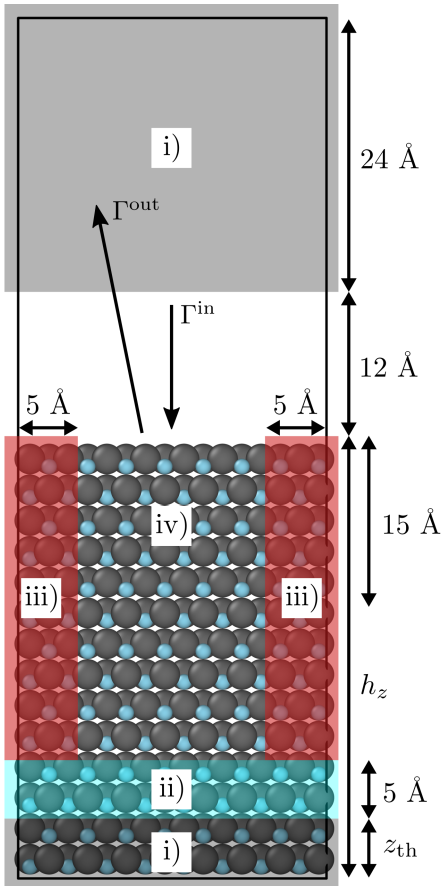

图5. PSI 装置示意图。使用 OVITO [36] 渲染原子构型。铝原子和氮原子分别显示为灰色和浅蓝色。分别将包含 i) 被排除、ii) 固定不动、iii) 受温度控制以及 iv) 所有其余原子的区域显示为半透明灰色、浅蓝色、红色和不着色。

从而有效减小表面层厚度，降低计算成本。这些原子也不参与电荷平衡。当反射粒子或溅射粒子的表面法向坐标超过$h_z + 12$ ˚A时，它们与其他原子的相互作用也会被排除。不过，这些粒子仍保留在模拟区域中，以便稍后进行评估。该组成员会动态更新（即每2000步更新一次）。ii）表面法向坐标低于阈值 $z_{\text{th}} + 5$ ˚A的固定原子。这些原子不随时间演化，以将表面层固定在模拟区域中。iii）在表面平行方向上，距左侧或右侧周期性边界小于 5 ˚A的可动原子，会与阻尼常数为100 fs的朗之万恒温器耦合，以逐渐移除其动能，目标温度为0 K。氩原子始终排除在外。iv）所有其余原子。

入射粒子在表面上方 11 ˚A处生成，并在横向居中。其物种（即 Al、N、N_2, Ar）由随机方式确定，而假定弹射粒子在相互作用前为电中性。各候选物种被选中的概率相等。其动能范围为 0 eV 至 300 eV，通过将从均匀分布中抽取的样本平方得到 $\mathcal{U}(0\ \sqrt{\text{eV}}\ \sqrt{300\,\text{eV}})$。假定原子垂直撞击表面（其速度矢量平行于表面的分量为零）。时间步长为 0.25 fs，之后会逐渐减小，以确保任何原子的最大位移和动能变化分别不超过 0.1 ˚A 和 0.01 eV。模拟反复运行 1 ps，直到可动原子的温度降至 100 K 以下。由于沟道效应而越过模拟区域下方边界的入射原子，会在表面层内沿表面法向随机位置重新插入（保持横向坐标不变；若与另一原子的重叠小于 0.5 ˚A，则重复此过程）。

为再次从表面构型转变为体相构型，将原子位点按前文所述进行弛豫。本节开头所述的平行于表面的随机位移将被撤销。最上方温度受控原子 Δz_{up} 的表面法向坐标变化被用作参考，以抵消粒子撞击所引起的可动表面层热膨胀。所有可动原子的表面法向坐标 z 均按 $z \to z - \Delta z_{\text{up}}(z - z_{\text{th}} - 5\ \text{˚A})/(z_{\text{up}} - z_{\text{th}} - 5\ \text{˚A})$ 更新（假设膨胀是线性的）。所有超出粒子撞击前表面层原始高度的原子都会从系统中移除。这包括反射粒子、溅射粒子，以及一般情况下位于表面上方的原子（例如吸附原子）。假定后者会对后续层的薄膜生长有所贡献，但不会影响次表层区域。因此，在表面法向重新建立周期性边界、对体相系统进行预测时，会忽略这些原子。通过将基于密度泛函理论的分子动力学热尖峰模拟所得晶格常数和应力与金属氮化铝的实验测量参考值进行比较，验证了这一流程 [37, 52, 53]。随后按照前文所述对所得原子构型进行弛豫并进一步评估（省略间隙原子弛豫）。

B. 数据准备、训练与指标

a. 数据集划分 由 6496 个扩散过程和 4470 个 PSI 组成的数据集经过随机打乱后进行划分，用于超参数优化，以分别使用可用数据的 80%、10% 和 10% 训练、验证和测试机器学习模型。训练集、验证集和测试集的大小分别记为 $n_{\text{data}}^{\text{train}}$、 $n_{\text{data}}^{\text{val}}$ 和 $n_{\text{data}}^{\text{test}}$。

b. 数据归一化 采用最小-最大归一化，其中最小值和最大值取自训练集，以避免数据泄漏。

c. 数据增强 对归一化后的数据进行增强，以虚拟扩展训练数据库，从而建立更稳健的机器学习模型 [54–56]。本研究采用了受约束的 Mixup 数据增强的广义版本。输入样本和输出样本分别由 $\hat{x}_{ij} = \lambda x_i + (1-\lambda) x_j$ 和 $\hat{y}_{ij} = \lambda y_i + (1-\lambda) y_j$ 确定 [57]。因此，向网络提供了线性叠加假设。其有效性由 λ 值的概率分布函数（即 Beta(α)）反映。 α 趋近于零、1 或无穷大，分别对应抛硬币、均匀分布或 0.5。本研究中，仅当从 i 指向 j 的向量长度小于 r_{c} 时，才对样本进行混合，即 $\sqrt{\sum_{k=1}^{n_x} (x_i - x_j)^2} < r_{\text{c}}$。 n_x 是输入参数的数量。 r_{c} 被视为一个超参数。增强后的数据集大小与原始训练数据集大小相同（$n_{\text{data, aug}}^{\text{train}} = n_{\text{data}}^{\text{train}}$）。每个训练轮次开始时，都会重新对训练数据进行增强。

---

d. 训练流程与指标 每个批次使用平均绝对误差（MAE）的反向传播来更新人工神经网络的内部自由度（如权重）。采用随机梯度下降算法自适应矩估计（Adam） [58]。所采用的批次大小 n_{batch} 设定为尽可能符合设置和理想批次大小 $n_{\text{batch, ideal}}$ 并将其作为 HP 纳入，但必须满足 $|n_{\text{batch}} - n_{\text{data, aug}}^{\text{train}} \% n_{\text{batch}}| \leq n_{\text{batch, ideal}}$。因此，所有数据样本对学习进度的贡献几乎相等。

学习率 r_{l} 以 $r_{\text{l-0}}$ 初始化，并在稍后介绍的模拟退火阶段保持恒定。之后，每当验证集平均绝对误差低于此前的最小值时，就将学习率除以 10；该过程持续 $n_{\text{l-patience}}$ 个训练轮次。如果经过 $2.5 n_{\text{l-patience}}$ 个训练轮次后验证集平均绝对误差不再下降，则提前停止训练。

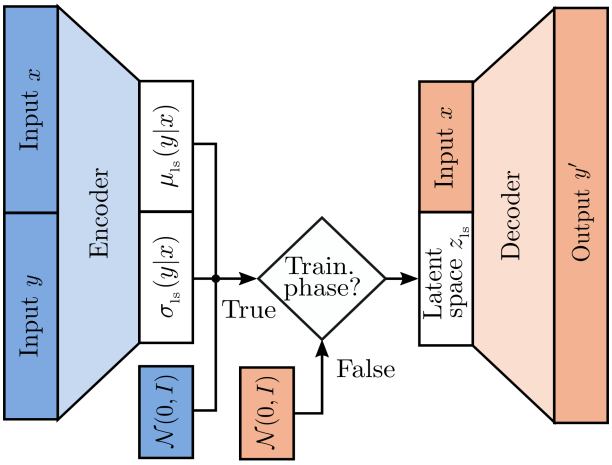

图6. 条件变分自编码器（CVAE）结构示意图。输入变量从左侧输入，预测结果从图表右侧提取。潜在空间的坐标 z_{ls} 由中央的白色方框表示。该图取自 [21]。

e. 超参数研究 采用 10 折蒙特卡罗交叉验证（MCCV）来确定更准确的最终验证集平均绝对误差。训练集、验证集和测试集根据给定的划分随机选取。在 10 折蒙特卡罗交叉验证中，使用 10 种不同的随机划分训练由 10 个人工神经网络组成的集成。该方法用于通过进化策略（稍后介绍）选择最佳超参数。决定系数 R^2 作为额外的次要度量指标引入。测试集旨在对机器学习模型的性能提供无偏评估。通过对最终选定的超参数集合进行 100 折蒙特卡罗交叉验证，以更全面地评估模型，并计算最终的训练、验证和测试误差。

f. 生产运行 生产运行不需要测试集。因此，将测试集与训练集合并，占数据总量的 90 %。建立并训练由十个机器学习模型组成的集成，以减少将数据拆分为两个子集所引入的模型偏差 [59]。

C. 物理分离人工神经网络方法

a. 条件变分自编码器 所提出的 PSNN 结合了两个回归机器学习模型（即 PSI-CVAE、Diffusion-CVAE），它们采用条件变分自编码器（CVAEs） [21, 26, 27]实现。其网络架构和信息

流如图6所示。CVAEs 类似于 β-变分自编码器（β- VAEs [22–26]），其编码器和解码器均以回归输入变量为条件。这些结构采用对称设置。隐藏层的数量 n_{hl} 和每层节点数 n_{npl} 均作为超参数。任意隐藏层和输出层的激活函数分别设为修正线性单元（ReLU）和线性函数。编码器将回归输出变量 y_i 的信息映射为 n_{ls} 维潜在空间表示。通过引入额外的 Kullback-Leibler（KL）散度，约束潜在空间中的分布与标准正态分布相似。 [22, 23]。超参数 β 用于缩放 KL 损失。此外，还采用模拟退火因子对其进行缩放；该因子在 n_{SA} 个训练轮次（亦为超参数）期间，按批次从10^{-3} 以对数方式递增至 1。解码器以回归输入为条件，并尝试利用潜在空间（成功训练后服从标准正态分布）重构回归输出。解码器与训练完成后用于预测的回归模型相似。CVAEs 的详细介绍见 [26, 27]。CVAEs 的输出会经过物理约束自定义层。

b. 物理约束最后一个输出层施加的物理约束简化了各个条件变分自编码器需要解决的回归问题，具体如下。首先，介绍如何抑制外推。其次，介绍用于体扩散过程预测的粒子守恒。请注意，预测量用撇号表示（例如， y'）。

1. 抑制外推先前的研究采用了约束预测，以确保预测符合物理规律（例如，氩浓度处于 0% 至 100% 的范围内） [21]。本研究进一步改进并推广了这一方法。一般而言，机器学习模型擅长插值，但往往无法对超出已知输入数据范围的情况进行外推。因此，为促进系统状态更稳定地演化，并在需要时确保预测量为正（例如质量密度、溅射产额），低于最小训练参考值 y_{min}（高于最大训练参考值y_{max}）的预测值会通过折返三次加以抑制：

$$y' \to 2y_{\mathrm{min}} - y' \qquad \text{if} \quad y' \leq y_{\mathrm{min}} \tag{5a}$$

$$y' \to 2y_{\mathrm{max}} - y' \qquad \text{if} \quad y' \geq y_{\mathrm{max}} \tag{5b}$$

2. 微粒 守恒（扩散）氩、铝和氮原子的绝对数量必须 be

在体扩散过程中保持守恒，这些过程由 Diffusion-CVAE 建模。这还要求平衡各类点缺陷数量。使用三个相应的约束（例如，根据公式 (2c)–(2a)）来确定这些数量，可以减少机器学习模型的输出描述符数量，但最终可能与上一段引入的外推抑制约束相矛盾。例如，扩散（预测）前后氩原子的守恒，可通过确定占据铝晶格位点的氩原子数量 $\rho'_{\mathrm{Ar_{Al}}} = n_{\mathrm{tot}}/n'_{\mathrm{tot}}(\rho_{\mathrm{Ar_i}}+\rho_{\mathrm{Ar_{Al}}}+\rho_{\mathrm{Ar_N}}) - \rho'_{\mathrm{Ar_i}} - \rho'_{\mathrm{Ar_N}}$ 并使用公式 (1) 来实现。然而，某些预测可能要求 $n'_{\mathrm{Ar_{Al}}}$ 为负值（即 $n_{\mathrm{Ar_i}} + n_{\mathrm{Ar_{Al}}} + n_{\mathrm{Ar_N}} < n'_{\mathrm{Ar_i}} + n'_{\mathrm{Ar_N}}$），尽管占据铝晶格位点的氩原子数量不可能为负。强制执行上一段所述的约束或许能解决这一问题，但若再次按顺序评估，可能会导致扩散过程中粒子不守恒。因此，需要更谨慎地点缺陷平衡方法，以下将对此加以介绍。

所有氩点缺陷数量预测（即 $\rho'_{\mathrm{Ar_i}} + \rho'_{\mathrm{Ar_{Al}}} + \rho'_{\mathrm{Ar_N}}$）均乘以修正因子 f_{Ar}：

$$f_{\mathrm{Ar}} = \frac{n_{\mathrm{tot}}}{n'_{\mathrm{tot}}} \frac{\rho_{\mathrm{Ar_i}} + \rho_{\mathrm{Ar_{Al}}} + \rho_{\mathrm{Ar_N}}}{\rho'_{\mathrm{Ar_i}} + \rho'_{\mathrm{Ar_{Al}}} + \rho'_{\mathrm{Ar_N}} + 10^{-7}} \tag{6}$$

扩散前后预测的铝原子和氮原子的偏差分别由 Δn_{Al} 和 Δn_{N} 定义：

$$\begin{aligned}\Delta n_{\mathrm{Al}} =& n_{\mathrm{tot}}(\rho_{\mathrm{Al_i}} + \rho_{\mathrm{Al_N}} - \rho_{\mathrm{v_{Al}}} - \rho_{\mathrm{N_{Al}}} - \rho_{\mathrm{(N\text{-}N)_{Al}}} - \rho_{\mathrm{Ar_{Al}}}) \\ & - n'_{\mathrm{tot}}(\rho'_{\mathrm{Al_i}} + \rho'_{\mathrm{Al_N}} - \rho'_{\mathrm{v_{Al}}} - \rho'_{\mathrm{N_{Al}}} - \rho'_{\mathrm{(N\text{-}N)_{Al}}} - f_{\mathrm{Ar}}\rho'_{\mathrm{Ar_{Al}}})\end{aligned} \tag{7a}$$

$$\begin{aligned}\Delta n_{\mathrm{N}} =& n_{\mathrm{tot}}(\rho_{\mathrm{N_i}} + 2\rho_{\mathrm{(N\text{-}N)_i}} + \rho_{\mathrm{(N\text{-}N)_N}} - \rho_{\mathrm{v_N}} + \rho_{\mathrm{N_{Al}}} + 2\rho_{\mathrm{(N\text{-}N)_{Al}}} - \rho_{\mathrm{Al_N}} - \rho_{\mathrm{Ar_N}}) \\ & - n'_{\mathrm{tot}}(\rho'_{\mathrm{N_i}} + 2\rho'_{\mathrm{(N\text{-}N)_i}} + \rho'_{\mathrm{(N\text{-}N)_N}} - \rho'_{\mathrm{v_N}} + \rho'_{\mathrm{N_{Al}}} + 2\rho'_{\mathrm{(N\text{-}N)_{Al}}} - \rho'_{\mathrm{Al_N}} - f_{\mathrm{Ar}}\rho'_{\mathrm{Ar_N}})\end{aligned} \tag{7b}$$

以 n_{tot} 为点缺陷数量的函数，遵循公式 (1)。所有缺陷数量

b不过，反位点会通过这些偏差进行补偿，以实现粒子平衡 :

$$\rho'_{\mathrm{v_{Al}}} \to \frac{n'_{\mathrm{tot}}\rho'_{\mathrm{v_{Al}}} - \Delta n_{\mathrm{Al}}}{n_{\mathrm{tot}}} \text{ 如果 } \Delta n_{\mathrm{Al}} < 0 \rho'_{\mathrm{Al_i}} \to \frac{n'_{\mathrm{tot}}\rho'_{\mathrm{Al_i}} + \Delta n_{\mathrm{Al}}}{n_{\mathrm{tot}}} \tag{8a}$$

$$\text{如果 } \Delta n_{\mathrm{Al}} > 0 \rho'_{\mathrm{v_N}} \to \frac{n'_{\mathrm{tot}}\rho'_{\mathrm{v_N}} - \Delta n_{\mathrm{N}}}{n_{\mathrm{tot}}} \text{ 如果 } \Delta n_{\mathrm{N}} < 0 \tag{8b}$$

$$\rho'_{\mathrm{(N\text{-}N)_N}} \to \frac{n'_{\mathrm{tot}}\rho'_{\mathrm{(N\text{-}N)_N}} + \frac{\rho'_{\mathrm{N_i}}}{\rho'_{\mathrm{N_i}}+\rho'_{\mathrm{(N\text{-}N)_N}}} \Delta n_{\mathrm{N}}}{n_{\mathrm{tot}}} \text{ 如果 } \Delta n_{\mathrm{N}} > 0 \tag{8c}$$

$$\rho'_{\mathrm{N_i}} \to \frac{n'_{\mathrm{tot}}\rho'_{\mathrm{N_i}} + \frac{\rho'_{\mathrm{N_i}}}{\rho'_{\mathrm{N_i}}+\rho'_{\mathrm{(N\text{-}N)_N}}} \Delta n_{\mathrm{N}}}{n_{\mathrm{tot}}} \text{ 如果 } \Delta n_{\mathrm{N}} > 0 \tag{8d}$$

$$\tag{8e}$$

所有此前未发生变化的点缺陷数量，均按商值 $n'_{\mathrm{tot}}/n_{\mathrm{tot}}$ 进行缩放，以反映原子总数的变化，从而确保预测结果一致。

c. 物理分离人工神经网络 每个条件变分自编码器（即 PSI-CVAE、Diffusion-CVAE）都描述一个物理过程，并将其与其他过程分离。将（训练后的）解码器组合起来，构成一个 PSNN；通过将表面状态 S_{s} 从一个代理模型传递到另一个代理模型，该网络可实现随时间演化。PSNN 的信息流如图7所示。它与物理模拟中固有的信息流（图3）十分相似。PSI解码器的输入是从等离子体粒子通量中采样的单个粒子，其特征由粒子的动能 E_{kin}、物种 s和表面状态 S_{s}描述。它会预测更新后的表面状态 S'_{s} 以及各物种的发射通量 $\Gamma_s^{\mathrm{out}\prime}$。前者与温度 T 一起输入扩散解码器，后者则预测新的表面状态 S''_{s}。该状态随后传递给 PSI 解码器，从而在 PSNN 中建立循环连接。需要注意的是，物理模拟与分离的 PSI解码器和扩散解码器结构之间的直接对应关系，有助于高效地探索参数空间，如第三节A所述。然而，依赖单个 PSI 时，训练后的预测可能适用于差异很大的等离子体条件，并不局限于构建数据集时所采用的特定通量比或离子能量分布。

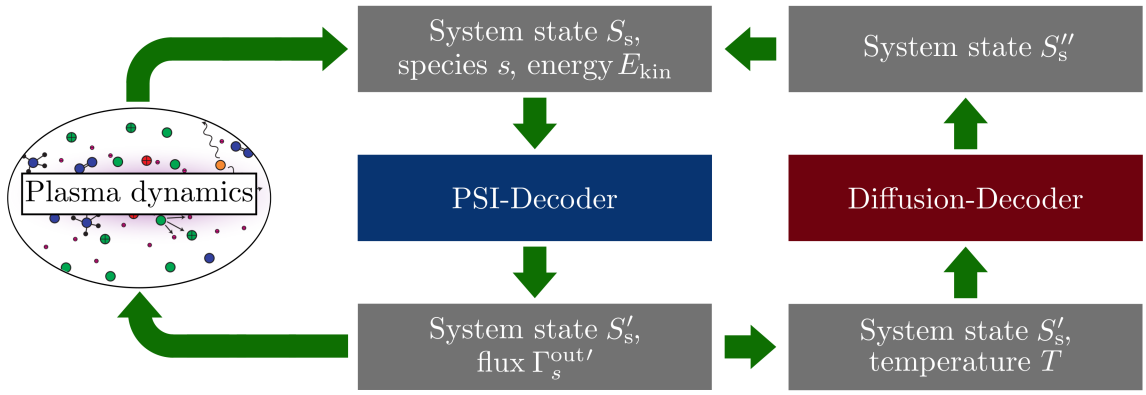

图7. PSNN结构及信息流示意图。等离子体动力学可以通过手动设定、模拟或实验来施加。

D. 超参数研究

每个条件变分自编码器（即 PSI-CVAE、Diffusion-CVAE）的超参数均通过应用各自独立的各向异性自适应进化策略并进行中间重组（μ/μ_I, λ）-σSA-ES 进行优化。 μ、λ和 σ 分别表示父代数量、种群规模和步长（变异强度）。关于该方法的一般性描述和针对具体主题的相关说明，见 [21, 60–62]。本研究所考虑的超参数及其初始化范围列于表 I。

进化策略初始化为 ($7/7_I$,70)-σSA-ES。种群规模 λ在63代过程中每代减少一个，之后保持不变。父代数量由 $\mu = \lambda/7$ 确定（强制取整数值）[63]。进化策略运行200代，因此最终为(1,7)-σSA-ES。

E. 生产运行：参考实验

首先，概述用于生产和验证的实验场景。其次，计算机器学习模拟所需的氮化铝表面通量，并据此引入估算的工艺时间。

a. 参考实验 Ries 等人使用大面积多频电容耦合等离子体（MFCCP），以氩和氮$_2$ 为工作气体溅射沉积氮化铝（Ar/N$_2$进气比例为 8/1） [64]。他们利用电不对称效应来

表 I. PSI-CVAE 和 Diffusion-CVAE 的待优化超参数、初始化范围及最终值。

HP	初始化范围	PSI-CVAE	Diffusion-CVAE
r_{c}	[0.0,1.0]	0.50	0.44
α	[10^{-5},1.0]	$0.47 \cdot 10^{-2}$	0.17
$r_{\text{l-0}}$	[10^{-3},10^{-2}]	$9.14 \cdot 10^{-3}$	$1.08 \cdot 10^{-3}$
$n_{\text{l-patience}}$	[4,7]	9	7
λ_{L2}	[0,10^{-4}]	$2.23 \cdot 10^{-7}$	$1.22 \cdot 10^{-7}$
n_{hl}	[1,5]	1	3
n_{npl}	[8,128]	107	155
n_{ls}	[1,6]	1	5
β	[10^{-1},10]	56.69	0.14
n_{SA}	[1,10^2]	10^2	10^2
$n_{\mathrm{batch,理想}}$	[16,64]	37	53

将离子通量与离子能量解耦。前者基本保持恒定，后者则通过电压波形调制（即调整两个激励频率之间的相对相移）来控制。研究考察了四种平均离子能量E_{ion}，分别为 47 eV、53 eV、57 eV 和 81 eV。发现主要的氮化铝表面取向随平均离子能量而变化：E_{ion} =47eV 和 E_{ion} =53 eV 时为 AlN(002)，而 E_{ion} =57 eV 和 E_{ion} =81 eV 时为 AlN(100) [64]。

在本研究中，与 PSI 最相关的物种（即 Al、N^+、N_2^+、Ar^+）是根据实验测得的入射到基底上的通量进行抽样的（参见下一小节）。离子和铝中性粒子的动能 E_{kin} 分别根据测得的离子能量分布函数（IEDFs）（见 [64] 中的图11）和蒙特卡罗输运模拟（铝在纯氩中的输运，但假定其不变）进行抽样 [64–66]。为避免从噪声中抽样，对 IEDFs 施加了阈值。采用蒙特卡罗接受-拒绝采样（拒绝采样）来确定各个粒子的能量。

将研究 PSNN 预测的两种单晶系统（即 AlN(002)、AlN(100)）的演变和响应，考察其随上述四种离子能量

分布函数（离子能量分布函数）的变化。每种情况均以理想、无缺陷的氮化铝为起点进行模拟，直至达到稳态，即约 45 分钟（实验工艺时间）。为准确评估统计结果，所有情况均重新运行 100 次。最终结果取最后一分钟的平均值。根据预测的晶格常数，利用 [37] 提出并验证的理想、无缺陷氮化铝参考系统的三阶 Birch-Murnaghan 状态方程，确定本征应力。将 PSNN 预测的最终应力和成分与实验测得的参考值 [64]进行比较。实验中观测到的异常铁和氧浓度以铝和氮浓度替代，从而为模拟定义可比较的参考值。

b. 通量与工艺时间估算 t_p 个粒子撞击所需的工艺时间，可通过对所有撞击率的倒数求和来估算，$t_\mathrm{p} = \sum_{i=1}^{n_\mathrm{pi}} 1/$（$\Gamma_i A'_\mathrm{RMD}$）。$\Gamma_i^\mathrm{in}$和 A'_RMD 分别表示实验中入射到氮化铝表面的粒子通量，以及 RMD 预测的氮化铝表面积。A'_RMD 根据预测的晶格常数 a' 和指定的表面取向计算得出。

假定在给定几何构型下，入射到靶材和基底上的离子通量近似相等，并用 $\Gamma_\mathrm{ion}^\mathrm{in} = h n_\mathrm{e} v_\mathrm{B}$近似表示；其中假定边缘—中心比为$h = 0.61$，电子密度为 $n_\mathrm{e} = 5 \cdot 10^{15}\,\mathrm{m}^{-3}$，玻姆速度为 $v_\mathrm{B} = 3.21 \cdot 10^3\,\mathrm{m/s}$（针对氩$^+$离子，且电子温度为 $k_\mathrm{B}T_\mathrm{e} = 3$ eV） [7, 67]。

到达基底的铝中性粒子通量根据 $\Gamma_\mathrm{Al}^\mathrm{in} = c_\mathrm{t} Y_{\mathrm{Ar}^+}$(352 eV) $\Gamma_\mathrm{ion}^\mathrm{in}$ =$3.47{\cdot}10^{18}\,\mathrm{m}^{-2}\mathrm{s}^{-1}$ 计算，其中采用通过蒙特卡罗输运模拟（纯氩中的铝，但假定其保持不变）获得的碰撞输运系数 $c_\mathrm{t} = 0.6$，以及 Ar 溅射产额 Y_{Ar^+}(352 eV) $= 0.579$ （洁净铝靶） [64, 65]。靶材产生的铝通量通过将离子通量 $\Gamma_\mathrm{ion}^\mathrm{in}$ 乘以 Ar^+ 溅射产额 Y_{Ar^+}获得。

所考虑的离子通量（即 Γ^in N^+、 Γ^in N_2^+ 、 Γ^in Ar^+）是基于以下假设确定的：入射到基底上的离子通量成分 $\Gamma_\mathrm{ion}^\mathrm{in}$ 与体积组成相似。总气体密度由 $n_\mathrm{g,tot} = p/(k_\mathrm{B}T_\mathrm{g})$ 给出，其中玻尔兹曼常数为 k_b，气体温度为 $T_\mathrm{g} = 650\ K$ [67]。各物种气体密度按相对比例计算，并假设 $n_{\mathrm{g,N}}/n_{\mathrm{g,N_2}} = 1/9$ 和 $(n_{\mathrm{g,N}} + n_{\mathrm{g,N_2}})\,/n_{\mathrm{g,Ar}} = 1/8$ [64]。因此，工作气体约由 1.16 % 的 N、10.47 % 的 N_2, 和 88.37 % 的 Ar 组成。入射到基底上的离子（玻姆）通量相应地拆分为： $\Gamma_{\mathrm{Al}^+} = 3.11{\cdot}10^{14}\,\mathrm{m}^{-2}\mathrm{s}^{-1}$、 $\Gamma_{\mathrm{N}^+} = 1.14{\cdot}10^{17}\,\mathrm{m}^{-2}\mathrm{s}^{-1}$、$\Gamma_{\mathrm{N}_2^+} = 1.03 \cdot 10^{18}$ $\mathrm{m}^{-2}\mathrm{s}^{-1}$和 $\Gamma_{\mathrm{Ar}^+} = 8.65 \cdot 10^{18}\,\mathrm{m}^{-2}\mathrm{s}^{-1}$。由于 Al^+ 极少出现，因此忽略其贡献。

IV. 结果

A. 超参数研究

按照上述结合蒙特卡洛交叉验证（MCCV）的进化策略，确定了一组最优超参数，并列于表 I。显然，对 Diffusion-CVAE（$\alpha = 0.17$）采用受约束的 Mixup 数据增强是有益的。这意味着，对于扩散过程，线性叠加假设在一定程度上成立；但对于 PSI（$\alpha = 0.47 \cdot 10^{-2}$）则不成立。核正则化对于这两种机器学习模型（$\lambda_{\mathrm{L2}} \approx 10^{-7}$）均有负面影响。Diffusion-CVAE 的网络结构（即 3 个隐藏层，每层 155 个节点）比 PSI-CVAE 的网络结构（即 1 个隐藏层，每层 107 个节点）能够容纳更高的复杂度。另一个值得注意之处是，两种机器学习模型的最优模拟退火训练轮次均为 100，这是进化策略为该超参数设定的上限。因此，我们认为模拟退火步骤对训练流程大有裨益。

除了平均绝对误差（MAE）之外，还可以通过决定系数R^2评估 PSI-CVAE 和 Diffusion-CVAE 的性能；两者最终采用的超参数（HPs）列于表 I。对于 PSI-CVAE，训练集、验证集和测试集上的决定系数分别为 0.87、0.86 和 0.87；对于 Diffusion-CVAE，则分别为 0.94、0.93 和 0.93。这些数值 $\gtrsim 0.9$ 表明模型方法准确（$R^2 = 1$ 表示数据中的方差得到完全解释）。三个子集之间的差异微乎其微，说明机器学习模型成功地从训练数据中学会了泛化。下文将通过比较各系统属性（例如质量密度）的未归一化平均绝对误差（MAE），对此发现进行更深入的分析。不过需要注意的是，参考数据并不代表任何形式的真实值，而是包含统计波动（例如，同一个离子撞击表面的不同位置，很可能会造成不同类型的缺陷结构），这从本质上限制了 MAE。

图 8 展示了所有所考察缺陷数量的平均绝对误差。结果发现，PSI-CVAE 和 Diffusion-CVAE 均能准确预测缺陷结构，误差约为或低于 0.1%。PSI-CVAE 在训练集、验证集和测试集上的预测误差几乎无法区分，体现出出色的泛化能力。结果还发现，Diffusion-CVAE 在训练集上的表现最佳，仅显现出轻微的

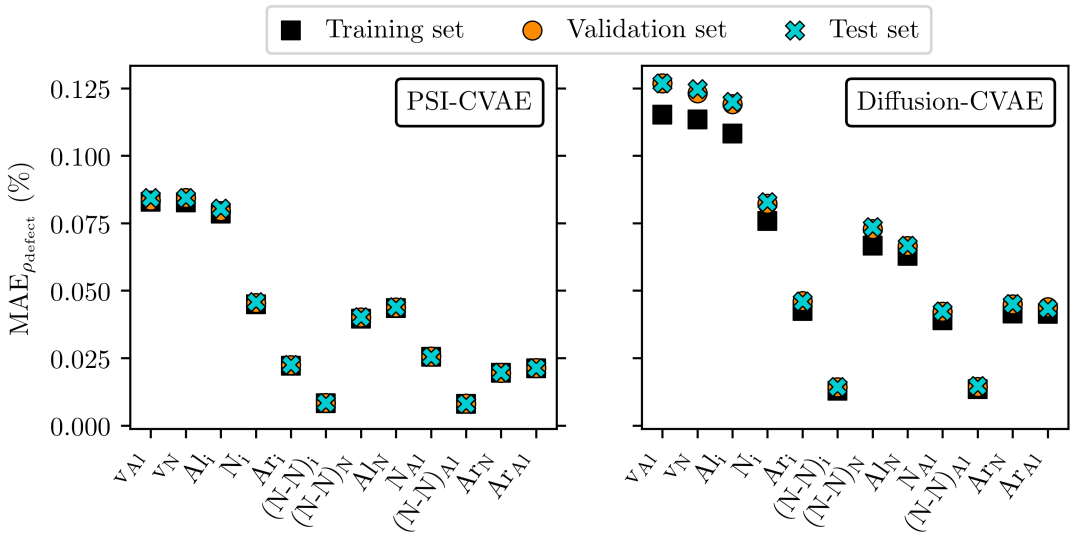

图 8. 点缺陷数量和数据集上未归一化预测的平均绝对误差。点缺陷类型列于 x 轴上。

表 II. PSI-PSNN 在所有数据集上的未归一化预测的平均绝对误差。

性质	训练集	验证集	测试集
a (Å)	0.002	0.002	0.002
ΔE_{f} (eV)	0.005	0.005	0.005
B (GPa)	3.029	3.067	3.055
B′ (GPa)	0.913	0.922	0.931
$\Gamma^{\mathrm{out}}_{\mathrm{Al}}/\Gamma^{\mathrm{in}}_{s}$ (.)	0.015	0.016	0.015
$\Gamma^{\mathrm{out}}_{\mathrm{N}}/\Gamma^{\mathrm{in}}_{s}$ (.)	0.089	0.089	0.087
$\Gamma^{\mathrm{out}}_{\mathrm{Ar}}/\Gamma^{\mathrm{in}}_{s}$ (.)	0.218	0.219	0.219
$\Gamma^{\mathrm{out}}_{\mathrm{N_2}}/\Gamma^{\mathrm{in}}_{s}$ (.)	0.139	0.139	0.140

过拟合迹象。不过，验证集与测试集之间的差异可以忽略不计。

表 II 和表 III 分别展示了 PSI-CVAE 和 Diffusion-CVAE 对晶格常数 a、形成能 ΔE_{f}、体模量 B 及其导数 B′ 的高精度预测结果。训练集、验证集和测试集上的表现几乎可以互换，这再次表明模型成功学会了

表 I. Diffusion-PSNN 在所有数据集上的未归一化预测的平均绝对误差。

性质	训练集	验证集	测试集
a (Å)	0.001	0.001	0.001
ΔE_{f} (eV)	0.007	0.008	0.008
B (GPa)	2.905	3.094	3.124
B′ (GPa)	0.918	0.963	0.973

对所提供的数据进行泛化。然而，与所考虑动能范围（即 E_{kin} 至 $[0$ eV，300 eV$]$）内典型的溅射产额和反射比相比，表 II 所列的每单位入射通量对应的逸出 Al、N、Ar 和 N_2 通量的平均绝对误差（MAE）相对较大。我们认为，这些较大的误差并不意味着模型性能不佳，而是 PSI 数据组装方式所导致的结果。一个 PSI 数据样本包含单个 PSI 的信息，而该 PSI 可能导致零个、一个甚至两个粒子逸出。机器学习模型会将这种情况视为噪声，因此会学着预测给定表面状态下每个 PSI 逸出粒子数的平均值。这必然会导致相对较大的 MAE，但归根结底，这正是 PSI-CVAE 要学习的内容。

B. 生产运行

如前所述，生产运行与四种放电条件下的氮化铝薄膜沉积参考实验相似。下文将考察两种表面取向（100）和（002）下的情况。首先讨论发射粒子通量：入射粒子发生反射或表面原子受到溅射，都会使粒子从表面发射出来。可以观察到，大多数通量在几秒后达到稳态。只有三种情况在分钟尺度上出现了轻微变化（即 E_{ion} =47 eV：（002）、E_{ion} =53 eV：（002）、 E_{ion} =57 eV：（100）），这是由于铝黏附概率变化了约 0.5%。这种瞬态变化是系统状态缓慢演变所带来的副作用，详情将在后文介绍。所有铝黏附系数均介于 98% 至 99% 之间。

图中展示了最后一分钟（第45分钟）的平均单位入射粒子通量发射量

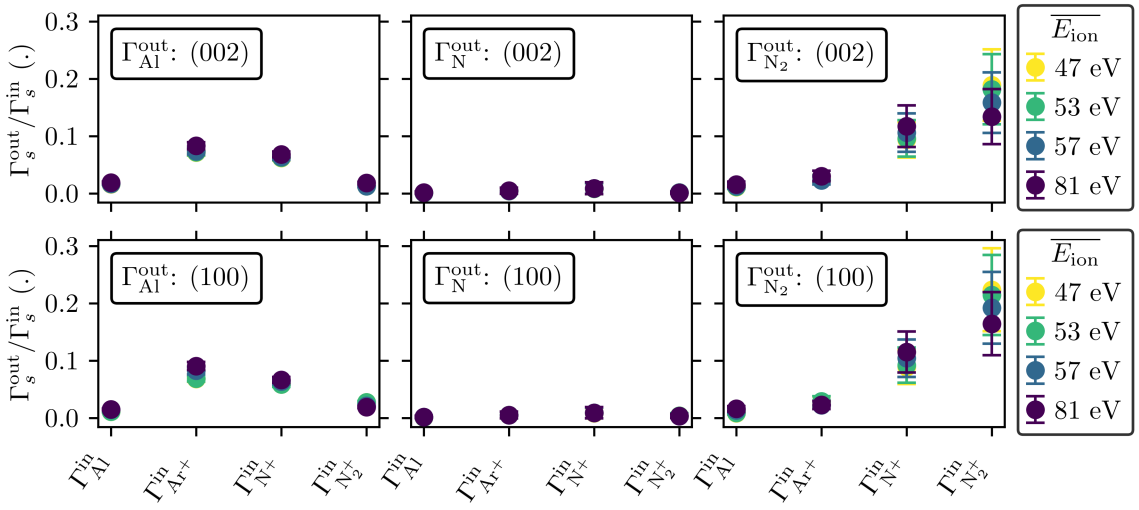

图9. 展示了所有考虑的离子能量分布函数及表面取向下，每单位入射通量对应的所有成膜物种的发射量。圆点和误差棒分别表示平均值和均方根偏差。

图9展示了所有成膜通量组合的结果（即未计入氩的发射）。两种表面取向之间看不出显著差异，这归因于所考察的离子能量范围为30至100 eV。预计更高的离子能量会呈现出依赖于表面取向的溅射产额。

N^+ 和Ar^+ 离子的轰击导致铝原子的去除量几乎相同，而Ar^+ 离子产生的铝溅射产额略高（即，$\Gamma_{Al}^{out}/\Gamma^{in}{}_{氮+} < \Gamma_{Al}^{out}/\Gamma^{in}{}_{氩+}$）。这是因为轰击的$N^+$ 离子与表面N原子发生弹性碰撞，使动量比铝原子更快、更均匀地分配给这些原子。次表层区域中氮原子的位移会导致表面附近暂时形成$(N\text{-}N)_N$，它们最终以N_2的形式离开。离子能量越高，产生的碰撞级联越深，且动量越大。与平均离子能量之间的正比关系表明，对于任一种离子能量分布函数，直接在表面暂时形成$(N\text{-}N)_N$（并以N_2形式脱附）的N^+ 离子比例都不显著。

轰击的$氮_2^+$离子在撞击表面时会分裂，因此，与最初共享的动量相比，其单个动量会减小。这使表面层中的动量分布更加均匀，从而降低了发生溅射的可能性

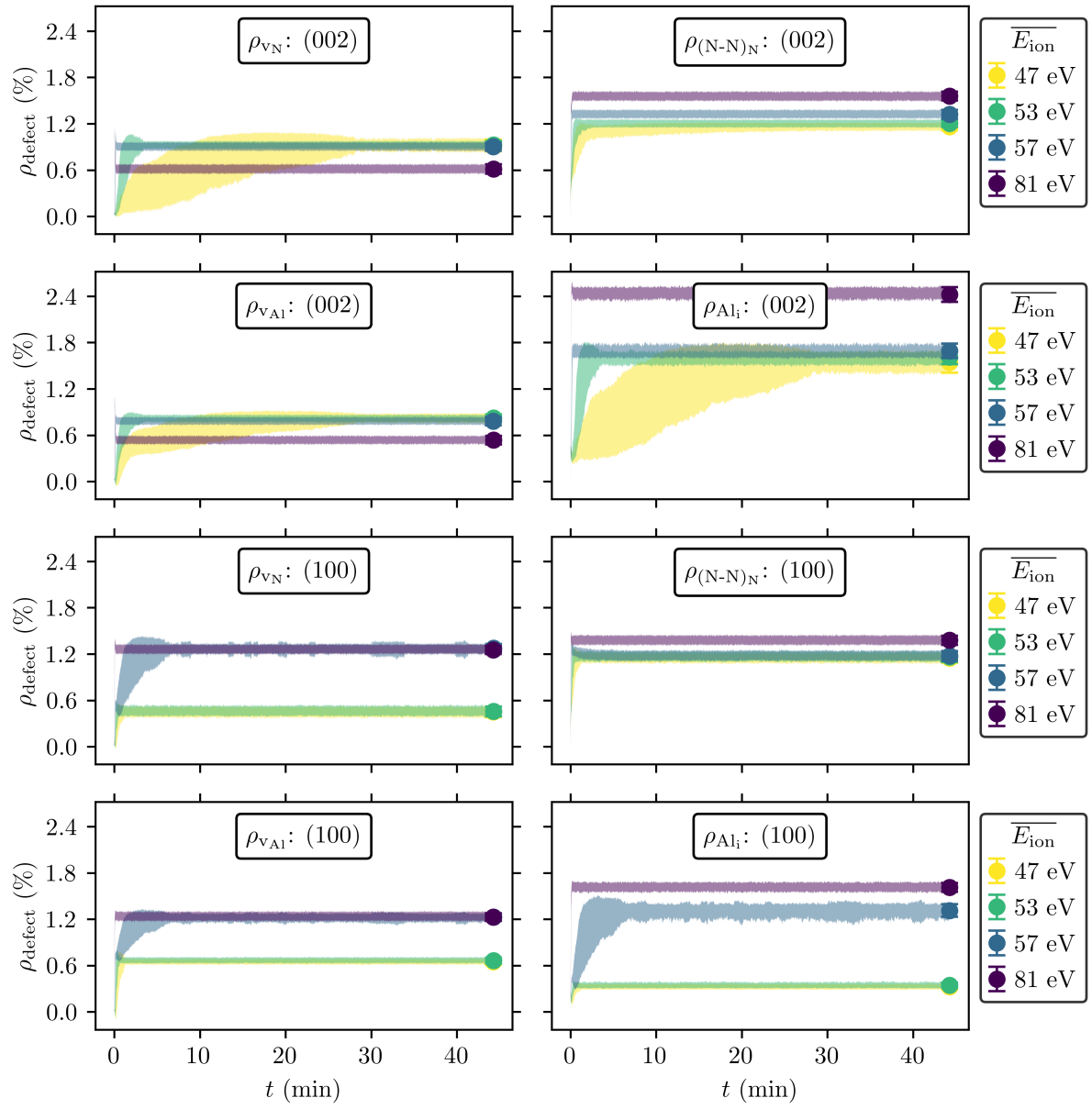

图10. 所有考虑的离子能量分布函数和表面取向中，最相关点缺陷数量的瞬态演化。误差棒和透明区域的高度表示均值加减均方根偏差。

所考虑离子能量范围内的铝原子。此外，离子能量较低时，受影响的次表层区域较浅，这使入射氮$_2^+$ 离子能够在表面直接形成暂时的（N-N）$_N$ ，随后以 N_2的形式离开。这反映在随着离子能量增加，通量比$\Gamma^{out}_{N_2}/\Gamma^{in}$ $_{氮_2^+}$ 降低。

该瞬　　最相关点缺陷数量随时间的演变如图　　g-

10所示，涵盖所有考察的离子能量分布函数和表面取向。使用E_{ion} =47 eV的离子能量在AlN(002)上沉积，达到稳态最多需要30分钟。持续的离子轰击会在次表层区域引发碰撞级联；级联消退后，可能会留下空位和间隙原子。溅射事件或N_2 的脱附会移除表面原子，从而促进空位积累。Al和N空位数量大致相等。Al间隙原子浓度高于氮分裂间隙原子数量，且两者均高于相应的空位数量。这是由于表面原子的前向溅射（锤击效应），以及高能粒子（即N^+、N_2, 少量Al）的掺入；这些粒子最终要么以间隙原子形式存在，要么与空位复合。平均离子能量略高的离子能量分布函数（即53 eV、57 eV）趋于形成相似的点缺陷结构，其中氮分裂间隙原子和Al间隙原子数量略有增加，但达到平衡所需时间显著缩短。使用 E_{ion} =53 eV和 E_{ion} =57 eV时，分别只需几分钟和几秒。因此，假定对于 E_{ion} =47 eV，少量被采样到的相对高动能离子会将系统推向最终状态。提高平均离子能量，自然会增加遇到此类离子的可能性。改变离子能量分布函数形状（即从窄单峰 $\rightarrow$ 窄双峰 $\rightarrow$ 宽单峰）会增强这一效应。平均离子能量进一步显著提高至81 eV，会使系统演变至另一种状态，其中Al和N空位较少（$\rho_{\mathrm{v_{Al}}} \approx \rho_{\mathrm{v_N}}$），间隙原子较多（$\rho_{\mathrm{Al_i}} > \rho_{\mathrm{(N\text{-}N)_N}}$）。空位数量的演变在几秒后不再出现中间极大值。随后，如前所述，空位因复合而减少，并在10秒后达到稳态。图10展示了点缺陷结构长达45分钟的演变（长达100秒的结果见附录）。

在 E_{ion} =47 eV 和E_{ion} =53 eV 条件下，向 AlN(100) 上沉积会导致相似的系统动力学。Al 和 N 空位数量也大致相等。不过，观察到更多的 N 分裂和更少的铝间隙原子。数量稀少、以高达 30 eV 的相对较高动能撞击表面的铝原子，在穿透 AlN(100) 表面时动量不足，无法持续地并入其中，也就是说，它们最终停留在表面顶部。将平均离子能量提高至 57 eV 后，系统演化至稳态最多需要 10 分钟，而且所得稳态与先前的状态显著不同。分钟时间尺度上的平衡过程再次归因于一小部分具有足够动能的入射离子所起的作用；

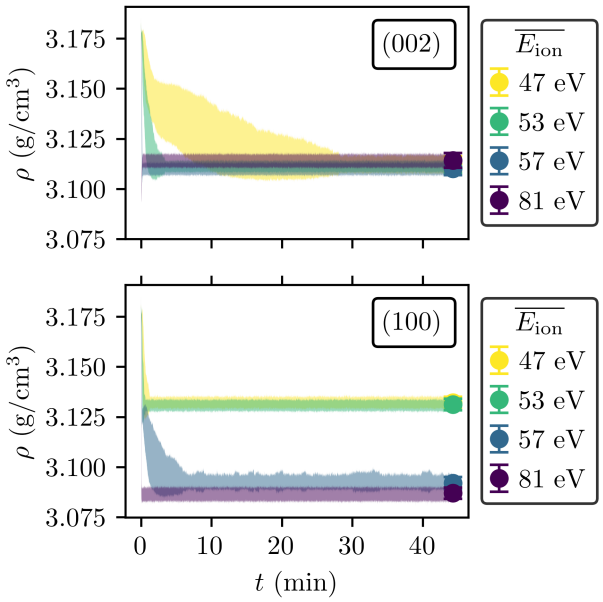

图11. 所有考察的离子能量分布函数及表面取向下质量密度的瞬态演化。误差棒和透明区域的高度表示均值加减均方根偏差。

这些离子推动系统达到最终状态（参见 E_{ion} =53eV：$(00\overline{2})$）。$(\text{N-N})_{\text{N}}$数量保持不变。Al 和 N 空位数量翻了一倍。因此，表面附近的铝空位与入射铝原子复合的概率也随之增加。最终的 Al 间隙原子浓度因此增加到两倍以上。点缺陷结构主要由铝和氮弗伦克尔对（空位加间隙原子）构成。系统状态之所以演变至这一新状态，是由离子能量分布函数形状的变化所致。 E_{ion} =53eV 对应的离子能量分布函数（窄双峰离子能量分布函数）和 E_{ion} =57 eV 对应的离子能量分布函数（宽单峰离子能量分布函数）分别最高达到 60 eV 和 75 eV。平均离子能量最高为 83 eV 的情形会趋近于相似的系统状态，间隙原子数量略有增加，但只需几秒钟。

质量密度的演变如图11所示。各个案例的平衡时间表现出一致的规律。然而，值得注意的是，所有案例最终都趋于表面取向（002）下相近的质量密度。间隙原子的积累通过相应的体积膨胀得到平衡。对于 AlN(100)，前一段讨论了两种最终的点缺陷结构。这两种系统状态分别对应于两个明显不同的质量密度。较高的离子能量

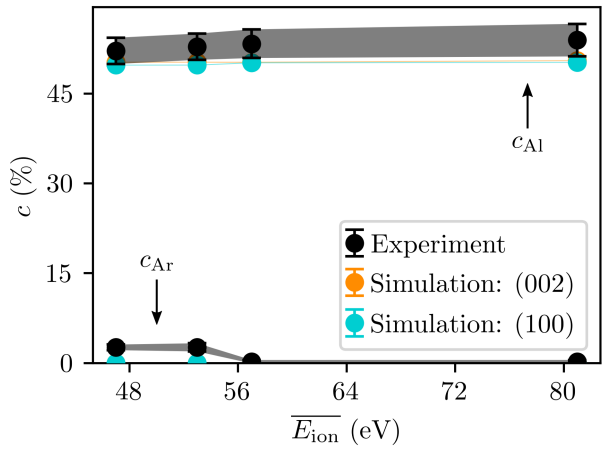

图 12。将所有所考虑的离子能量分布函数以及表面取向在最后一分钟内的平均值，与实验参考值 [64] 进行比较，得到最终成分（即铝和氩浓度 c_{Al} 和 c_{Ar}，分别为）。圆圈和误差棒分别表示平均值和均方根偏差。

会导致大量铝和氮弗伦克尔对的形成。它们不会改变原子系统的质量，但会引起应力，并相应地产生体积松弛。因此，可以观察到较小的质量密度。

最后一分钟内平均的沉积 AlN(002) 和 AlN(100) 薄膜成分如图 12 所示，并与实验参考值 [64] 进行了比较。在预测化学计量比 AlN 薄膜时，即使 $E_{\mathrm{ion}} = 47$ eV 和 $E_{\mathrm{ion}} = 53$ eV 下的氩浓度 2.5 ± 0.1 % 未能得到再现，仍可实现与实验结果的良好一致。

PSNN预测的应力与实验测得的应力如图13 (a)所示。在两种情况下，随着平均离子能量升高，应力均呈现越来越大的压应力，这是因为离子轰击增强，诱发了点缺陷形成。空位和间隙原子分别导致拉应力和压应力。在机器学习模拟中，所有点缺陷的相互作用共同决定了薄膜应力。然而，由于铝间隙原子尺寸较大且形成能较高，其对应力形成的贡献占主导地位 [68]。如图13所示，应力与取负值后的Al间隙原子数量（乘以-1）对平均离子能量呈现出相似的依赖关系，这也说明了这一发现 E_{ion}。实验发现，当平均离子能量从47–53 eV升至57–81 eV时，主要表面取向由(002)变为(100) [64]。

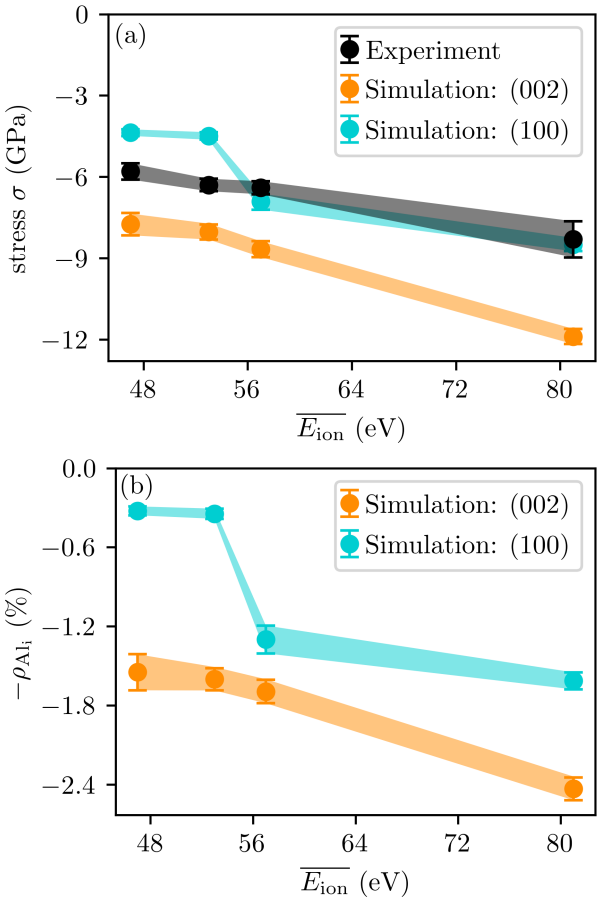

图 13. 将所有考虑的 IEDF 及表面取向在最后一分钟内的平均值与实验参考值 [64]进行比较：(a) 最终应力；(b) 取负后的 Al间隙原子浓度。圆圈和误差棒分别表示平均值和均方根偏差。

将其与(002)表面取向下的机器学习预测进行比较，可以推断，平均离子能量较低的两个离子能量分布函数（即47 eV、53 eV）对应的预测应力被高估了。然而，与(100)表面取向下的预测相比，平均离子能量较高的两个离子能量分布函数（即57 eV、81 eV）的结果与实验高度吻合。实验中观察到的主要表面取向变化（即(002)→(100)），可能归因于压应力降低；预测值显示，(002)取向下的压应力最高可达-12 GPa，而(100)取向下则为-8 GPa。

V. 结论

本研究旨在进一步推动具有原子级保真度的数据驱动等离子体-表面相互作用模型的发展 [21]。研究考虑了反应过程（即氩/N_2 放电中氮化铝的溅射与沉积）。本文提出了一种数据生成方案，克服计算量过大的模拟（即混合 RMD/tfMC）所带来的负担，从而解决参数空间采样不足的问题。通过随机 PSI（即物种 s、动能 E_{kin}）和扩散过程（即温度 T），使随机采样的系统状态 S_{s} 不断演化，从而有效填充参数空间。通过沿表面法向 [37] 劈开并强化相应的体相结构，估算单次 PSI 对沉积薄膜的影响。本文采用 PSNN 将 PSI 与扩散过程分离，从而更高效地生成数据并施加物理约束（例如，体相扩散过程中的粒子守恒）。

训练好的 PSNN 模型应用于实验参考氮化铝溅射沉积，并考虑了相应的粒子通量以及平均离子能量为 47–81 eV 的离子能量分布函数 [64]。研究发现，氩$^+$ 离子从表面移除的铝多于氮原子。氮$^+$ 离子的情况则相反：它们引发碰撞级联，使动量更快地分散到表面N原子上。这促使最表面暂时形成 $(\mathrm{N\text{-}N})_{\mathrm{N}}$ ，最终以 N_2的形式离开表面。氮$_2^+$ 离子撞击表面时会分裂，因此引发两次碰撞级联，其各自的动量都低于最初共同携带的动量。被溅射出的铝原子数量随之减少，受影响的次表层区域也更浅。后者使 $(\mathrm{N\text{-}N})_{\mathrm{N}}$ 能够直接在表面形成，随后以 N_2的形式逸出。无论是哪种离子，原子氮都很少被溅射出去。较高的平均离子能量会降低氮$_2$ 因氮$_2^+$ 离子轰击而产生的逸出通量，但会增加持久、较深层 ($\mathrm{N\text{-}N})_{\mathrm{N}}$的形成。预测的薄膜沉积达到各自稳态所需时间从几秒到最多 30 分钟不等。当少量离子的动能来自离子能量分布函数的高能尾部，并将系统推向最终状态时，所需的平衡时间较长。研究发现，最终状态取决于所施加的表面取向。具体而言，预测 AlN(002) 中铝间隙原子的数量多于 AlN(100)。这种点缺陷类型主要决定了沉积氮化铝薄膜中的压应力演化。PSNN 预测的应力在定量和定性上均

与实验参考值吻合良好，尽管模型忽略了热应力或晶界处的点缺陷湮灭等因素。机器学习模型预测形成化学计量比 AlN，这也与实验观察结果一致。

总而言之，通过具有高物理保真度的混合 RMD/tfMC，预测了 2 亿次等离子体-表面相互作用和扩散过程。这使得 800 个氮化铝体系（100 × 四个 IEDFs × 两种表面取向）能够随时间演化，最长可达 45 分钟。使用单个图形处理器完成所有机器学习预测约需 34 小时。因此，在需要时，可以轻松扩展预测范围，以涵盖最长达数小时的总实验沉积时间。相比之下，使用混合 RMD/tfMC 模拟开展相同的案例研究是无法实现的，因为这将耗费约 800 万个 CPU 年以上。

致谢

本研究由德国研究联合会（DFG，德国研究基金会）资助——项目编号 138690629——TRR 87，以及——项目编号 434434223——SFB 1461。作者感谢来自波鸿鲁尔大学的 Dr.-Ing. S. Ries、来自亚琛工业大学的 S. Karimi Aghda（M. Sc.），以及来自基尔大学的 L. Vialetto（Ph.D.）所进行的富有成效的讨论。

数据可用性

支持本研究结论的数据可根据合理请求向通讯作者索取。

ORCID

T. Gergs: https://orcid.org/0000-0001-5041-2941T. Mussenbrock: https://orcid.org/0000-0001-6445-4990
J.Trieschmann: https://orcid.org/0000-0001-9136-8019

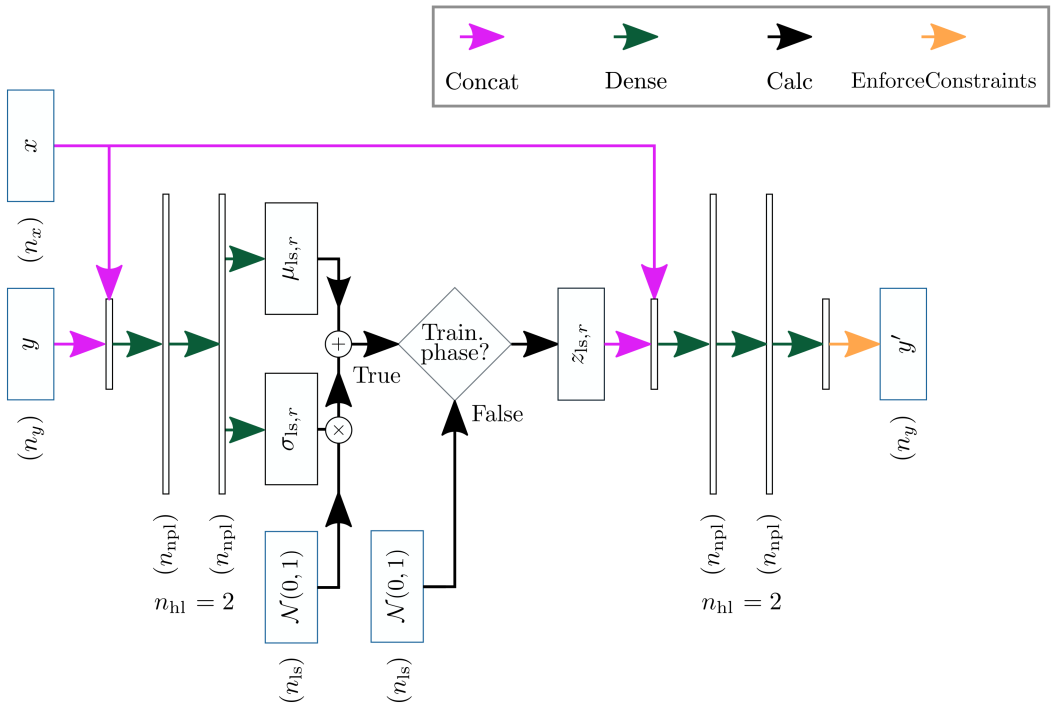

图14。CVAE网络结构示意图。数据形状标注在括号中。机器学习操作以彩色箭头表示。PSI-CVAE的输入和输出分别为 $x = \{E_{\mathrm{kin}},\ s,\ S_{\mathrm{s}}\}$ 和 $y = \{\Gamma_s^{\mathrm{out}},\ S_{\mathrm{s}}\}$。Diffusion-CVAE的输入和输出分别为 $x = \{T,\ S_{\mathrm{s}}\}$ 和 $y = \{S_{\mathrm{s}}\}$。

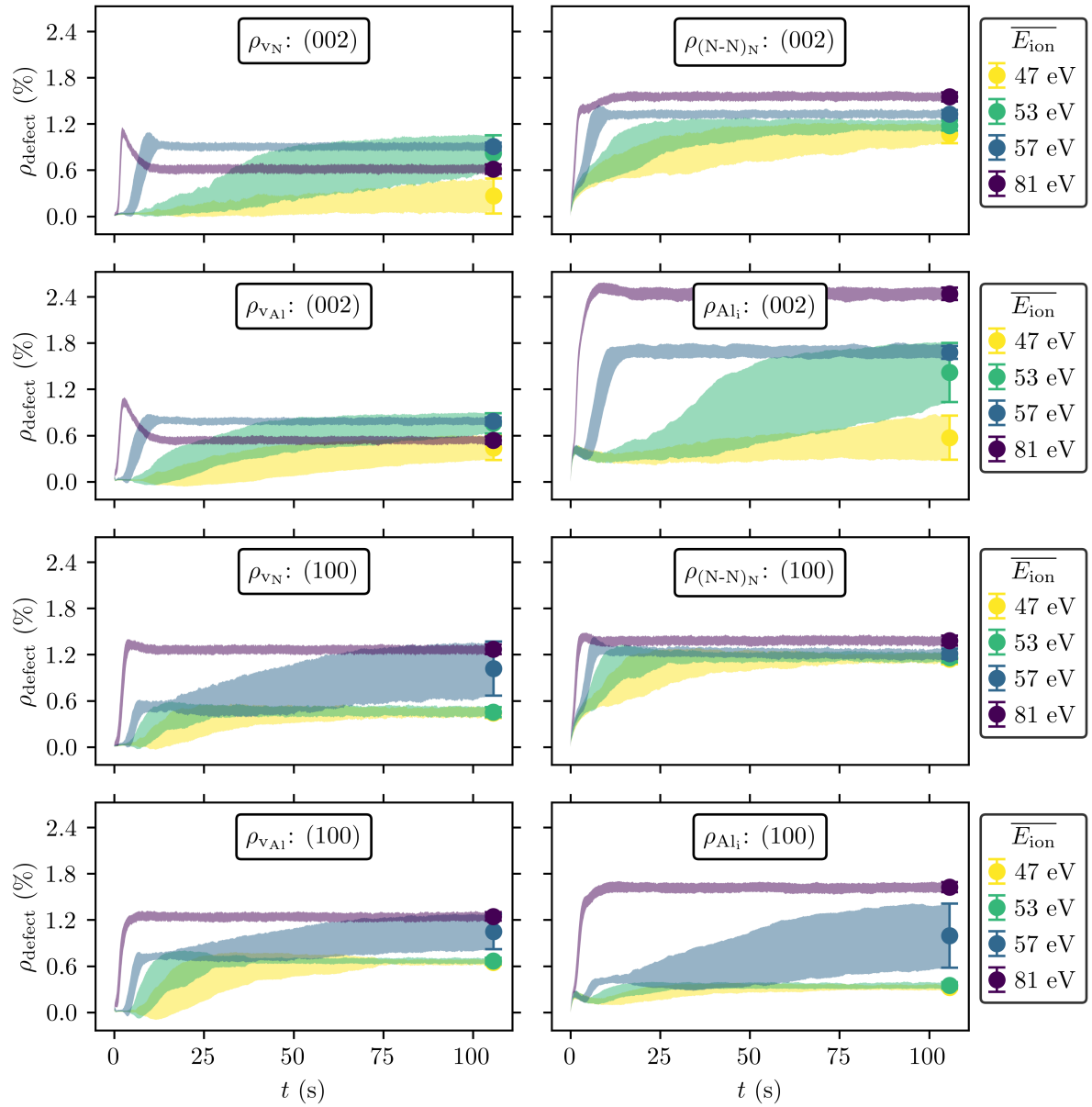

图 15. 对所有考虑的离子能量分布函数和表面取向，最相关点缺陷数量的瞬态演化。误差棒和透明区域的高度表示均值加减均方根偏差。

[1] P. J. Kelly 和 R. D. Arnell，《真空》**56**，159（2000年）。[2] J. T. Gudmundsson，《等离子体源科学与技术》**29**，113001（2020），出版商：IOP出版社。[3] A. Baptista、F. Silva、J. Porteiro、J. M´ıguez 和 G. Pinto，《涂层》**8**，402（2018年），第11期，出版商：多学科数字出版研究所。[4] S. M. Rossnagel、J. J. Cuomo 和 W. D. Westwood，《等离子体加工技术手册：基础、蚀刻、沉积与表面相互作用》（Noyes 出版社，帕克里奇，美国，1990年）。[5] F. Kr¨uger、T. Gergs 和 J. Trieschmann，《等离子体源科学与技术》**28**，035002（2019）。[6] G. A. Bird，《分子气体动力学与气体流动直接模拟》（牛津大学出版社，纽约，美国，1994年）。[7] M. A. Lieberman 和 A. J. Lichtenberg，《等离子体放电与材料加工原理》，第2版（威立出版公司，霍博肯，美国，2005年）。[8] W. D. J. Callister 和 D. G. Rethwisch，《材料科学与工程：导论》，第9版（威立出版公司，霍博肯，美国，2013年）。[9] S. Berg 和 T. Nyberg，《薄固体薄膜》**476**，215（2005年）。[10] D. Depla、S. Mahieu、R. Hull、R. M. Osgood、J. Parisi 和 H. Warlimont 编，《反应溅射沉积》，施普林格材料科学丛书，第109卷（施普林格，柏林，德国，2008年）。[11] M. W. Thompson，《哲学杂志》**18**，377（1968）。[12] P. Sigmund，《物理评论》**187**，768（1969）。[13] P. Sigmund，《物理评论》**184**，383（1969）。[14] R. Preuss、R. Arredondo 和 U. von Toussaint，《熵》**21**，1175（2019），第12期，出版商：多学科数字出版研究所。[15] Z. W. Ulissi、A. J. Medford、T. Bligaard 和 J. K. Nørskov，《自然·通讯》**8**，14621（2017年）。[16] A. Diaw、K. Barros、J. Haack、C. Junghans、B. Keenan、Y. W. Li、D. Livescu、N. Lubbers、M. McKerns、R. S. Pavel、D. Rosenberger、I. Sagert 和 T. C. Germann，《物理评论E》**102**，023310（2020）。[17] H. Kino、K. Ikuse、H.-C. Dam 和 S. Hamaguchi，《等离子体物理学》**28**，013504（2021年）。

[18] I. Adamovich、S. Agarwal、E. Ahedo、L. L. Alves、S. Baalrud、N. Babaeva、A. Bogaerts、A. Bourdon、P. J. Bruggeman、C. Canal、E. H. Choi、S. Coulombe、Z. Donk´o、D. B. Graves、S. Hamaguchi、D. Hegemann、M. Hori、H.-H. Kim、G. M. W. Kroesen、M. J. Kushner、A. Lar- icchiuta、X. Li、T. E. Magin、S. M. Thagard、V. Miller、A. B. Murphy、G. S. Oehrlein、N. Puac、ˇ R. M. Sankaran、S. Samukawa、M. Shiratani、M. Simek、N. Tarasenko、K. Terashima、E. T. Jr、J. Trieschmann、S. Tsikata、M. M. Turner、I. J. v. d. Walt、M. C. M. v. d. Sanden 和 T. v. Woedtke，《D辑物理学：应用物理学》**55**，373001（2022），出版商：IOP出版社。[19] R. Anirudh、R. Archibald、M. S. Asif、M. M. Becker、S. Benkadda、P.-T. Bremer、R. H. S. Bud´e、C. S. Chang、L. Chen、R. M. Churchill、J. Citrin、J. A. Gaffney、A. Gainaru、W. Gekelman、T. Gibbs、S. Ha maguchi、C. Hill、K. Humbird、S. Jalas、S. Kawaguchi、G.-H. Kim、M. Kirchen、S. Klasky、J. L. Kline、K. Krushelnick、B. Kustowski、G. Lapenta、W. Li、T. Ma、N. J. Mason、A. Mesbah、C. Michoski、T. Munson、I. Murakami、H. N. Najm、K. E. J. Olofsson、S. Park、J. L. Peterson、M. Probst、D. Pugmire、B. Sammuli、K. Sawlani、A. Scheinker、D. P. Schissel、R. J. Shalloo、J. Shinagawa、J. Seong、B. K. Spears、J. Tennyson、J. Thiagarajan、C. M. Tico¸s、J. Trieschmann、J. van Dijk、B. Van Essen、P. Ventzek、H. Wang、J. T. L. Wang、Z. Wang、K. Wende、X. Xu、H. Yamada、T. Yokoyama 和 X. Zhang，“2022年数据驱动等离子体科学综述”（2022），arXiv:2205.15832 [计算机科学].[20] T. Gergs、B. Borislavov 和 J. Trieschmann，《真空科学与技术杂志B辑》**40**，012802（2022），出版商：美国真空学会。[21] T. Gergs、T. Mussenbrock 和 J. Trieschmann，“用于预测氩等离子体放电中铝溅射与薄膜沉积初始阶段的物理分离人工神经网络”（2022），arXiv:2211.04796 [凝聚态物理].[22] D. P. Kingma 和 M. Welling，载于国际学习表征会议论文集（斯科茨代尔，美国，2013年）。[23] D. J. Rezende、S. Mohamed 和 D. Wierstra，载于第*31*届国际机器学习会议论文集，第32卷（PMLR，北京，中国，2014年），第1278–1286页。[24] I. Higgins、L. Matthey、A. Pal、C. Burgess、X. Glorot、M. Botvinick、S. Mohamed 和 A. Lerchner，载于第*5*届国际学习表征会议论文集（土伦，法国，2016年）。

[25] C. P. Burgess、I. Higgins、A. Pal、L. Matthey、N. Watters、G. Desjardins 和 A. Lerchner，载于第*31*届神经信息处理系统会议论文集（美国长滩，2017年）。[26] C. Doersch，arXiv:1606.05908 [计算机科学，统计学]（2021年）。[27] K. Sohn、H. Lee 和 X. Yan，载于第*29*届神经信息处理系统会议论文集，第28卷（加利福尼亚州蒙特利尔，2015年）。[28] D. Drabold 等，《物理评论B》**71**，054206（2005年）。[29] M. Cobb、D. Drabold 和 R. Cappelletti，《物理评论B》**54**，12162（1996年）。[30] X. Zhang 和 D. Drabold，《物理评论B》**62**，15695（2000年）。[31] J. S. K.-L. Gibson、S. Rezaei、H. Rueß、M. Hans、D. Music、S. Wulfinghoff、J. M. Schneider、S. Reese 和 S. Korte-Kerzel，《材料研究快报》**6**，142（2018年），出版商：泰勒与弗朗西斯出版集团，电子版：https://doi.org/10.1080/21663831.2017.1414081。[32] A. Iqbal 和 F. Mohd-Yasin，《传感器》（瑞士巴塞尔）**18**，1797（2018年）。[33] R. Elfrink、T. M. Kamel、M. Goedbloed、S. Matova、D. Hohlfeld、Y. v. Andel 和 R. v. Schaijk，《微机械与微工程学杂志》**19**，094005（2009年），出版商：IOP出版社。[34] A. K. Batra、A. Alomari、A. K. Chilvery、A. Bandyopadhyay 和 K. Grover，《先进科学、工程与医学》**8**，1（2016年）。[35] S. P. Beeby、M. J. Tudor 和 N. M. White，《测量科学与技术》**17**，R175（2006年），出版商：IOP出版社。[36] A. Stukowski，《材料科学与工程中的建模与仿真》**18**，015012（2009年），出版商：IOP出版社。[37] S. Karimi Aghda、D. Music、Y. Unutulmazsoy、H. H. Sua、S. Mr´az、M. Hans、D. Primetzhofer、A. Anders 和 J. M. Schneider，《材料学报》**214**，117003（2021年）。[38] F. Kr¨oger 和 H. Vink（学术出版社，1956年），第307–435页。[39] K. M. Bal 和 E. C. Neyts，《化学物理学杂志》**141**，204104（2014年），出版商：美国物理联合会。[40] M. J. Mees、G. Pourtois、E. C. Neyts、B. J. Thijsse 和 A. Stesmans，《物理评论B》**85**，134301（2012年），出版商：美国物理学会。[41] E. C. Neyts 和 A. Bogaerts，载于比利时理论化学：《理论化学论丛》专题文集，理论化学精选，编者：B. Cham-

pagne、M. S. Deleuze、F. De Proft 和 T. Leyssens（施普林格，柏林、海德堡，2014年），第277–288页。[42] S. Plimpton，《计算物理学杂志》**117**，1（1995年）。[43] A. P. Thompson、H. M. Aktulga、R. Berger、D. S. Bolintineanu、W. M. Brown、P. S. Crozier、P. J. in 't Veld、A. Kohlmeyer、S. G. Moore、T. D. Nguyen、R. Shan、M. J. Stevens、J. Tranchida、C. Trott 和 S. J. Plimpton，《计算机物理通信》**271**，108171（2022年）。[44] T. Liang、T.-R. Shan、Y.-T. Cheng、B. D. Devine、M. Noordhoek、Y. Li、Z. Lu、S. R. Phillpot 和 S. B. Sinnott，《材料科学与工程：R辑：综述》**74**，255（2013年）。[45] J. F. Ziegler 和 J. P. Biersack，载于《重离子科学论著》第*6*卷：天体物理学、化学与凝聚态物质，D. A. Bromley 编（施普林格美国公司，波士顿，马萨诸塞州，1985年），第93–129页。[46] T. Gergs、T. Mussenbrock 和 J. Trieschmann，"重新探讨氮化铝的电荷优化多体相互作用势，以研究等离子体-表面相互作用"（2022年），arXiv:2208.11605[凝聚态物理，物理学：物理学]。[47] K. Choudhary、T. Liang、K. Mathew、B. Revard、A. Chernatynskiy、S. R. Phillpot、R. G. Hennig 和 S. B. Sinnott，《计算材料科学》**113**，80（2016年）。[48] T. Gergs、F. Schmidt、T. Mussenbrock 和 J. Trieschmann，《化学理论与计算杂志》**17**，6691（2021年），出版商：美国化学学会。[49] A. Sz´all´as、K. Sz´asz、X. T. Trinh、N. T. Son、E. Janz´en 和 A. Gali，《应用物理学杂志》**116**，113702（2014年），出版商：美国物理联合会。[50] F. Birch，《物理评论》**71**，809（1947年），出版商：美国物理学会。[51] F. D. Murnaghan，《美国国家科学院院刊》**30**，244（1944年），出版商：《美国国家科学院院刊》。[52] D. Music、L. Banko、H. Ruess、M. Engels、A. Hecimovic、D. Grochla、D. Rogalla、T. Br¨ ogel- mann、A. Ludwig、A. von Keudell、K. Bobzin 和 J. M. Schneider，《应用物理学杂志》**121**，215108（2017年），出版商：美国物理联合会。[53] D. M. Holzapfel、D. Music、S. Mr´az、S. Karimi Aghda、M. Etter、P. Ondra˘cka、M. Hans、D. Bogdanovski、S. Evertz、L. Patterer、P. Schmidt、A. Sch¨okel、A. O. Eriksson、M. Arndt、D. Primetzhofer 和 J. M. Schneider，《材料学报》**237**，118160（2022年）。

[54] F. Oviedo, Z. Ren, S. Sun, C. Settens, Z. Liu, N. T. P. Hartono, S. Ramasamy, B. L. DeCost, S. I. P. Tian, G. Romano, A. Gilad Kusne, 和 T. Buonassisi, 《npj计算材料》**5**, 1 (2019), 第1期, 出版方: 自然出版集团。[55] D.-C. Li 和 I.-H. Wen, 《神经计算》**143**, 222 (2014)。[56] T. A. Choudhury、N. Hosseinzadeh 和 C. C. Berndt, 《表面与涂层技术》**205**, 4886 (2011)。[57] H. Zhang、M. Cisse、Y. N. Dauphin 和 D. Lopez-Paz, "mixup: 超越经验风险最小化", (2018), arXiv:1710.09412 [计算机科学, 统计学]。[58] D. P. Kingma 和 J. Ba, 载于第三届国际学习表征会议论文集 (美国圣迭戈, 2015)。[59]D. E. P. Vanpoucke、O. S. J. van Knippenberg、K. Hermans、K. V. Bernaerts 和 S. Mehrkanoon, 《应用物理学杂志》**128**, 054901 (2020), 出版方: 美国物理联合会。[60] T. B¨ack 和 F. Hoffmeister, 《统计与计算》**4**, 51 (1994)。[61] H.-P. Schwefel, 《通过进化策略对计算机模型进行数值优化》, 《跨学科系统研究》, 第26卷 (Birkh¨auser, 巴塞尔, 1977)。[62] G. Rozenberg、T. B¨ack 和 J. N. Kok 编, 《自然计算手册》(施普林格柏林海德堡, 柏林、海德堡, 2012)。[63] H.-P. Schwefel, 载于《国际一般系统研究学会第31届年会预印本》, 第2卷 (匈牙利布达佩斯, 1987), 第1025–1033页。[64] S. Ries、L. Banko、M. Hans、D. Primetzhofer、J. M. Schneider、A. Ludwig、P. Awakowicz 和 J. Schulze, 《等离子体源科学与技术》**28**, 114001 (2019), 出版方: IOP出版社。[65] J. Trieschmann 和 T. Mussenbrock, 《应用物理学杂志》**118**, 033302 (2015)。[66] J. Trieschmann、S. Ries、N. Bibinov、P. Awakowicz、S. Mr´az、J. M. Schneider 和 T. Mussenbrock, 《等离子体源科学与技术》**27**, 054003 (2018)。[67] S. Bienholz, 《用于沉积陶瓷及铁磁薄膜的电容耦合多频等离子体》, 博士论文, 波鸿鲁尔大学, 德国北莱茵-威斯特法伦州波鸿 (2014)。[68] C. Stampfl 和 C. G. Van de Walle, 《物理评论B》**65**, 155212 (2002), 出版方: 美国物理学会。