



ELSEVIER

Contents lists available at ScienceDirect

Engineering

journal homepage: [www.elsevier.com/locate/eng](http://www.elsevier.com/locate/eng)



Research  
AI in Chemical Engineering—Article

## 机器学习辅助难熔高熵合金强韧性协同设计

文成<sup>a,b</sup>, 张闫<sup>b,c</sup>, 王长鑫<sup>b,c</sup>, 黄海友<sup>c</sup>, 吴渊<sup>d</sup>, Turab Lookman<sup>e,\*</sup>, 宿彦京<sup>b,c,\*</sup>

<sup>a</sup> School of Mechanical and Power Engineering, Guangdong Ocean University, Zhanjiang 529500, China

<sup>b</sup> Beijing Advanced Innovation Center for Materials Genome Engineering, University of Science and Technology Beijing, Beijing 100083, China

<sup>c</sup> Corrosion and Protection Center, University of Science and Technology Beijing, Beijing 100083, China

<sup>d</sup> State Key Laboratory for Advanced Metals and Materials, University of Science and Technology Beijing, Beijing 100083, China

<sup>e</sup> AiMaterials Research LLC, Santa Fe, NM 87501, USA

### ARTICLE INFO

#### Article history:

Received 9 October 2022

Revised 1 June 2023

Accepted 6 November 2023

Available online 4 September 2024

#### 关键词

机器学习

难熔高熵合金

多目标优化

强韧性设计

#### 摘要

由于存在巨大的成分探索空间(数以亿计的候选合金)和多目标性能协同优化需求,设计高温环境用难熔高熵合金是一项艰巨的挑战。本研究提出一种融合机器学习、遗传搜索、聚类分析和实验设计的材料迭代设计框架,加速高温强度和室温塑性协同优化的难熔高熵合金成分设计。经过6次反馈循环,我们共迭代合成并表征了24种新成分合金,有4种合金展现出优异的强韧性匹配,高温强度和室温断裂应变范围分别达到714~1061 MPa和17.2%~50.0%。本方法搜索确定了一种极具难熔高熵合金潜力的成分体系ZrNbMoHfTa,其中,Zr<sub>0.13</sub>Nb<sub>0.27</sub>Mo<sub>0.26</sub>Hf<sub>0.13</sub>Ta<sub>0.21</sub>合金在1200 °C下屈服强度接近940 MPa,超过了已报道的难熔高熵合金的屈服强度,同时其室温断裂应变高达17.2%,1200 °C的温度也突破了传统镍基高温合金的承温极限。本研究提出基于机器学习的方法框架可满足复杂材料设计中多目标性能快速、协同优化的设计需求,克服材料小样本数据和大成分空间的矛盾问题。

© 2024 THE AUTHORS. Published by Elsevier LTD on behalf of Chinese Academy of Engineering and Higher Education Press Limited Company. This is an open access article under the CC BY-NC-ND license (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/4.0/>).

## 1. 引言

燃气轮机、核反应堆和航空航天推进系统等工程应用场景,对合金材料的高温力学性能提出更高要求,而传统镍基合金受元素固有熔点的限制,承温能力已接近其服役极限。基于新型高温结构材料研发的需求,难熔高熵合金概念于2010年被提出[1],并因其在1000 °C及以上温度保持高强度的能力而备受关注[2]。难熔高熵合金通常由四种或以上元素组成,各元素含量(原子分数)为5%~35%。由于合金设计通常含有第4族(Ti、Zr和Hf)、第5族

(V、Nb和Ta)或第6族(Cr、Mo和W)中的高熔点难熔元素,难熔高熵合金展现出比传统高温合金更优的高温强度[3]。此外,高熵效应带来的结构稳定性使难熔高熵合金非常适合在高温下使用。然而大多数难熔高熵合金缺乏延展性,室温压缩断裂应变低于10%,加工性能不足。事实上,室温塑性不足已成为难熔高熵合金发展的重要瓶颈,限制了其作为结构材料的应用[4]。因此,实现高温强度和室温塑性的同时改善,是难熔高熵合金取代镍基高温合金必须克服的技术挑战[5]。

向难熔高熵合金中添加难熔元素是提高其高温强度的

\* Corresponding authors.

E-mail addresses: [turablookman@gmail.com](mailto:turablookman@gmail.com) (T. Lookman), [yjsu@ustb.edu.cn](mailto:yjsu@ustb.edu.cn) (Y. Su).

2095-8099/© 2024 THE AUTHORS. Published by Elsevier LTD on behalf of Chinese Academy of Engineering and Higher Education Press Limited Company. This is an open access article under the CC BY-NC-ND license (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/4.0/>).

英文原文: *Engineering* 2025, 46(3): 214-223

引用本文: Cheng Wen, Yan Zhang, Changxin Wang, Haiyou Huang, Yuan Wu, Turab Lookman, Yanjing Su. Machine-Learning-Assisted Compositional Design of Refractory High-Entropy Alloys with Optimal Strength and Ductility. *Engineering*, <https://doi.org/10.1016/j.eng.2023.11.026>

主要方法,但可能降低其室温塑性,已有研究利用这种方法开发新型难熔高熵合金,如NbMoTaW(V)表现出突出的高温强度,但室温塑性很差[6],而TaNbHfZrTi合金具有优异的室温塑性,但高温强度低[7]。Han等[8-9]通过控制Ti含量设计了TiNbMoTaW(V)合金,与两种基础合金相比,其高温强度和室温塑性均得到改善。Juan等[10]通过向TaNbHfZrTi中添加Mo元素,提高了合金在1000 °C下的屈服应力。类似地,已有研究对 $Al_xTiZrHfNb-Ta$  [11]、 $HfMo_xNbTaTiZr$  [12]、 $Al_xNbTaTiV$  [13]、 $V_xNb-MoTa$  [14]和 $HfNb_xTa0.2TiZr$  [15]等合金的成分进行调整,以调控难熔高熵合金的性能。然而,目前通过调整元素的难熔高熵合金设计主要依赖于经验和直觉,同时难熔高熵合金的复杂组成和巨大的搜索空间,也严重制约了潜力合金体系的研发。

进一步,理论模型和经验规则也被用于难熔高熵合金的性能预测,以此尝试高通量的成分筛选和快速合金设计。Maresca等[16]探究了单相体心立方难熔高熵合金的高强度起源,提出用于强度预测的固溶强化理论,并以此对 $10^7$ 种单相体心立方结构的高熵合金进行性能预测,确定出具有潜在在高温强度的合金成分[17]。虽然该研究给出超过 $10^6$ 种可能的高强难熔高熵合金,但成分空间仍然巨大,且没有考虑合金室温塑性。

针对难熔高熵合金的室温韧性设计,Sheikh等[18]提出了价电子浓度规则,提出由第4、5和6族元素组成的单相体心立方结构难熔高熵合金在价电子浓度小于或等于4.4时具有高韧性,当价电子浓度大于或等于4.6时,合金表现出室温脆性。基于对已报道难熔高熵合金的室温特性分析,Senkov等[19]进一步指出难熔高熵合金的室温塑性与价电子浓度之间存在依赖性,但并无明确的价电子浓度临界值可用于区分韧、脆性。目前仍缺乏有效的物理模型或准则来指导难熔高熵合金的合理设计。此外,难熔高熵合金数以亿计的广阔成分空间,使得采用现有方法难以实现强韧性协同优化的难熔高熵合金快速设计。

近年,利用机器学习方法解决材料科学中的复杂问题引起了广泛关注[20-22],机器学习技术已被广泛用于材料的成分设计[23-25]和多目标性能优化,如铜合金拉伸强度和电导率的协同优化[26]、具有良好结构稳定性和期望居里温度的铁电材料设计[27],以及更多性能要求的高温合金成分设计[28-29]。Gopakumar等[30]提出多目标优化的机器学习方法,以提高广阔空间中具有所需性能的材料搜索效率。Guo等[31]提出集成分子动力学模拟、机器学习模型和遗传算法的框架,用以设计CoNiCrFeMn体系高熵合金的刚度和临界剪切应力。Khatamsaz等[32]使用基于密

度泛函理论计算的贝叶斯优化方法,探索MoNbTiVW体系高熵合金的塑性指标优化。

实际上,难熔高熵合金强韧性的协同优化本质上是一个多目标优化(MOO)问题,需要解决三个问题。

(1) 目标性能的快速预测或评估。由于缺乏经验规则和有效物理模型,难熔高熵合金的高温强度和室温塑性预测,可借助机器学习模型来实现,以此实现有效快速的目标性能评估。

(2) 广阔成分空间内合金成分的高效搜索。考虑到难熔高熵合金的成分空间巨大,强韧性协同优化需实现对潜力合金成分的高效搜索,而由于计算资源有限,穷举空间搜索是难以实现的,遗传算法、模拟退火算法和布谷鸟算法等元启发式算法可作为成分搜索的理想方法。

(3) 多目标性能的优化平衡。在多目标优化问题中,获取优化的帕累托前沿面(PF面)是必要的,该前沿面代表多个目标性能之间的最佳权衡,如难熔高熵合金的高温强度和室温塑性。一般而言,帕累托前沿上的所有候选样本是平等的,可为决策者提供筛选灵活性。针对难熔高熵合金的设计,选择用于实验合成和表征的候选合金以获得多性能的协同优化同样重要。

本研究的难熔高熵合金设计主要关注高温强度和室温塑性协同提升,即1000 °C的屈服强度( $\sigma_y^{1000^\circ C}$ )和室温压缩断裂应变( $\epsilon_f^{RT}$ )。具体地,我们关注于构建基于机器学习技术的数据驱动方法框架,来解决复杂材料设计中的常见问题,如有限的数据应变、巨大的成分空间以及多目标性能的优化需求。因此,研究提出了集成机器学习、遗传搜索、聚类分析和实验反馈的多目标优化框架,以加速高温强度和室温塑性协同优化的难熔高熵合金成分设计。

最终,利用上述方法我们进行了6次反馈迭代实验,每次迭代筛选4种代表成分,共合成制备24种难熔高熵合金,且研究确定了具有高温应用潜力的ZrNbMoHfTa合金体系。其中, $Zr_{0.13}Nb_{0.27}Mo_{0.26}Hf_{0.13}Ta_{0.21}$ 合金表现出优异的力学性能,在1200 °C下的屈服强度超过了已报道的难熔高熵合金,接近940 MPa,且其室温断裂应变达到17.2%,需要说明的是1200 °C也打破了镍基高温合金的应用温度极限,突出的耐热性能和良好的结构稳定性表明该合金的高温结构应用前景,良好的室温塑性则保证了合金的可加工性。此外,本研究的机器学习方法框架可进一步应用于其他复杂材料系统的加速优化设计中。

## 2. 多目标优化设计的机器学习框架

针对难熔高熵合金的多目标性能优化策略如图1(a)所示,其中基于期望提升(EI)值的方法在工程设计的多

目标优化中已有应用[33–34]，但在材料研发中仍未见报道，且我们进一步增加了材料制备和性能表征的反馈回路。该策略中针对高温强度和室温塑性预测的机器学习模型是独立构建和评估的，对于小数据训练的机器学习模型，必须考虑目标预测的不确定性，尤其是其应用于广阔搜索空间中的性能预测时[20,35]。EI性能指标平衡了模型的开发（即倾向筛选预测性能高的材料样本）与利用（即倾向筛选模型预测不确定性较大的材料样本），结合EI指标和实验反馈的机器学习方法在材料高效研发中已被证明，但主要针对单目标性能的优化设计[23–24]。

图1（b）对比了基于模型预测不确定性的EI指标和机器学习模型直接预测在材料样本筛选中的差异，其中，2#材料样本因较高的EI值被选为潜在的最优成分，而不是3#材料样本，虽然后者具有更高的模型预测性能。为了进一步提升多目标优化的效率，我们采用EI效能指标作为帕累托前沿获取的两个目标属性，而非机器学习模型

的直接预测值，如图1（c）所示。关于EI效能的说明可进一步参阅附录A，其在高熵合金[31,36]和镍基高温合金[37]的性能优化和成分设计中均有应用。随后，基于机器学习预测计算出的EI值作为非支配排序遗传算法（NSGA）-II [38]的输入，执行材料标准的启发式搜索，在遗传迭代的选择、交叉和突变操作结束时，便可产生基于EI的帕累托前沿材料样本集。具体地，在遗传算法执行的种群初始化后，我们利用自助抽样策略，构建合金性能预测的均值机器相关不确定性，从而获取每种合金各目标性能的EI值，进而通过遗传操作获取最终的帕累托前沿样本集。为了避免遗传搜索的随机性，我们基于初始样本进行100次迭代得到100个帕累托前沿面，并最终通过进一步的非支配排序确定最终的帕累托前沿。更多详细说明可见附录A。随后，我们对帕累托前沿进行聚类分析，采用K-均值法[33–34,39]从聚类中心中选择候选合金，进行制备及性能表征（聚类分析的更多详细说明可见附录A）。如图1（a）所示，新的合

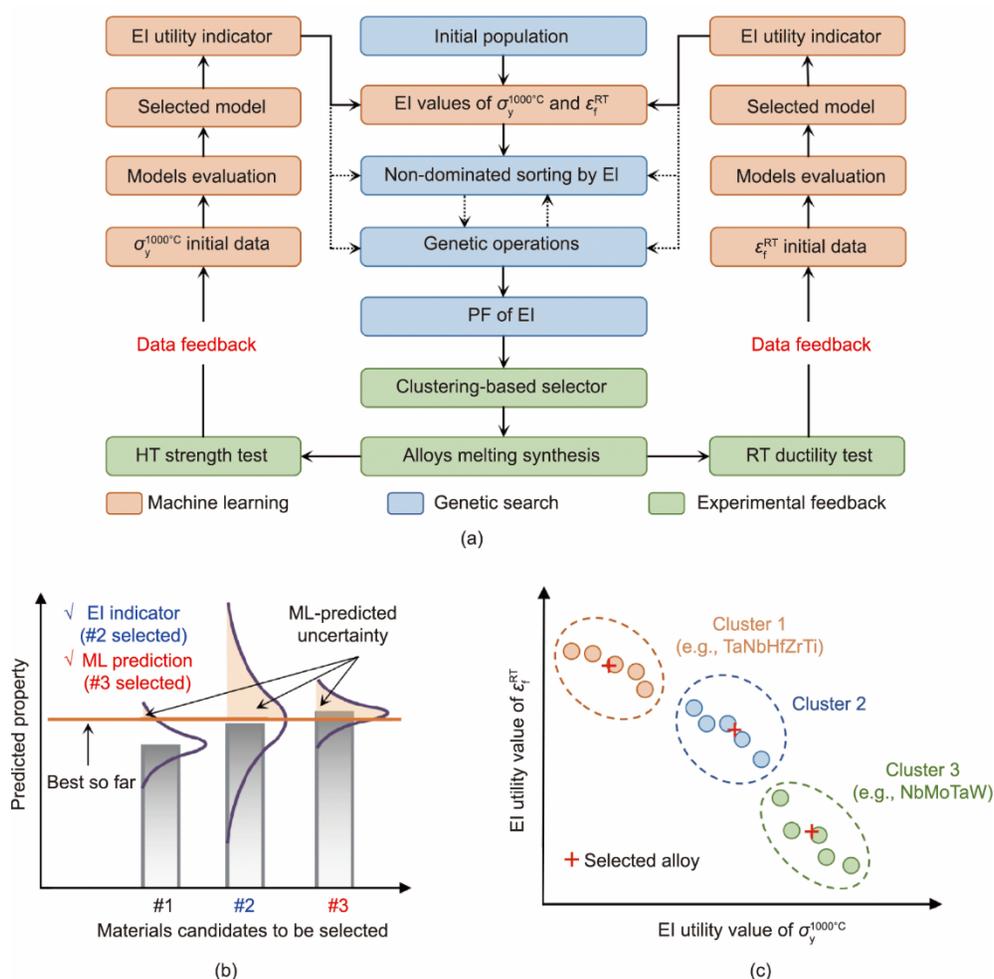


图1. 难熔高熵合金多目标性能协同优化的机器学习方法框架。(a) 设计流程包含三个部分：机器学习模型选择，用于计算给定合金的目标性能EI值；非支配排序遗传算法NSGA-II，基于EI值进化搜索候选合金成分；实验反馈，基于聚类分析的合金筛选和实验验证。合金性能的EI值用作遗传搜索的目标，而非机器学习模型预测值。(b) 考虑不确定性的EI值与模型直接预测值在材料筛选中的对比。(c) 对于双目标性能优化的难熔高熵合金设计，采用基于聚类分析的方法选择帕累托前沿面上的潜力合金，有利于高温强度（相对TaNbHfZrTi合金）和室温塑性[相对NbMoTaW(V)合金]的提升。

金继续被纳入训练数据集，进行机器学习模型的持续迭代和合金性能的不断改进。需要说明的是，本研究针对难熔高熵合金的性能优化，还在于设计高温强度和室温塑性协同提升的合金新成分，以对标已有的两个典型难熔高熵合金系统 TaNbHfZrTi 及 NbMoTaW(V)，如图 1 (c) 所示。

### 3. 难熔高熵合金设计

#### 3.1. 机器学习模型构建

我们从文献中收集了包含第 4 族 (Ti、V 和 Cr)、第 5 族 (Zr、Nb 和 Mo)、第 6 族 (Hf、Ta 和 W) 及铝 (Al) 元素的难熔高熵合金样本，所涉及的合金均采用电弧熔炼方法制备得到，以最大限度地减少由于制备方法差异引起的性能变化。初始训练集的数据包括合金成分 ( $c_i$ ) 和力学性能 ( $y$ )，所有合金由单相或多相结构组成，其中，涉及 1000 °C 屈服强度合金样本 54 个，涉及室温压缩断裂应变合金样本 145 个 (详见附录 A)。

基于上述数据集，我们以合金中元素的摩尔分数 (%) 为输入，分别训练了机器学习 (ML) 模型，建立合

金成分与性能间的关系，以此实现对后续成分空间中合金性能的预测。所收集的合金中涉及 10 种元素，其摩尔分数被直接用作模型的输入特征；以 1000 °C 屈服强度 ( $\sigma_y^{1000^\circ\text{C}}$ ) 和室温断裂应变 ( $\epsilon_f^{\text{RT}}$ ) 分别作为输出目标。本研究评估了 9 种常用于回归问题的机器学习模型，评估指标包括均方根误差 (RMSE)、平均绝对误差 (MAE) 和皮尔逊相关系数 ( $R^2$ ) (有关模型评估和选择的详细信息详见附录 A)。根据图 2 所示的模型预测性能评估结果，采用径向基核函数的支持向量机模型和随机森林模型对屈服强度的预测良好，预测相关系数超过 0.85，且支持向量机模型预测均方根误差更低。因此，我们选择支持向量机模型作为后续遗传搜索中高温强度评估的基础模型。针对室温塑性的预测，核岭回归模型、支持向量机模型以及高斯过程模型均有较高的预测精度，相关系数达到 0.8，三个模型的均方根误差相近，其中支持向量机模型预测的平均绝对误差最小。因此，支持向量机模型被选中，作为后续遗传搜索中室温断裂应变预测的基础模型。如图 2 (c) 和 (d) 所示，机器学习模型对训练数据中合金各性能的预测均分布于对角线附近，表明模型良好的预测性能。

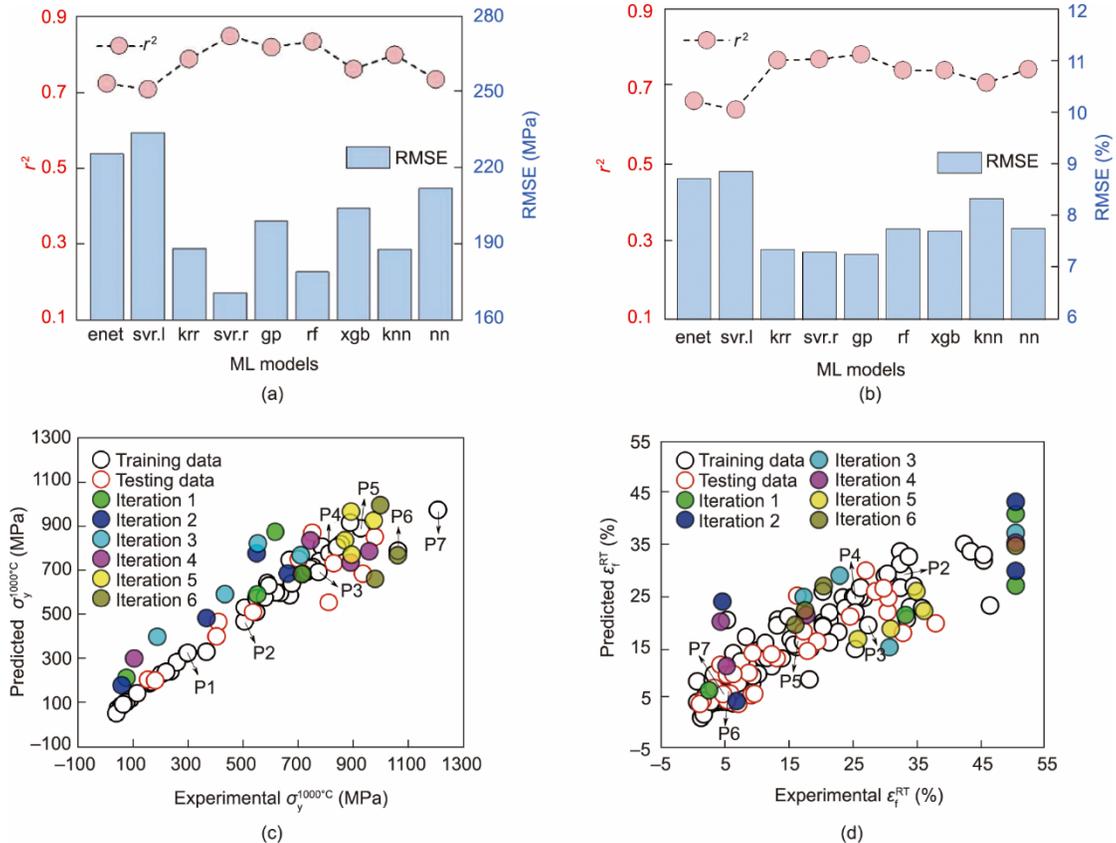


图 2. 难熔高熵合金两目标性能预测的机器学习模型评估。(a) 用于  $\sigma_y^{1000^\circ\text{C}}$  预测的机器学习模型评估结果；(b) 用于  $\epsilon_f^{\text{RT}}$  预测的机器学习模型评估结果；(c) 支持向量机模型对高温屈服强度的预测；(d) 支持向量机模型对室温断裂应变的预测。P1~P7 分别代表初始训练数据中的非支配合金。enet: 弹性网；svr.l: 线性核支持向量回归模型；krr: 核岭回归；svr.r: 径向基核支持向量回归模型；gp: 高斯过程；rf: 随机森林；xgb: 极端梯度提升；knn:  $k$  最近邻；nn: 神经网络。

### 3.2. 实验

本研究中难熔高熵合金均采用真空电弧熔炼方法制备得到, 各元素纯度均超过 99.5%, 熔炼中采用高纯氩气保护, 每个铸锭至少重熔 5 次以提高其化学均匀性。室温压缩断裂应变采用 Instron-9657 型万能材料试验机测试, 以  $10^{-3} \text{ s}^{-1}$  的应变速率对直径为 3 mm、高 6 mm 的圆柱形样品进行测试。高温屈服强度采用 Gleeble-3800 热模拟试验机测试, 圆柱形样品直径为 6 mm、高 9 mm, 测试中采用电阻加热方法, 以  $10 \text{ }^{\circ}\text{C}\cdot\text{s}^{-1}$  的速率加热合金样品, 在  $1000 \text{ }^{\circ}\text{C}$  下保温 5 min, 随后以  $10^{-3} \text{ s}^{-1}$  的应变速率对样品进行压缩, 至变形率达到 50%, 各合金样品重复测量 2~3 次。合金相结构采用 X 射线衍射技术测定, 测试设备为 D8 ADVANCEX, 采用  $\text{Cu K}\alpha$  衍射, 扫描速率为  $6 \text{ } (^{\circ})\cdot\text{s}^{-1}$ 。

### 3.3. 合金成分搜索和实验反馈

我们定义搜索空间为涉及 Al、Ti、V、Cr、Zr、Nb、Mo、Hf、Ta 和 W 十种元素的四元、五元及六元合金, 各元素质量分数为 5%~35%, 成分变化步长为 1% (原子分数), 该空间包含近 20 亿个候选合金成分。每次遗传操作通过选择、交叉和变异, 从该搜索空间中生成一个包含 500 个合金的随机种群。此外, 为了消除种群初始化的随机性对搜索结果的影响, 我们在每次迭代中执行 100 个遗传优化过程, 以获得目标性能 EI 值的 100 个不同的帕累托前沿, 再对其进行非支配排序以确定最终的帕累托前沿, 即候选合金样本集, 通过随后的聚类分析实现实验合金选择。合金的排序和预测性能随着实验样本的反馈迭代而不断变化 (详细信息可见附录 A)。最终优选合金多源自 ZrNbMoHfTa、AlTiZrCrNbMo、TiZrNbMoHfTa、AlTiZrNbHfTa、AlTiZrCrNbTa、TiZrNbHfTa、TiVZrNb 和 VCrNbMoHf 等成分体系。而通过分析合金在前五次迭代中的实验结果, 我们发现 ZrNbMoHfTa 体系合金表现出较为优异的强韧性匹配。因此, 在第 6 次迭代时我们修正了前述预定的成分空间, 且没有采用遗传搜索, 而是将该体系中每种元素的含量限定在 5%~35% (摩尔分数), 并以此为基础对 ZrNbMoHfTa 体系的 553 401 种合金进行遍历筛选, 以期确定高温 (HT) 强度和室温 (RT) 塑性协同优化的难熔高熵合金成分。

然后采用  $K$ -均值算法, 对性能 EI 值的帕累托前沿中的候选合金进行聚类分析, 以获得用于实验合成和表征的合金。在使用  $K$ -均值方法时需要确定最佳的聚类中心数。我们使用“肘部法”通过计算聚类中心的组内平方和 (WGSS 值), 确定优选的聚类中心数 (“肘部法”详见附录 A 中的图 S2)。图 3 所示为各次迭代中 WGSS 值随着

聚类中心数增加的变化, 由于  $K=4$  后 WGSS 值下降非常缓慢, 表明 4 个聚类中心数即能获得较好的聚类结果。实际上, 最佳聚类中心数的确定有多种指标和方法, 且可能存在结果不稳定的问题。因此, 除了“肘部法”外, 我们还采用“NbClust”和“mclust”方法进一步做了聚类对比分析 (详见附录 A)。结果表明, 图 3 确定的聚类中心数是稳健且合适的。因此, 在后续每次迭代中均筛选 4 种合金并进行实验制备和性能测试反馈, 最终在 6 次迭代后共获得 24 种新成分合金, 聚类结果和所选合金及其性能结果详见附录 A。

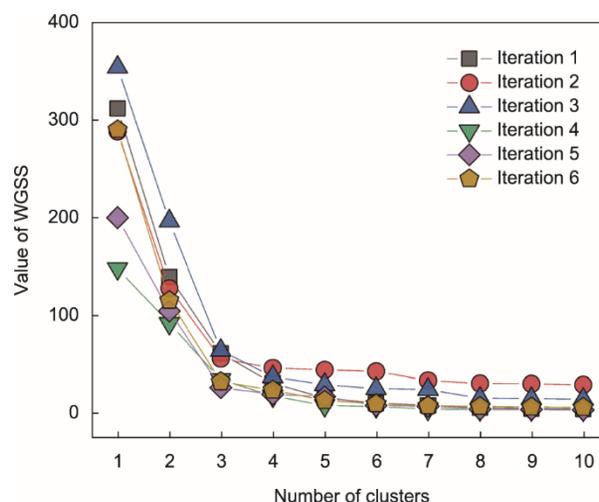


图 3. 基于聚类分析的实验合金筛选。随着聚类中心数增加的 WGSS 值变化, 肘部点出现在聚类中心数 4 处, 表明 4 为最佳聚类中心数, 因此各次迭代均选择 4 个合金进行实验反馈。

## 4. 结果与讨论

### 4.1. 多目标优化后的难熔高熵合金性能提升

为了说明多目标优化后的难熔高熵合金性能提升, 我们将训练数据集中的合金与新设计合金进行了对比, 结果如图 4 所示。可以看出, 合金帕累托前沿在 6 次迭代后向前推进显著, 表明其高温强度和室温塑性均得到高效提升。优选合金的高温屈服强度均未超过 1200 MPa。需要说明的是, 具备更高高温强度的合金通常包含 Al、Cr、Nb 等元素, 金属间化合物的形成通常可以提高合金高温强度, 但会导致合金的室温脆性行为[5]。典型如训练样本中的  $\text{Al}_{0.025}\text{Ti}_{0.2}\text{V}_{0.075}\text{Zr}_{0.1}\text{Cr}_{0.2}\text{Nb}_{0.2}\text{Mo}_{0.2}$  合金, 其在  $1000 \text{ }^{\circ}\text{C}$  的屈服强度高达 1207 MPa, 但室温压缩断裂应变仅为 4.3%。我们的机器学习模型识别出这些元素对合金性能的影响, 因此从该合金体系衍生的合金, 均表现出较差的室温塑性, 如 2 次迭代出现的合金 E8, 2 次迭代出现的合金 E14、E15。最终经过 6 次迭代后, 得到 12 种新成

分合金，在训练样本合金的帕累托前沿中，其至少对一种合金样本起支配作用，其中，合金E24、E19、E17、E21则形成了新的性能帕累托面，如图4中的红色折线所示。4种合金的成分及其性能如表1所示，可见从合金E24到E21，随着Mo、Hf、Zr元素含量的降低，合金高温强度不断升高而室温塑性逐渐降低，我们将在4.4节进一步分析各元素对难熔高熵合金性能的影响。

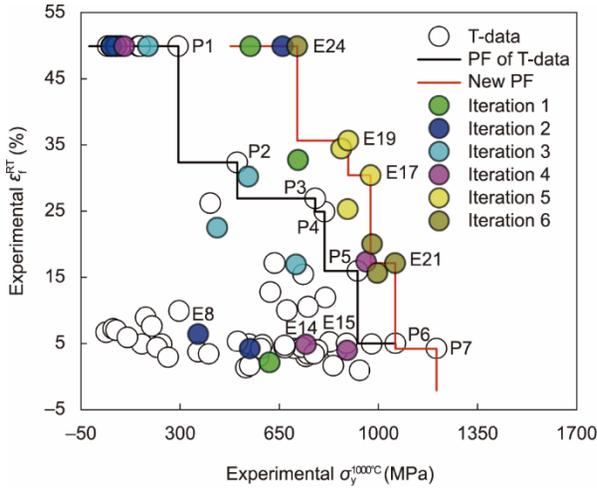


图4. 比较MOO前后RHEA属性及帕累托图，其中，RHEA为经过6次实验迭代后每次迭代合成的4种合金。其中，P1~P7代表训练样本中的非支配合金，E24、E19、E17和E21则是新的帕累托前沿面中的非支配合金。

为了进一步证明多目标优化后的难熔高熵合金性能改善情况，我们比较了原始帕累托前沿和新帕累托前沿中合

金的高温强度和室温塑性，结果见表1，其中，P1~P7代表训练样本的非支配合金（屈服强度由低到高）。可以看出，优化合金的两个目标性能都有显著改善。对于高塑性（室温断裂应变超过50%）合金，E24在1000 °C时的屈服强度 $\sigma_y^{1000^\circ\text{C}}$ 几乎是P1（即典型的TaNbHfZrTi合金，其 $\sigma_y^{1000^\circ\text{C}}$ 仅为295 MPa）的2.5倍。同样，对于1000 °C高屈服强度（大于1000 MPa）合金，E21的室温断裂应变则是P6合金的3倍。而合金P2、P3、P4和P5的性能也被不止一种优化合金所支配。与P2相比，E24合金的屈服强度提高了41.7%，同时，室温断裂应变提升超过54.3%。合金E19和E17在高温强度和室温塑性方面也有提升，与典型合金NbMoTaW（1000 °C屈服强度为548 MPa，室温断裂应变为2.6%）和NbMoTaWV（1000 °C屈服强度为842 MPa，室温断裂应变为1.7%）相比，大多数新设计难熔高熵合金在高温强度和室温塑性上都有显著提升。

#### 4.2. 设计合金的结构稳定性和高温软化抗力

为了进一步说明优化合金在高温下的工程应用潜力，我们对比了其在1000 °C压缩变形前后的相结构，结果如图5所示。XRD图谱显示，铸态合金E24、E19和E17均为单相体心立方（BCC）结构，而合金E21出现少量Laves相，且各合金高温变形前后的物相结构相同，表明优化合金具有良好的结构稳定性。优选的其他合金也展现了相似的结构稳定性（详见附录A中的图S5）。除了BCC结构外，四种合金E13、E21、E22和E23均出现Laves相衍射峰，Laves相通常会改善合金的高温强度，但降低室

表1 多目标优化后的难熔高熵合金及其与初始样本合金(P1~P7)的性能对比

Alloy number	Alloy composition	$\sigma_y^{1000^\circ\text{C}}$ (MPa)	$\epsilon_f^{\text{RT}}$ (%)	$\sigma_y^{1000^\circ\text{C}}$ increase (%)	$\epsilon_f^{\text{RT}}$ increase (%)
E24	Zr <sub>0.24</sub> Nb <sub>0.29</sub> Ti <sub>0.09</sub> Hf <sub>0.2</sub> Ta <sub>0.18</sub>	714	> 50.0	—	—
E19	Zr <sub>0.23</sub> Nb <sub>0.28</sub> Ti <sub>0.14</sub> Hf <sub>0.15</sub> Ta <sub>0.2</sub>	894	35.7	—	—
E17	Zr <sub>0.19</sub> Nb <sub>0.26</sub> Ti <sub>0.2</sub> Hf <sub>0.16</sub> Ta <sub>0.19</sub>	974	30.5	—	—
E21	Zr <sub>0.13</sub> Nb <sub>0.27</sub> Ti <sub>0.26</sub> Hf <sub>0.13</sub> Ta <sub>0.21</sub>	1061	17.2	—	—
P1	TaNbHfZrTi	295	> 50.0	142.0 (E24)	—(E24)
P2	Ti <sub>0.325</sub> Nb <sub>0.347</sub> Mo <sub>0.328</sub>	504	32.4	41.7 (E24), 77.4 (E19)	>54.3 (E24) 10.2 (E19)
P3	TiNbMoHfTa	778	27.0	14.9 (E19), 25.2 (E17)	32.2 (E19) 13.0 (E17)
P4	VNbMoTa	811	25.0	10.2 (E19), 20.1 (E17)	42.8 (E19) 22.0 (E17)
P5	Al <sub>0.1</sub> Ti <sub>0.2</sub> Zr <sub>0.1</sub> Cr <sub>0.2</sub> Nb <sub>0.2</sub> Mo <sub>0.2</sub>	927	16.0	5.1 (E17), 14.5 (E21)	90.6 (E17) 7.5 (E21)
P6	ZrNbMoHfTa	1062	5.1	—(E21)	300.0 (E21)
P7	Al <sub>0.025</sub> Ti <sub>0.2</sub> V <sub>0.075</sub> Zr <sub>0.1</sub> Cr <sub>0.2</sub> Nb <sub>0.2</sub> Mo <sub>0.2</sub>	1207	4.3	—	—

Alloys with brackets in the last two columns represent the designed alloys for comparison.

温塑性[2,5], 因此这些合金的室温断裂应变均低于20%, 而单相BCC结构合金则展现了更好的室温塑性(附录A中的表S2)。此外, 我们注意到优化合金E4和E24的室温压缩断裂应变均超过50%, 这与典型的TaNbHfZrTi体系合金相当, 但后者通常表现出较弱的承温性能, 例如, 等摩尔TaNbHfZrTi合金在1000 °C的屈服强度 $\sigma_y^{1000^\circ\text{C}}$ 仅为295 MPa, 而E4和E24高温强度突出, 其 $\sigma_y^{1000^\circ\text{C}}$ 分别达到550 MPa和714 MPa。

进一步, 我们对比了设计合金E21与文献[40]中报道合金的高温性能, 结果如图5(c)所示。可以看出, 与典型合金NbMoTaW和NbMoTaWV相比, 合金E21在1200 °C下的屈服强度 $\sigma_y^{1200^\circ\text{C}}$ 分别从735 MPa、506 MPa增加到940 MPa, 增幅分别达27.9%和85.8%。这表明1200 °C可能远未达到合金E21的承温极限(合金迅速失去强度的温度[41]), E21合金较低的密度和良好的室温塑性也使其极具工程应用潜力。事实上, 具有单相BCC结构的合金E17也表现出良好的耐温性, 其在1200 °C的屈服强度接近669 MPa, 这可能源于其显著的固溶强化。图5(d)给出了合金E21与已报道难熔高熵合金的1200 °C比屈服强度( $\sigma_y^{1200^\circ\text{C}}/\rho$ , 其中,  $\rho$ 为密度)的对比结果, 可以看出, 即使在不考虑合金制备工艺的情况下, 无论是单相结构还是多相结构合金, E21的高温性能优势

显著。此外, 我们还给出了所有制备合金1000 °C的比屈服强度 $\sigma_y^{1000^\circ\text{C}}/\rho$ , 并与训练合金进行了比较(详见附录A中的图S7), 结果表明, 在同等 $\sigma_y^{1200^\circ\text{C}}/\rho$ 水平下, 我们设计的合金表现出更好的室温塑性。前述对比表明, 本研究设计的难熔高熵合金是高温工程领域应用的潜在材料, 其中, ZrNbMoHfTa体系的表现尤为突出。

#### 4.3. 设计合金的强韧性分析

众所周知, 当服役温度达到熔点的0.6倍时, 金属合金的强度通常会显著下降, 难熔高熵合金良好的耐温性能主要源于高熔点元素的添加。Senkov等[40]探究了难熔高熵合金熔点与其屈服强度之间的关系, 并提出单相和多相结构难熔高熵合金的设计思路。在这里, 我们使用加权规则( $T_m = \sum c_i \times T_{m_i}$ , 其中,  $c_i$ 代表元素*i*的浓度,  $T_{m_i}$ 代表元素*i*的熔点)估算合金熔点, 并研究 $\sigma_y^{1000^\circ\text{C}}$ 对 $T_m$ 的依赖性, 结果如图6(a)所示。可以看出, 当合金熔点超过2150 °C时, 其高温强度随熔点增加显著提升, 这与之前的研究结果一致[40]。但这种依赖关系并不适用于低熔点含铝难熔高熵合金, 如合金E2、E8、E9、E14、E15和E16。这种依赖关系也会在合金表现出室温脆性时出现偏差, 如设计合金E6。在难熔高熵合金设计中添加Al元素, 通常用于降低合金密度并改善其高温抗氧化性能。事实

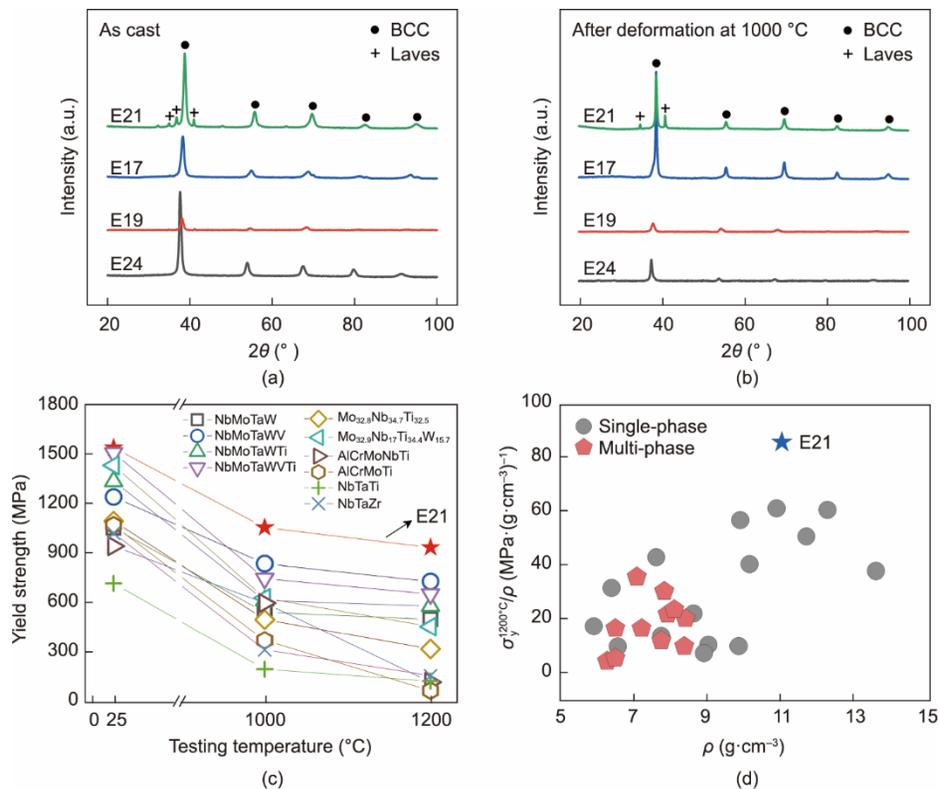


图5. 设计合金的结构稳定性及其高温软化抗力。高温压缩变形前(a)、后(b)合金相结构XRD表征结果; (c)设计合金E21与已报道难熔高熵合金[40]的承温性能对比; (d)设计合金E21与已报道难熔高熵合金[40]高温比屈服强度对比。 $\rho$ : 密度。

上, Al和难熔过渡金属间的键合性质与难熔过渡金属之间的键合性质明显不同, Al与难熔金属混合时往往具有较大的负焓, 形成的结合键刚性较强, 因而导致含Al难熔高熵合金表现出异常的力学行为[42]。

对于单相BCC结构的难熔高熵合金, 固溶强化被认为是其高温强度高的主要原因[16]。图6(b)展示了合金的 $\sigma_y^{1000^\circ\text{C}}$ 与代表固溶强化的原子半径差( $\delta r$ )之间的关系, 可以看出原子半径差较高的难熔高熵合金往往具有更高的高温强度。事实上, 为了更可靠地预测难熔高熵合金的高温强度, 还应考虑热激活[16]和刃型位错运动[19], 这可能解释图6(b)中的偏差现象。Sheikh等[18]研究指出降低难熔高熵合金的价电子浓度(VEC)有利于提高其室温韧性, 这与本研究制备的无铝高熵合金的性能规律一致。然而, 室温延展性与VEC的关系图[图6(c)]显示: 对于已报道及本研究设计的含铝高熵合金, VEC规律不再适用。Yang等[43]在典型AlCoCrFeNi合金体系中, 结合相图计算(CALPHAD)方法与高通量计算, 重新探讨了经验性的VEC概念。Senkov等[19]则对VEC规则进行了修正: 当高熵合金的抗压屈服强度 $\leq 1500$  MPa时, 其延展性可达到工程实用水平。然而, 这些提出的判据主要基于有限数据的统计分析, 存在一定局限性。因此, 本研究的实验结果表明, 尽管物理模型和价电子浓度规则, 可以用作单相难熔高熵合金强度和韧性优化的定性指标, 但仍无法满足广域空间中目标合金的精准、快速筛选, 本研究则提供了一个新的基于机器学习的有效途径。

#### 4.4. 元素对难熔高熵合金性能的影响

作为高温工程应用的潜力成分体系, ZrNbMoHfTa合金高温屈服强度和室温断裂应变随成分变化分布的伪三元图如图7所示。由图7(a)可知, 增加Mo含量可显著提升难熔高熵合金的高温强度, 这与之前对金属合金[44]和高熵合金[45–46]的研究一致。然而, 在Nb和Ta含量较低, 而Hf、Zr含量较高的成分区间内, Mo元素对高温强

度的改善是有限的。在给定的Mo含量下, 增加Nb和Ta可以提高合金高温强度, 且当Mo含量较高时, 这种提升效用更加显著。在高温强度优异的难熔高熵合金中, Mo元素含量为25% (原子分数), 而非峰值含量为35%, 这表明难熔高熵合金的高温强度并非由单一组元决定, 元素对性能的协同作用同样重要。

从图7(b)可知, 具有良好室温塑性的ZrNbMoHfTa合金的成分范围为: Mo含量通常不超过20% (原子分数), Hf、Zr元素总含量为35%–55%, Nb和Ta元素含量相似。已有研究表明, 通过合金化降低其价电子浓度可改善其室温韧性[18–19], 而添加Mo导致合金室温塑性降低, 可能是由于其较高的价电子浓度(5种组元中最高)。此外, 当Mo含量较高(原子分数约30%)时, Nb、Ta含量(20%–50%)增加, Hf、Zr含量(20%–50%)降低会显著降低ZrNbMoHfTa合金的室温塑性, 这也与前述价电子浓度规则相符。对于低Mo含量(小于20%)合金, 改变其他元素含量对合金室温韧性并无明显影响。我们还通过将图7(a)中的 $\sigma_y^{1000^\circ\text{C}}$ 与图7(b)中的 $\varepsilon_f^{\text{RT}}$ 相乘, 绘制了该体系合金在成分空间中的综合性能分布图, 见附录A中的图S8, 为RHEAs的MOO设计提供直观的评价指标。

进一步, 我们比较了多目标优化前后帕累托前沿合金的成分演变, 以便为难熔高熵合金设计提供更加直观的参考, 如图7(c)所示。结果表明, 对于 $\varepsilon_f^{\text{RT}}$ 超过50%的合金, 以Mo代Ti可以提升合金高温强度而不损失室温塑性, 如合金成分从P1 (ZrNbTiHfTa)演变为E4 (Zr<sub>0.1</sub>Nb<sub>0.21</sub>Ti<sub>0.18</sub>Hf<sub>0.21</sub>Ta<sub>0.2</sub>Mo<sub>0.1</sub>)、E5 (Zr<sub>0.23</sub>Nb<sub>0.23</sub>Mo<sub>0.11</sub>Hf<sub>0.23</sub>Ta<sub>0.2</sub>)和E24 (Zr<sub>0.24</sub>Nb<sub>0.29</sub>Mo<sub>0.09</sub>Hf<sub>0.2</sub>Ta<sub>0.18</sub>)。Al、V或Ti的添加对合金强度无明显影响, 如合金E1 (Ti<sub>0.26</sub>V<sub>0.23</sub>Zr<sub>0.25</sub>Nb<sub>0.26</sub>)和E16 (Al<sub>0.06</sub>Zr<sub>0.21</sub>Nb<sub>0.18</sub>Ti<sub>0.16</sub>Hf<sub>0.26</sub>Ta<sub>0.13</sub>)。此外, 含有Al、Cr或Nb的难熔高熵合金总是表现出较差的室温塑性, 如合金P7 (Al<sub>0.025</sub>Ti<sub>0.2</sub>V<sub>0.075</sub>Zr<sub>0.1</sub>Cr<sub>0.2</sub>Nb<sub>0.2</sub>Mo<sub>0.2</sub>)、E2 (Al<sub>0.23</sub>Ti<sub>0.18</sub>Zr<sub>0.12</sub>Cr<sub>0.13</sub>Nb<sub>0.19</sub>Mo<sub>0.15</sub>)、E8 (Al<sub>0.15</sub>Ti<sub>0.14</sub>Zr<sub>0.22</sub>Cr<sub>0.12</sub>Nb<sub>0.22</sub>Ta<sub>0.15</sub>)、E14

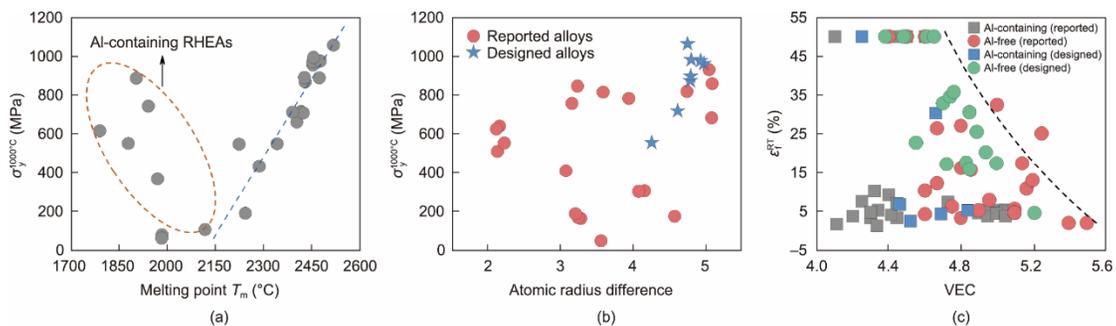


图6. 设计难熔高熵合金的强韧性分析。(a) 1000 °C屈服强度与合金熔点的关系; (b) 难熔高熵合金高温强度与基于原子半径差的固溶强化效应间的关系; (c) 难熔高熵合金的室温韧性与价电子浓度经验参数间的关系。

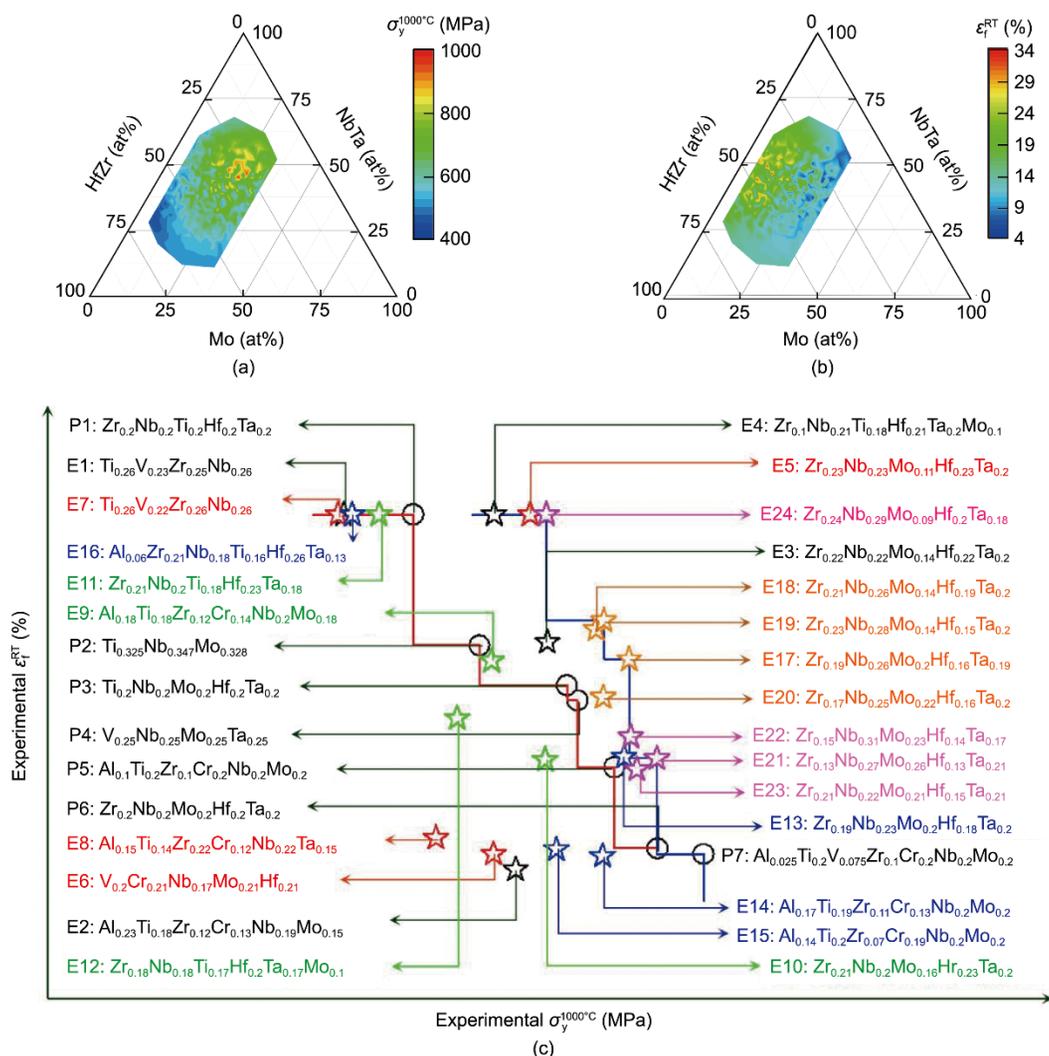


图7. 元素变化对难熔高熵合金性能的影响。ZrNbMoHfTa体系合金高温屈服强度 (a) 和室温断裂应变 (b) 随成分变化的伪三元图。(c) 多目标优化前后性能帕累托前沿合金的成分演变: 红线代表初始样本的性能帕累托前沿, 黑色圆圈代表非支配合金P1~P7, 蓝线代表优化合金的性能帕累托前沿, 非支配合金为E24、E19、E17和E21。所有设计难熔高熵合金均用星号表示, 从1次迭代到6次迭代的合金依次标记为黑色、红色、绿色、蓝色、棕色和粉色。

( $\text{Al}_{0.17}\text{Ti}_{0.19}\text{Zr}_{0.11}\text{Cr}_{0.13}\text{Nb}_{0.2}\text{Mo}_{0.2}$ ) 和 E15 ( $\text{Al}_{0.14}\text{Ti}_{0.2}\text{Zr}_{0.07}\text{Cr}_{0.19}\text{Nb}_{0.2}\text{Mo}_{0.2}$ ), 这可能是由于脆性金属间化合物的形成所致。上述结果表明, 我们的机器学习方法识别了各元素及其交互作用对难熔高熵合金高温强度和室温塑性的影响, 进而在迭代中不断向着多目标性能协同优化的方向, 修正元素类别及含量, 实现高效的难熔高熵合金的强韧性优化及成分设计。

## 5. 总结和展望

本研究提出了基于机器学习的复杂材料设计框架, 并证明了其在广域成分空间内加速难熔高熵合金强韧性协同优化的高效性。结合实验反馈迭代合成制备了24种新成分合金, 迭代后性能帕累托前沿显著前移, 表明高温强度

和室温塑性的协同改进。其中, 设计的4种合金展现出优异的强韧性匹配, 高温强度和室温断裂应变范围分别达到714~1061 MPa和17.2%~50.0%。此外, 应用机器学习框架方法, 我们搜索确定了一种极具难熔高熵合金潜力的成分体系ZrNbMoHfTa, 其中,  $\text{Zr}_{0.13}\text{Nb}_{0.27}\text{Mo}_{0.26}\text{Hf}_{0.13}\text{Ta}_{0.21}$ 合金在1200 °C下的屈服强度接近940 MPa, 室温断裂应变达17.2%, 优异的耐热性能和良好的结构稳定性表明, 该合金在极端温度下的结构应用中具有巨大的潜力。

我们证明了机器学习方法在解决复杂材料设计上的高效性, 设计框架中解决了几个需要克服的关键问题: 有效的数据样本、巨大的成分搜索空间和多性能协同优化的需求。我们提出的设计框架同样可应用于其他合金或材料体系, 如非晶合金、高温合金、形状记忆合金或铁电体等。需要说明的是, 在难熔高熵合金设计中, 除了高温强度和室温

韧性外，还需要考虑密度、抗氧化性和高温蠕变行为等其他特性。尽管难熔高熵合金的高温抗氧化性相比传统难熔金属合金具有优势，但仍远不如传统高温合金[47]。事实上，通过向难熔高熵合金中添加Al、Cr和Si等元素，可提高其高温氧化抗力。因此，面向实际高温结构材料的工程应用，有必要执行三个或更多目标性能的协同设计与优化。本研究中，我们使用聚类分析来确定实验候选合金，以便通过反馈更新帕累托前沿，但对于更多目标的优化，可能会导致实验次数及迭代次数显著增加，因此，更加高效的实验选择策略对降低实验和计算成本同样至关重要。

本研究中，我们仅使用成分为输入特征并定义搜索空间。实际上，基于元素成分及物理化学性质的特征构建与选择，能够进一步提升模型效能。但在本文的研究框架中，此操作可能面临遗传进化（如交叉和变异）后的特征无法与具体合金成分对应。即使如此，实际应用中研究人员仍可基于特征工程分析和领域知识，辅助缩小搜索空间，提升目标材料的研发效率。

此外，对于具有高维小数据样本和大成分空间的材料设计，有必要考虑输入特征变化带来的不确定性，不同数据源和数据缺失也会导致模型预测的不确定性。当前工作中，我们使用性能期望提升值作为指标来指导实验迭代的合金选择，实际上对于其他效能指标，如知识梯度、置信边界及帕累托前沿评价指标，均可结合具体材料设计问题去考虑，以提高多目标迭代优化的效率。数据噪声则是引起不确定性需要考虑的另一个问题。我们可借鉴图像数据增强方法的经验，通过向实验数据中引入噪声来生成更多伪样本，以缓解这一问题。

## 致谢

作者衷心感谢国家重点研发计划项目(2021YFB3802100)、国家自然科学基金项目(52203293)和核材料技术创新中心基金(ICNM-2022-ZH-02)的支持。

## Compliance with ethics guidelines

Cheng Wen, Yan Zhang, Changxin Wang, Haiyou Huang, Yuan Wu, Turab Lookman, and Yanjing Su declare that they have no conflict of interest or financial conflicts to disclose.

## Appendix A. Supplementary data

Supplementary data to this article can be found online at <https://doi.org/10.1016/j.eng.2023.11.026>.

## References

- [1] Senkov ON, Wilks GB, Miracle DB, Chuang CP, Liaw PK. Refractory high-entropy alloys. *Intermetallics* 2010;18(9):1758–65.
- [2] Chen J, Zhou XY, Wang W, Liu B, Lv Y, Yang W, et al. A review on fundamental of high entropy alloys with promising high-temperature properties. *J Alloys Compd* 2018;760:15–30.
- [3] Miracle DB, Tsai MH, Senkov ON, Soni V, Banerjee R. Refractory high entropy superalloys (RSAs). *Scr Mater* 2020;187:445–52.
- [4] Couzinié JP, Senkov ON, Miracle DB, Dirras G. Comprehensive data compilation on the mechanical properties of refractory high-entropy alloys. *Data Brief* 2018;21:1622–41.
- [5] Senkov ON, Miracle DB, Chaput KJ, Couzinié JP. Development and exploration of refractory high entropy alloys—a review. *J Mater Res* 2018;33(19):3092–128.
- [6] Senkov ON, Wilks GB, Scott JM, Miracle DB. Mechanical properties of Nb<sub>25</sub>Mo<sub>25</sub>Ta<sub>25</sub>W<sub>25</sub> and V<sub>20</sub>Nb<sub>20</sub>Mo<sub>20</sub>Ta<sub>20</sub>W<sub>20</sub> refractory high entropy alloys. *Intermetallics* 2011;19(5):698–706.
- [7] Senkov ON, Scott JM, Senkova SV, Meisenkothen F, Miracle DB, Woodward CF. Microstructure and elevated temperature properties of a refractory TaNbHfZrTi alloy. *J Mater Sci* 2012;47(9):4062–74.
- [8] Han ZD, Chen N, Zhao SF, Fan LW, Yang GN, Shao Y, et al. Effect of Ti additions on mechanical properties of NbMoTaW and VNbMoTaW refractory high entropy alloys. *Intermetallics* 2017;84:153–7.
- [9] Han ZD, Luan HW, Liu X, Chen N, Li XY, Shao Y, et al. Microstructures and mechanical properties of Ti<sub>x</sub>NbMoTaW refractory high-entropy alloys. *Mater Sci Eng A* 2018;712:380–5.
- [10] Juan CC, Tsai MH, Tsai CW, Lin CM, Wang WR, Yang CC, et al. Enhanced mechanical properties of HfMoTaTiZr and HfMoNbTaTiZr refractory high-entropy alloys. *Intermetallics* 2015;62:76–83.
- [11] Lin CM, Juan CC, Chang CH, Tsai CW, Yeh JW. Effect of Al addition on mechanical properties and microstructure of refractory Al<sub>x</sub>HfNbTaTiZr alloys. *J Alloys Compd* 2015;624:100–7.
- [12] Juan CC, Tseng KK, Hsu WL, Tsai MH, Tsai CW, Lin CM, et al. Solution strengthening of ductile refractory HfMo<sub>x</sub>NbTaTiZr high-entropy alloys. *Mater Lett* 2016;175:284–7.
- [13] Yang X, Zhang Y, Liaw PK. Microstructure and compressive properties of NbTiVTaAl<sub>x</sub> high entropy alloys. *Procedia Eng* 2012;36:292–8.
- [14] Wang M, Ma ZL, Xu ZQ, Cheng XW. Designing V<sub>x</sub>NbMoTa refractory high-entropy alloys with improved properties for high-temperature applications. *Scr Mater* 2021;191:131–6.
- [15] Wen XC, Wu Y, Huang HL, Jiang S, Wang H, Liu X, et al. Effects of Nb on deformation-induced transformation and mechanical properties of HfNb<sub>x</sub>Ta<sub>0.2</sub>TiZr high entropy alloys. *Mater Sci Eng A* 2021;805:140798.
- [16] Maresca F, Curtin FWA. Mechanistic origin of high strength in refractory BCC high entropy alloys up to 1900 K. *Acta Mater* 2020;182:235–49.
- [17] Lee C, Maresca F, Feng R, Chou Y, Ungar T, Widom M, et al. Strength can be controlled by edge dislocations in refractory high-entropy alloys. *Nat Commun* 2021;12(1):5474.
- [18] Sheikh S, Shafeie S, Hu Q, Ahlström J, Persson C, Vesely J, et al. Alloy design for intrinsically ductile refractory high-entropy alloys. *J Appl Phys* 2016;120(16):164902.
- [19] Senkov ON, Miracle DB, Rao SI. Correlations to improve room temperature ductility of refractory complex concentrated alloys. *Mater Sci Eng A* 2021;820:141512.
- [20] Lookman T, Balachandran PV, Xue D, Yuan R. Active learning in materials science with emphasis on adaptive sampling using uncertainties for targeted design. *npj Comput Mater* 2019;5:21.
- [21] Xie J, Su Y, Xue D, Jiang X, Fu H, Huang H. Machine learning for materials research and development. *Acta Metall Sin* 2021;57(11):1343–61. Chinese.
- [22] Wen C, Wang CX, Zhang Y, Antonov S, Xue D, Lookman T, et al. Modeling solid solution strengthening in high entropy alloys using machine learning. *Acta Mater* 2021;212:116917.

- [23] Xue DZ, Balachandran PV, Hogden J, Theiler J, Xue D, Lookman T. Accelerated search for materials with targeted properties by adaptive design. *Nat Commun* 2016;7(1):11241.
- [24] Wen C, Zhang Y, Wang C, Xue D, Bai Y, Antonov S, et al. Machine learning assisted design of high entropy alloys with desired property. *Acta Mater* 2019; 170:109–17.
- [25] Ren F, Ward L, Williams T, Laws KJ, Wolverton C, Hatrick-Simpers J, et al. Accelerated discovery of metallic glasses through iteration of machine learning and high-throughput experiments. *Sci Adv* 2018;4(4):eaq1566.
- [26] Zhang HT, Fu HD, He XQ, Wang C, Jiang L, Chen LQ, et al. Dramatically enhanced combination of ultimate tensile strength and electric conductivity of alloys via machine learning screening. *Acta Mater* 2020;200: 803–10.
- [27] Balachandran PV, Kowalski B, Sehirlioglu A, Lookman T. Experimental search for high-temperature ferroelectric perovskites guided by two-step machine learning. *Nat Commun* 2018;9(1):1668.
- [28] Yu JX, Wang CL, Chen YC, Wang C, Liu X. Accelerated design of  $L_{12}$ -strengthened Co-base superalloys based on machine learning of experimental data. *Mater Des* 2020;195:108996.
- [29] Liu P, Huang H, Antonov S, Wen C, Xue D, Chen H, et al. Machine learning assisted design of  $\gamma'$ -strengthened Co-base superalloys with multi- performance optimization. *npj Comput Mater* 2020;6:62.
- [30] Gopakumar AM, Balachandran PV, Xue DZ, Gubernatis JE, Lookman T. Multi-objective optimization for materials discovery via adaptive design. *Sci Rep* 2018;8(1):3738.
- [31] Guo T, Wu L, Li T. Machine learning accelerated, high throughput, multi-objective optimization of multiprincipal element alloys. *Small* 2021;17 (42):2102972.
- [32] Khatamsaz D, Vela B, Singh P, Johnson DD, Allaire D, Arróyave R. Multi-objective materials Bayesian optimization with active learning of design constraints: design of ductile refractory multi-principal-element alloys. *Acta Mater* 2022;236:118133.
- [33] Jeong S, Minemura Y, Obayashi S. Optimization of combustion chamber for diesel engine using Kriging model. *J Fluid Sci Technol* 2006;1(2):138–46.
- [34] Shimoyama K, Yoshimizu S, Jeong S, Obayashi S, Yokono Y. Multi-objective design optimization for a steam turbine stator blade using LES and GA. *J Comput Sci Technol* 2011;5(3):134–47.
- [35] Tian Y, Yuan RH, Xue DZ, Zhou Y, Ding X, Sun J, et al. Role of uncertainty estimation in accelerating materials development via active learning. *J Appl Phys* 2020;128(1):014103.
- [36] Zhang Y, Wen C, Wang CX, Antonov S, Xue D, Bai Y, et al. Phase prediction in high entropy alloys with a rational selection of materials descriptors and machine learning models. *Acta Mater* 2020;185:528–39.
- [37] Menou E, Ramstein G, Bertrand E, Tancret F. Multi-objective constrained design of nickel-base superalloys using data mining- and thermodynamics-driven genetic algorithms. *Model Simul Mater Sci Eng* 2016;24(5):055001.
- [38] Deb K, Pratap A, Agarwal S, Meyarivan T. A fast and elitist multiobjective genetic algorithm: NSGA-II. *IEEE Trans Evol Comput* 2002;6(2):182–97.
- [39] Tzortzis G, Likas A. The MinMax K-means clustering algorithm. *Pattern Recognit* 2014;47(7):2505–16.
- [40] Senkov ON, Gorsse S, Miracle DB. High temperature strength of refractory complex concentrated alloys. *Acta Mater* 2019;175:394–405.
- [41] Steingrímsson B, Fan X, Yang X, Gao MC, Zhang Y, Liaw PK. Predicting temperature-dependent ultimate strengths of body-centered-cubic (BCC) high-entropy alloys. *npj Comput Mater* 2021;7:152.
- [42] Courty FG, Kaufman M, Clarke AJ. Solid-solution strengthening in refractory high entropy alloys. *Acta Mater* 2019;175:66–81.
- [43] Yang S, Lu J, Xing F, Zhang L, Zhong Y. Revisit the VEC rule in high entropy alloys (HEAs) with high-throughput CALPHAD approach and its applications for material design—a case study with Al-Co-Cr-Fe-Ni system. *Acta Mater* 2020;192:11–9.
- [44] Perepezko JH. The hotter the engine, the better. *Science* 2009; 326 (5956): 1068–9.
- [45] Tseng KK, Juan CC, Tso S, Chen HC, Tsai CW, Yeh JW. of MoEffects, Nb, Ta, Ti, and Zr on mechanical properties of equiatomic Hf-Mo-Nb-Ta-Ti-Zr alloys. *Entropy* 2018;21(1):15.
- [46] Singh P, Sharma A, Smirnov AV, Diallo MS, Ray PK, Balasubramanian G, et al. Design of high-strength refractory complex solid-solution alloys. *npj Comput Mater* 2018;4:16.
- [47] Gorr B, Schellert S, Müller F, Christ HJ, Kauffmann A, Heilmaier M. Current status of research on the oxidation behavior of refractory high entropy alloys. *Adv Eng Mater* 2021;23(5):2001047.