



# 基于 Bayesian 采样主动机器学习模型的 6061 铝合金成分精细优化

赵婉辰<sup>1</sup> 郑晨<sup>1</sup> 肖斌<sup>1</sup> 刘行<sup>2</sup> 刘璐<sup>1</sup> 余童昕<sup>1</sup> 刘艳洁<sup>1</sup>  
董自强<sup>1</sup> 刘轶<sup>1</sup> 周策<sup>3</sup> 吴洪盛<sup>3</sup> 路宝坤<sup>3</sup>

1 上海大学 材料基因组工程研究院 上海 200444

2 上海大学 钱伟长学院 上海 200444

3 福建省南平铝业股份有限公司 南平 353099

**摘要** 结合高通量材料制备实验与基于 Bayesian 优化采样策略的主动学习方法,开发了有效的机器学习模型来描述合金元素组成与硬度之间的关系,并分析关键微量元素含量对硬度的影响。研究发现,经过3轮迭代64个铝合金样品建模后,Bayesian 取样策略方法的预测硬度误差为4.49 HV (7.23%),远低于应用人工经验采样法的机器学习模型误差9.73 HV (15.68%),且当铝合金中的Mg和Si比值Mg/Si在1.37~1.72时,具有较高的合金硬度。通过在6061铝合金标准名义成分范围内进行成分精细优化以及性能调控,为工业上提高产品质量提供了可实现的策略。

**关键词** 机器学习, Bayesian 优化, 高通量实验, 6061 铝合金, 成分精细优化

中图分类号 TG146.2

文章编号 0412-1961(2021)06-0797-14

## Composition Refinement of 6061 Aluminum Alloy Using Active Machine Learning Model Based on Bayesian Optimization Sampling

ZHAO Wanchen<sup>1</sup>, ZHENG Chen<sup>1</sup>, XIAO Bin<sup>1</sup>, LIU Xing<sup>2</sup>, LIU Lu<sup>1</sup>, YU Tongxin<sup>1</sup>, LIU Yanjie<sup>1</sup>,  
DONG Ziqiang<sup>1</sup>, LIU Yi<sup>1</sup>, ZHOU Ce<sup>3</sup>, WU Hongsheng<sup>3</sup>, LU Baokun<sup>3</sup>

*1 Materials Genome Institute, Shanghai University, Shanghai 200444, China*

*2 Qianweichang College, Shanghai University, Shanghai 200444, China*

*3 Nanping Aluminum Corporation, Nanping 353099, China*

Correspondent: LIU Yi, professor, Tel: 18616846006, E-mail: yiliu@shu.edu.cn

Supported by National Key Research and Development Program of China (Nos. 2017YFB0702901 and 2017YFB-0701502)

Manuscript received 2020-08-13, in revised form 2020-10-08

**ABSTRACT** Within the China standard (6061 GB/T 3190-2008) of the aluminum alloy 6061, there are a wide range of alloy compositions having multiple trace elements. From the viewpoint of scientific research and quality control in industries, it is important to understand the relationship between the different potential compositions and corresponding mechanical properties of the aluminum alloy 6061. In this work, high-throughput experiments on materials synthesis and an active-learning framework based on the Bayesian optimization sampling process were combined to develop effective machine learning (ML)

资助项目 国家重点研发计划项目 Nos. 2017YFB0702901 和 2017YFB0701502

收稿日期 2020-08-13 定稿日期 2020-10-08

作者简介 赵婉辰,女,1996年生,硕士生

通讯作者 刘轶, yiliu@shu.edu.cn, 主要从事高性能合金的高通量实验、机器学习和计算模拟研究

DOI 10.11900/0412.1961.2020.00298

(C)1994-2021 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. <http://www.cnki.net>

models to describe the relationship between the composition and hardness of aluminum 6061 alloys. In this work, > 100 alloys with ML designed compositions were synthesized and their hardness data were obtained through high-throughput experiments. The composite ML features were introduced by combining elementary material properties and chemical compositions of alloys and were selected subsequently according to their importance and correlation among features. The efficiencies of two sampling strategies were compared in guiding the iterative experiments: manual sampling based on empirical experience and Bayesian optimization sampling trained within the active-learning framework using the efficient global optimization and knowledge gradient algorithms. These ML models were updated iteratively until the prediction accuracy approached the experimental error. Specifically, the error in the hardness values predicted by the Bayesian model using 64 aluminum alloy samples after three rounds of iterations was 4.49 HV (7.23%), which is much lower than the error predicted by the empirical sampling method (9.73 HV; 15.68%). The results show that Bayesian optimization sampling accelerates the optimization of alloys property more efficiently than manual empirical sampling. Finally, the machine learning models using Bayesian sampling were interpreted using the Shapley additive explanations method and analysis of the partial dependence plot discuss the effects of various trace alloying elements and composite ML features on the hardness of the aluminum alloys. It was found that the hardness value of the aluminum alloys became large when the ratio between Mg and Si (Mg/Si) was between 1.37 and 1.72. In addition, the machine learning models suggested that the lattice distortion, cohesive energy, configurational entropy, and shear modulus were positively proportional to the hardness of the alloy. This work demonstrated that active-learning-guided high-throughput experiments on composition refinement can not only improve the performance and quality control of aluminum 6061 alloys within its standard nominal composition range as used in industry but also provide a feasible approach for the design and property optimization of other multialloy materials.

**KEY WORDS** machine learning, Bayesian optimization, high-throughput experiment, 6061 aluminum alloy, composition refinement

6061 铝合金具有强度高、塑性好、可焊性及耐腐蚀性能优异的特点,在航天固定装置、轨道运输、电器装置、通讯设备和精密加工等领域有着广泛的应用<sup>[1]</sup>。6061 铝合金包含 Mg、Si、Mn、Fe 等 9 种合金成分,其细微的成分变化可对其力学性能产生显著影响。在铝合金生产实践中,利用真空熔炼和电磁搅拌技术能够将元素含量控制在比国标名义成分更精细的成分范围内。通过改变合金成分,优化微观组织,可以进一步提高材料的力学性能,扩展材料的工业应用范围。有效的合金成分设计方法可以低成本加速合金的性能优化,减少耗时费力的盲目试错。多元合金的成分组合复杂,合金成分的理性设计在理论上极具挑战。在标准合金名义成分范围内进行成分精细优化,可实现性能精准调控,深入挖掘材料潜在性能,提高产品稳定性,具有重要的科学意义和应用价值。

传统的材料设计主要基于经验知识与实验试错法<sup>[2]</sup>。以 6061 铝合金为例,已有研究表明合金中的 Mg 与 Si 在熔炼过程中形成 Mg<sub>2</sub>Si 共晶组织,可以显著提高合金强度<sup>[3-5]</sup>; Mn 与 Cr 可以中和 Fe 的副作用<sup>[6,7]</sup>; 少量 Cu 和 Zn 可以提高硬度<sup>[8]</sup>; Ti 能控制细化晶粒,防止再结晶晶粒长大<sup>[9]</sup>。但像 6061 铝合金这

样组成成分极其复杂,具有巨大的未知成分组合空间,基于传统认知还很难理解其精准性能调控规律,这使得新材料的研发及性能优化周期变得十分漫长<sup>[10-12]</sup>。因此除了传统的定性认识,还需要量化或半量化地描述模型指导实验设计<sup>[13]</sup>。

随着材料基因组计划的提出,高通量实验与计算模拟、机器学习结合的主动学习框架被广泛应用于新材料设计研发<sup>[14-16]</sup>。其中高通量材料制备和表征方法具有自动化、多工位、并发式的特点,能够实现大批量样品的快速合成和结构性能表征,从而可以低成本加速整个材料研发流程,成为快速高效获取高质量实验数据的重要手段<sup>[17]</sup>。利用统计模型<sup>[18-20]</sup>和机器学习手段<sup>[21-25]</sup>,尤其是基于飞跃性发展的深度神经网络方法<sup>[26-28]</sup>的数据驱动研究能够依据已有实验数据,快速建立材料成分、结构与性能之间的量化关系模型从而加速设计预测新材料<sup>[29]</sup>。当实验数据不充足时,经验采样、综合过采样和贪婪采样等统计经验采样方法及粒子群算法、遗传算法和 Bayesian 优化算法等自适应采样策略能够在未知组成空间中选取包含丰富信息量的高质量实验点填充数据集,减少实验次数,提高模型的预测能力<sup>[30-33]</sup>。近年来,机器学习模型的解释工具不断更新,使得材

料性能预测模型中各输入特征的贡献程度可视化,能够量化地解释成分、结构与材料性能之间的关系,从而加速指导目标性能材料的优化设计<sup>[34,35]</sup>。

基于此思想,本工作应用主动学习与模型解释相结合的材料优化设计框架,进一步实现了国家标准范围内 6061 铝合金微量元素成分的定量调控与精细优化。最终 Bayesian 优化采样数据填充的机器学习模型预测误差为 4.49 HV (6.12%),接近测试样品实验误差 4.05 HV。该成分-硬度机器学习模型能够提供优化 6061 铝合金成分配比。此外,结合 Shapley 解释法(Shapley additive explanations,简称 SHAP)及部分关系依赖图(partial dependence plot,简称 PDP)分析等模型解释策略分析可得 6061 铝合金成分与硬度间的定量关系及组合影响<sup>[36]</sup>,为企业生产工艺流程的“窄窗口”设计提供指导建议。同时,该材料优化设计框架也可为其他多元合金材料设计及性能优化提供可行的解决方案。

## 1 实验方法

本工作中的主动学习与模型解释相结合的材料优化设计框架如图 1 所示。采用高通量实验获得硬度数据作为初始训练集,并引入具有物理意义的复合性质,对其进行重要性及相关性检验,选取可以提高模型效果的性质与成分一同作为输入特征,建立机器学习模型。每轮依据差异性准则(diversity)和不确定性准则(uncertainty),采用人工经验统计采样及 Bayesian 优化采样策略,选取数据点进行高通量实验,迭代更新机器学习模型,直至模型精度满足评估标准后,对最终的预测模型进行解释分析。

### 1.1 高通量实验方法

本工作采用全流程高通量合金制备和表征系

统,批量制备 6061 铝合金国标成分范围内系列铝合金样品。首先通过配粉、混合和压制过程,将高纯金属粉(99.99%)按预设的合金成分制备成圆柱块体,然后在 Ar 气保护气氛下使用 EQ-SP-MAM-32TA 高通量电弧熔炼系统制备铝合金样品。高通量电弧熔炼系统一次流程可自动炼制最多 32 个不同成分配比的样品。为改善样品成分均匀性,每个样品反复熔炼 5 次。合金样品镶嵌在树脂中进行磨抛。最后使用 MH-5L 自动显微 Vickers 硬度计测试不同成分样品的 Vickers 显微硬度,检测力为 0.98 N,保载时间为 5 s。对每个样品不同区域测试 10 个点,计算平均硬度和标准均方根误差作为后续统计分析的原始数据。

### 1.2 数据集构建

为了保证初始输入训练集在全局名义成分范围内的分散性和代表性,首批合金成分设计在  $Mg_aCu_bMn_cCr_dZn_eTi_fFe_gSi_hAl_{(1-a-b-c-d-e-f-g-h)}$  (质量分数,%)铝合金中各合金元素的国家标准范围(Si 0.4~0.8,  $Fe \leq 0.7$ , Cu 0.15~0.4,  $Mn \leq 0.15$ , Mg 0.8~1.2, Cr 0.04~0.35,  $Zn \leq 0.25$ ,  $Ti \leq 0.15$ , Al 余量。质量分数,%)内采取正交设计策略,选择 32 个铝合金成分配比,对其进行熔炼制备及显微硬度测量,每个样品的 10 次平均硬度测量值作为初始训练数据的输出标签  $Y$  (labeled), 10 次显微硬度测量值的均方根误差作为该样品的实验测量本征误差  $err$ 。本工作还将实验本征误差作为特征加入到机器学习建模训练中,考察将不确定性作为修正特征项引入建模对预测精度的影响。

如果对 6061 铝合金国家标准名义成分范围区间内各微量元素进行 0.1% (质量分数)等间隔划分并排列组合,理论上可产生 33600 个符合国家标准

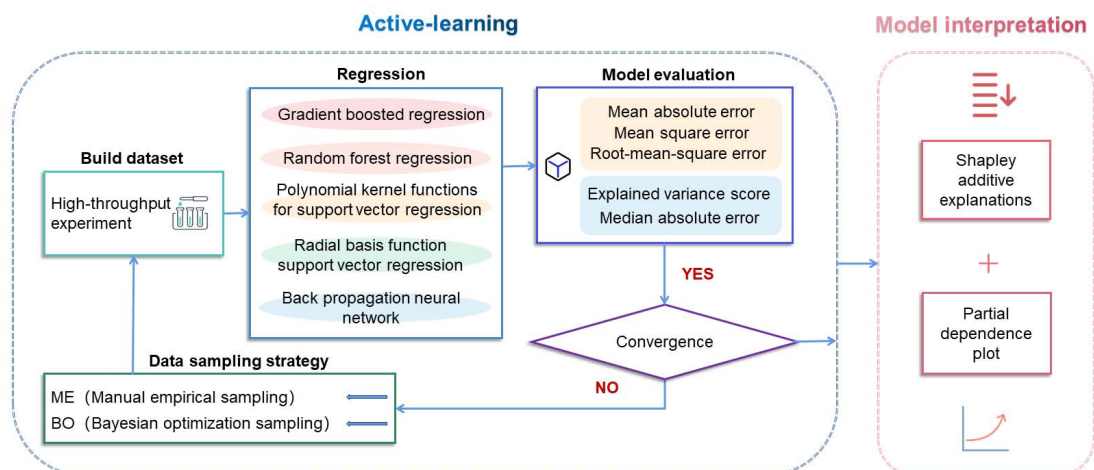


图 1 主动学习合金设计框架

Fig.1 Active-learning framework of alloy design



合金组分的铝合金成分分配比,这些潜在合金成分的合金硬度未知,作为本工作中搜索采样的无标签未知成分空间(unlabeled)。

### 1.3 特征空间构建

根据文献调研及经验总结,单纯使用化学成分分配比信息作为机器学习模型的输入特征效果是不理想的。通过在基础性质上结合成分信息构建复合性质特征,可以提高机器学习模型拟合精度。因此,本工作除使用9种化学成分特征外,以XenonPy材料信息API作为材料数据库的接口<sup>[37]</sup>,通过elements\_completed命令获取94个元素(从H到Pu)的58个基础性质,计算获得290个以化学成分摩尔比为权重复合性质。并与从文献中收集得到的19个基于合金专业知识构建的复合性质一同作为机器学习初始性质特征。在特征选择阶段,利用过滤法(filter)、嵌入法(embedding)和包裹法(wrapper)3类特征选择方法对初始性质特征空间进行筛选降维,确定最终与目标性质独立相关的重要性质特征子集。

### 1.4 机器学习算法及其模型评价函数

铝合金“成分-硬度”映射关系属于非线性相关的复杂问题。本研究在模型方法测试阶段选取5种经典的适用于非线性回归问题的机器学习算法进行性能评估。① 梯度提升回归(gradient boosted regression,简称gbr):应用Boosting集成算法进行非线性拟合;② 随机森林回归(random forest regression,简称rfr):基于决策树的改进Bagging回归;③ 具有多项式核函数的支持向量回归(polynomial kernel functions for support vector regression,简称svr.poly):通过添加多项式项使数据线性可分;④ 具有径向基核函数的支持向量回归(radial basis function support vector regression,简称svr.rbf):应用类Gaussian函数依靠升维实现非线性映射;⑤ 反向传播神经网络(back propagation neural network,简称bpnn):使用误差信号回传算法的多层感知机。以上机器学习算法中均采用网格搜索及学习曲线评价的方式选取确定最优超参数。

本工作引入5种回归模型评价函数评估机器学习模型的预测准确性及泛化能力,包括用平均绝对误差(mean absolute error,简称MAE)、均方误差(mean square error,简称MSE)和均方根误差(root mean square error,简称RMSE)作为误差统计量评估模型损失,可释方差得分(explained variance score,简称EVS)和中值绝对误差(median absolute error,简称MedAE)评估模型预测能力。EVS结合MedAE可以在解释变异与衡量模型信息捕捉能力的同时减弱

实验值中存在误差异常值的影响。5个评价函数的计算分别由式(1)~(5)给出:

$$\text{MSE}(y, \hat{y}) = \frac{1}{m} \sum_{i=1}^m (y_i - \hat{y}_i)^2 \quad (1)$$

$$\text{MAE}(y, \hat{y}) = \frac{1}{m} \sum_{i=1}^m |y_i - \hat{y}_i| \quad (2)$$

$$\text{RMSE}(y, \hat{y}) = \sqrt{\frac{1}{m} \sum_{i=1}^m (y_i - \hat{y}_i)^2} \quad (3)$$

$$\text{EVS}(y, \hat{y}) = 1 - \frac{\sum_{i=1}^m ((y_i - \hat{y}_i) - E(y_i - \hat{y}_i))^2}{\sum_{i=1}^m (y_i - \bar{y})^2} \quad (4)$$

$$\text{MedAE}(y, \hat{y}) = \text{median}(|y_1 - \hat{y}_1| \cdots |y_m - \hat{y}_m|) \quad (5)$$

式中, $y$ 为实验硬度; $\hat{y}$ 为预测硬度; $\bar{y}$ 为实验硬度均值; $i$ 为参与评估的样本数量, $i = 1, 2, \dots, m$ ;  $E$ 为期望值。

### 1.5 数据采样策略

首先采用Bootstrap方法(如图2所示)对32个正交设计的初始数据进行有放回的随机抽样,产生1000个含有32个样品的训练数据集,训练获得1000个对应的机器学习模型( $M_1, M_2, \dots, M_{1000}$ )。利用以上模型对铝合金潜在成分空间中的33600个成分分配比分别进行硬度预测。假定1000次预测值服从Gaussian分布,由式(6)可求得所有预测硬度的期望值 $\mu$ ,作为评估所用的预测硬度,并计算其标准方差 $\sigma$ ,作为模型对该合金成分预测的误差或不确定度。

$$\begin{cases} \mu = \frac{1}{1000} \sum_{i=1}^{1000} p_i \\ \sigma = \sqrt{\sum_{i=1}^{1000} (p_i - \mu)^2} \end{cases} \quad (6)$$

式中, $p_i$ 为1000次取样建模中,模型 $M_i$ 对未知空间的预测值。

材料性能测试通常昂贵耗时,这使得高质量材料性能数据较少。针对材料科学中常见的小数据集问题,数据采样策略对提高机器学习模型预测精度至关重要。本工作采取下面2种数据采样策略选取下一步的实验合金成分,以期用较少的实验数据获得更准确的预测模型,使得成分设计迭代过程尽快收敛,达到加速材料成分设计流程的目的。

(1) 人工经验采样(manual empirical sampling,简称ME):传统机器学习指导实验中专家利用专业知识和传统经验对数据样本进行人工标记。每轮实验迭代优化根据机器学习模型预测结果及标记样本的数据结构特点,针对硬度分布不均的特点,在数据分布较少的区域内人工选取16个可能有价

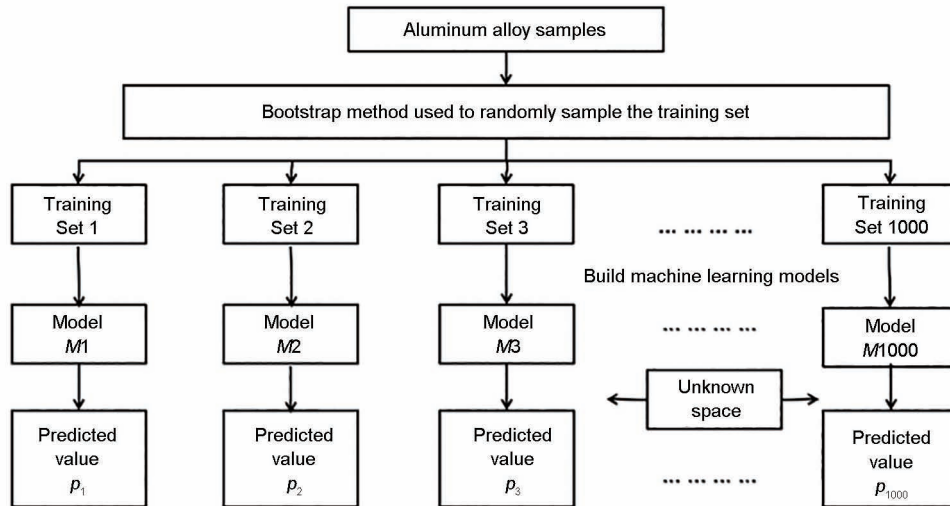


图2 Bootstrap 随机抽样建模法

Fig.2 Bootstrap random sampling modeling method

值的采样点。观察发现初始样本中高硬度区间(硬度 > 70 HV)数据稀缺,约占所有数据的 1/3。故前几轮人工经验取样偏向在高硬度预测区域,结合已有微量元素作用专业知识,选取一定量成分配比差异化的样本来填补数据集,这样可以有效避免数据重采样,使得数据点在各硬度区间的数量分布尽量均匀,提高对高硬度值预测的可信度。

(2) Bayesian 优化采样 (Bayesian optimization sampling, 简称 BO): 基于 Bayesian 优化算法对数据样本进行自动标记。Bayesian 优化算法是利用先验知识逼近未知目标函数的后验分布,自动采样策略基本思想是平衡“探索”(exploration)和“开发”(exploitation)的需求。“开发”意味着倾向于高均值,根据后验分布,在最可能出现最优解,即高硬度对应的区域进行采样。“探索”意味着倾向于高方差,模型稳定性不佳,不确定性和误差大时,通常是在取样密度小的区域获取采样点以提高模型的预测精度,减少预测值的波动。在实验迭代优化过程初期数据不完备时,首先倾向“探索”策略,重点是完善模型预测精度。随着数据逐渐增多,模型预测精度提高,逐渐转向“开发”策略,重点是寻找最优的目标值。

Bayesian 优化包括 2 个核心过程,均需选用先验函数(prior function, 简称 PF)与采集函数(acquisition function, 简称 AC)。常见的采集函数包括上置信界(upper confidence bound, 简称 UCB)、改善概率(probability of improvement, 简称 PI)和预期改善(expected improvement, 简称 EI)。本工作选用 EI 方法作为采集函数,假定目标函数模型  $f(x)$  服从 Gaussian 过程,在第  $t$  轮迭代中,样本点  $D\{(x_{1,t}, y_{1,t}), \dots, (x_{t,t}, y_{t,t})\}$  对于  $f(x)$  进行估计和更新,更新后  $f$  的后验概率分布  $P(f | D_t)$

$x_{t+1}) \sim \mathcal{N}(\mu, \sigma^2)$ , 采集函数  $E(I)$  可定义如下:

$$\begin{cases} E(I) = \sigma' [\psi(z) + z\Phi(z)] \\ z = (f_{\text{best}} - \mu) / \sigma' \end{cases} \quad (7)$$

式中,  $\psi(z)$  为概率密度函数,  $\Phi(z)$  为累计分布函数,  $\sigma' = \sigma - \text{err}$ 。  $f_{\text{best}}$  为预期改善最佳采样位置,当  $f_{\text{best}} = y_{\text{max}}$  ( $y_{\text{max}}$  为实验硬度最大值)时,采样策略被称作高效全局优化(efficient global optimization, 简称 EGO); 当  $f_{\text{best}} = \mu_{\text{max}}$  ( $\mu_{\text{max}}$  为预测硬度最大值)时,采样策略称作知识梯度(knowledge gradient, 简称 KG)。由于在  $\sigma' \rightarrow \infty$  时,  $E(I) \rightarrow \sigma'$ ;  $\sigma' \rightarrow 0$  时  $E(I) \rightarrow (f_{\text{best}} - \mu)$ , 故当模型不确定度偏大时,采集函数偏向于选取减小模型不确定度的数据点,即“探索”;当模型不确定度偏小时,采集函数偏向于选取高硬度区域的数据点,即“开发”。因而 Bayesian 优化采样策略根据预测分布及模型不确定性,合理地平衡“探索”和“开发”2 方面的需求,以少量的采样数据点提供更多样化的信息,以构建更准确的映射关系模型。

本工作中的 BO 采样策略具体采用 EGO 算法、KG 算法、最大硬度布点法和最大误差布点法 4 种方法,每种方法各取 4 个数据点,每步设计一共 16 个实验合金成分进行下一轮实验。

### 1.6 模型解释策略

建立“黑盒子”暗箱预测模型通常不能够帮助深入了解模型决策以及各合金元素作用机制。为建立 6061 铝合金的成分精细优化设计准则,需要发展模型解释策略。模型解释不仅可以确认模型的信任度,还可以阐明数据内在规律、指导新数据采集以及总结新的专业知识规律。本工作中应用 SHAP 法探究特征在给定范围内对目标变量的相对影响及重要

性程度分析,并应用PDP探究特征对目标变量均值及其变化范围的绝对影响。

**1.6.1 SHAP** Shapley值常被用来解释机器学习的预测,其中“总支出”就是数据集单个实例的模型预测值,“玩家”是实例的特征值,“收益”是该实例的实际预测目标值减去所有实例的平均预测值。SHAP方法由下式定义<sup>[38]</sup>:

$$\begin{cases} \phi_i(\text{val}) = \sum_{S \subseteq \{x_1, \dots, x_p\} \setminus \{x_i\}} |S| (p - |S| - 1)! \cdot \\ \quad p! (\text{val}(S \cup \{x_i\}) - \text{val}(S)) \\ \text{val}_x(S) = \int \hat{f}(X) d\mathbf{P}_{x \notin S} - E_X(\hat{f}(X)) \end{cases} \quad (8)$$

式中, $\hat{f}$ 为机器学习模型,特征空间集合(全集) $X = \{x_1, \dots, x_p\}$ ,第*i*个特征对模型输出的贡献为 $\phi_i(\text{val})$ , $S$ 为模型中使用的特征的子集, $x_i$ 为待解释实例的特征值的向量, $p$ 为特征个数, $\mathbf{P}$ 为幂集。 $\text{val}_x(S)$ 是对集合 $S$ 中特征值的预测。其中被边缘化的特征没有包含在集合 $S$ 中。 $E_X(\hat{f}(X))$ 为特征的平均效果估计。当 $\phi_i(\text{val}) > 0$ ,说明该特征值对目标预测均值起正向提升作用,反之降低。

**1.6.2 PDP** PDP是一个直观的全局解释分析图。PDP分析描述机器学习模型中1个或2个特征的边际效应,适用于探索某个特征 $x$ 与目标变量 $y$ 的直接关系。由PDP可以判断 $x$ 与 $y$ 之间的关系是线性、单调还是更复杂的非线性关系。PDP通过式(9)进行连续分布边际概率的求解,利用Monte Carlo方法在训练集上获得估计值,考察特征对预测值的影响。通常特征值集合只包含1个或2个特征,产生2D或3D的部分关系依赖图。

$$\begin{aligned} \hat{f}_{xs}(xs) &= E_{xc}[\hat{f}(xs, xc)] = \int \hat{f}(xs, xc) d\mathbf{P}(xc) = \\ & \frac{1}{p} \sum_{i=1}^p \hat{f}(xs, xc_i) \end{aligned} \quad (9)$$

PDP的计算假设所有的特征两两不相关, $xs$ 为PDP所需要绘制的特征, $xc$ 为模型中使用的其他特征。

## 2 实验结果

### 2.1 特征选择结果

特征工程中的特征选择对机器学习模型的预测精度具有重要影响。选取合适的特征不仅可以减少预测过拟合、提高信噪比、防止维度灾难、提高预测泛化能力,还可以使模型获得更好的可解释性。本工作首先选用过滤法(filter)按照发散性的统计检验及相关性指标来选择特征。由于低方差的特征预测

效果往往不好,计算并移除309个初始性质特征中所有具有零方差的特征,剩余185个特征。将32个正交设计的铝合金样品从上到下按硬度递增顺序,排列并绘制相对于185个特征的硬度相关性热图,其中部分描述符的色阶没有特定的规律模式,与硬度测量值之间相互独立,相关性较弱,无法提供有效的信息共享。为进一步进行特征选择,使用互信息法捕获特征与硬度间的线性与非线性关系,通过式(10)计算并筛选去除最大互信息系数(maximal information coefficient,简称MIC)为零的与硬度不相关的特征,剩余83个特征。

$$\text{MIC}: I(X; Y) = \iint p(x, y) \lg \left( \frac{p(x, y)}{p(x)p(y)} \right) dx dy \quad (10)$$

式中, $p(x)$ 为 $x$ 的概率, $p(y)$ 为 $y$ 的概率, $p(x, y)$ 为 $x, y$ 的联合分布概率。

然后进一步根据权值系数对83个特征采用嵌入法(embedding)进行筛选,通过模型给出的特征优劣性评分,保留其中高于平均权重( $1/83 = 0.12$ )的22个重要特征(表1)。

由于剩余22个重要特征之间可能存在高度线性相关:在其中1个特征提供了足够的信息之后,与之高度相关的其他特征往往无法提供额外的信息。为防止预测模型的性能受到“多重共线性”问题的影响,计算Pearson相关系数矩阵对其进行相关性筛选,结果如图3所示。相关系数在 $\pm 0.9$ 以上的特征被归成同类,共划分为5组。对每组特征进行Xgboost模型特征重要性评分获得每组中评分最高的特征(分别为F\_1、F\_5、F\_16、F\_17、F\_18)。并与其他9个独立不相关特征(F\_6、F\_7、F\_8、F\_9、F\_12、F\_13、F\_14、F\_19、F\_20)一起被保留(14个特征)进行下一步筛选。

由于剩余搜索空间中共存在16383种特征子集组合,为进一步缩小特征空间,综合考虑精度及效率,采用2种启发式包裹特征选择方法(wrapper)对剩余14个特征进行建模及最终比较筛选,将特征子集搜索范围降低至210种,其中100次建模模型的10折交叉验证RMSE均值作为特征子集的评价指标。

(1) 序列前向选择(sequential forward selection,简称SFS),从空集开始,每次选择一个特征 $x$ 加入特征子集 $X_i$ 使得预测误差最小。如图4a箭头所示,特征子集 $X_i = (F_{16}, F_{18})$ 具有最小的RMSE均值。

(2) 序列后向选择(sequential backward selection,简称SBS),从特征全集开始,每次剔除一个特



表 1 22 个重要性质特征描述符的索引及对应含义  
Table 1 Features indexes and implication of 22 important property features

Feature index	Feature name	Feature index	Feature name
F_0	Ave: electron_affinity	F_1	Ave: hhi_r
F_2	Var: covalent_radius	F_3	Sum: atomic_weight
F_4	Var: gs_est_fcc_latent	F_5	Var: atomic_radius
F_6	Modulus mismatch	F_7	Var: atomic_radius_rahm
F_8	Shear modulus	F_9	Lattice distortion energy
F_10	Mixing enthalpy	F_11	Parameter omiga
F_12	Ave: dipole_polarizability	F_13	Sum: c6_gb
F_14	Cohesive energy	F_15	Var: molar_volume
F_16	Var: first_ion_en	F_17	Ave: covalent_radius_pykko_triple
F_18	Ave: boiling_point	F_19	Sum: heat_of_formation
F_20	Configurational entropy	F_21	Ave: electron_negativity

Note: Ave = average, Var = variance, Sum = summation

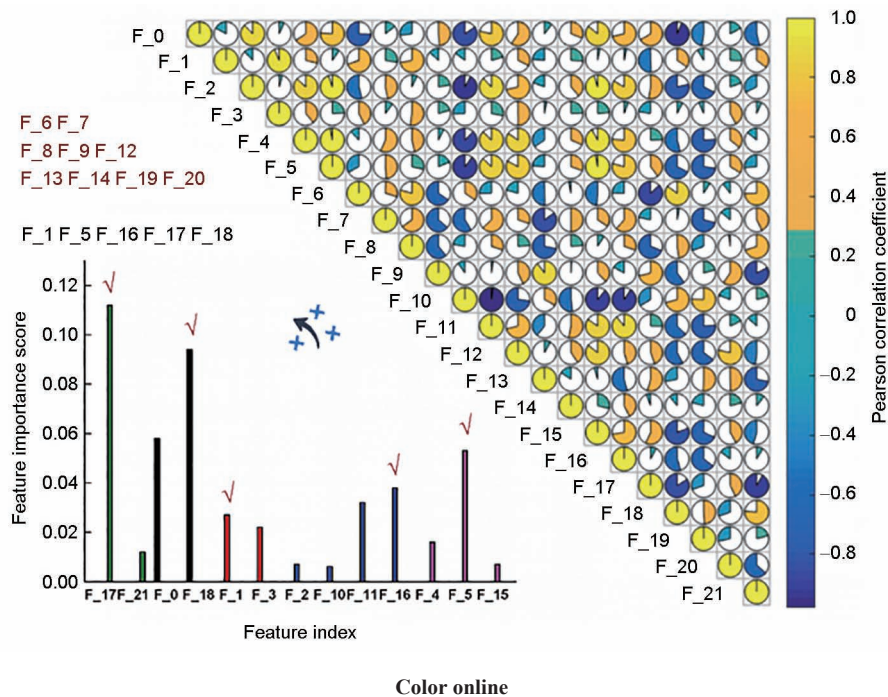


图 3 Pearson 相关性特征筛选结果

Fig.3 Pearson correlation feature selection results (Features in black are those selected from five groups with higher feature importance. Features in red are those not selected)

征  $x$  构成子集  $X_2$  使得模型精度最优。如图 4b 所示, 特征子集  $X_2 = (F_5, F_9, F_{12}, F_{14}, F_{16})$  具有最小的 RMSE 均值。

为确定最终建模特征子集, 按照训练集和测试集比例 9:1 划分初始数据集。图 4c 显示  $X_1$  和  $X_2$  在 rfr、svr.poly、svr.rbf、bpnn 和 gbr 5 种回归模型对测试集预测的 RMSE 结果。在各模型上特征子集  $X_2$  表现均优于  $X_1$ , 故首轮建模将采用 SBS 法筛选的性质特征子集  $X_2$  与铝合金成分摩尔比组合作为机器学习模

型特征空间。在后续迭代建模的过程中, 针对不同的训练样本, 重新根据上述特征选择方法流程, 选择该轮适用的特征子集。

## 2.2 回归模型选择结果

首先, 在 30%~90% 间按照 10% 间隔随机划分训练数据集, 使用 5 个回归模型对数据分别进行 100 次重复建模。图 5a 为测试集 RMSE 预测硬度均值结果。可见, svr.rbf 和 rfr 误差较低, 总体表现较好。为进一步评估各模型的稳定性与泛化能力, 计算 5 种

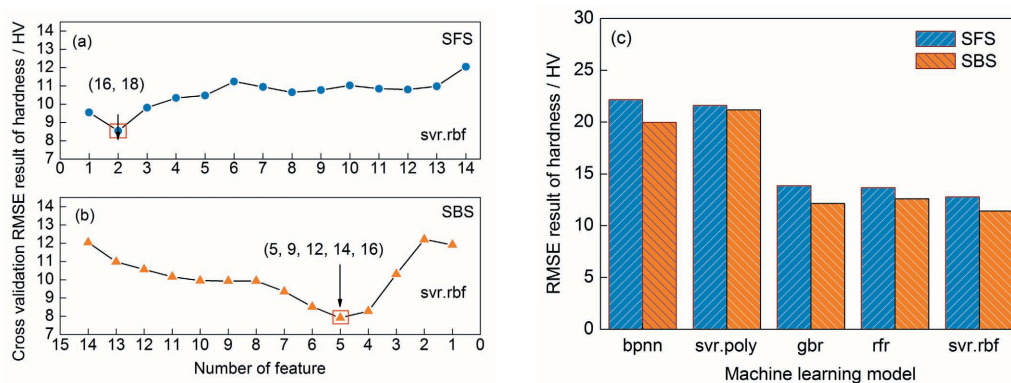


图4 序列前向选择(SFS)与序列后向选择(SBS)特征选择方法与结果对比

Fig.4 Feature selection method and result comparisons between sequential forward selection (SFS) and sequential backward selection (SBS)

- (a) subset building results of SFS (RMSE—root mean square error, svr.rbf—radial basis function support vector regression)  
 (b) subset filtering results of SBS  
 (c) comparisons of modeling results between the two feature subsets (bpnn—back propagation neural network, svr.poly—polynomial kernel functions for support vector regression, gbr—gradient boosted regression, rfr—random forest regression)

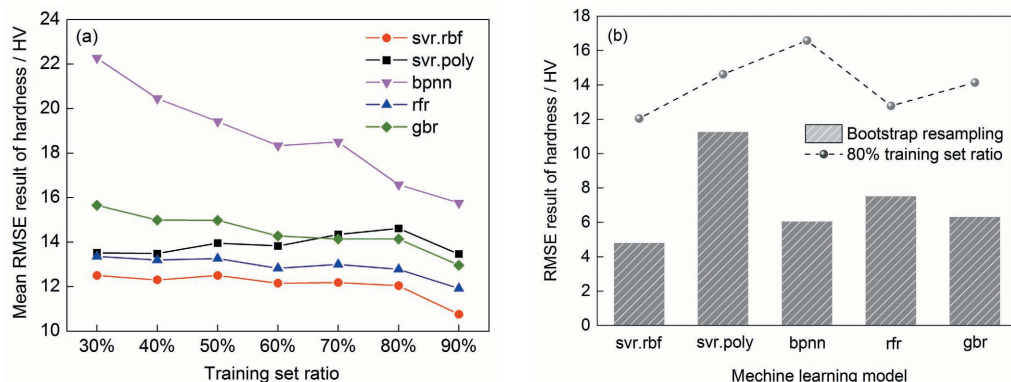


图5 机器学习模型预测结果对比

Fig.5 Comparisons among machine learning models

- (a) RMSE results with the training data divided randomly at the ratio of 30%~90%  
 (b) evaluation results of Bootstrap random sampling model (histogram) and model performance with 80% training data split ratio (point and line plot)

回归模型应用 Bootstrap 方法随机抽样 100 次的全样本空间预测结果。图 5b 为 Bootstrap 采样的全样本建模预测的 RMSE 均值与前述训练集比例为 80% 时测试集预测的 RMSE 均值在 5 种算法中的预测行为对比结果。可见, 2 种 RMSE 误差均在 svr.rbf 模型处达到最小值。该结果的产生是由于 svr.rbf 适用于小样本数据集的模型特点, 使其在首轮模型选择结果中展现了综合优势, 最终将其选为第 1 轮建模实际应用算法, 后续迭代建模时采取类似方式确定每轮最佳机器学习算法。

### 2.3 采样建模结果

鉴于建立能够精准预测成分对应硬度模型的研究目标, 每轮测试集的 RMSE 将作为首要的预测结果评价指标, MAE 和 MSE 作为辅助误差统计量参

与评估。由于数据的非线性及部分预测样本硬度区间相对集中, EVS 和 MedAE 也将作为重要模型行为评估指标。表 2 给出了首轮未采样模型及每轮以人工经验采样数据填充的机器学习模型 (mME) 和以 Bayesian 优化采样数据填充的机器学习模型 (mBO) 对新一轮采样点的预测评估结果。

BO 采样策略每轮均按照 EGO、KG、最大硬度布点法和最大误差布点法 4 种方式, 每种方式取 4 个点共取 16 个样本。首轮 ME 采样策略根据预测值在原始数据中样本分布较少 (> 60 HV) 的偏高硬度区间选取 Mg 和 Si 含量相对较高的样本点 12 个及随机 4 个实验点, 但由于基础训练数据集不足, 由图 6a 及表 2 预测结果所示, 未进行数据补充前, 使用原始数据训练的模型对于首轮 Bayesian 优化采样实验点



表 2 回归模型评估结果

Table 2 Evaluation results of the regression models

Round	EVS	MAE / HV	MSE / HV	RMSE / HV	MedAE / HV
First round	-0.10	14.60	301.80	17.31	0.09
The second round of mME	-0.11	10.06	138.10	11.75	0.04
The second round of mBO	0.31	5.57	38.56	6.21	0.01
The third round of mME	0.16	7.79	94.59	9.73	0.03
The third round of mBO	0.50	2.88	20.13	4.49	< 0.01
The third round of mBOe	-0.06	4.85	42.41	6.51	0.01

Note: mBO—machine learning models trained by the data set of the samples guided by Bayesian optimization sampling; mME—machine learning models trained by the data set of the samples guided by manual empirical sampling; mBOe—mBO models with additional error features; EVS—explained variance score; MAE—mean absolute error; MSE—mean square error; MedAE—median absolute error

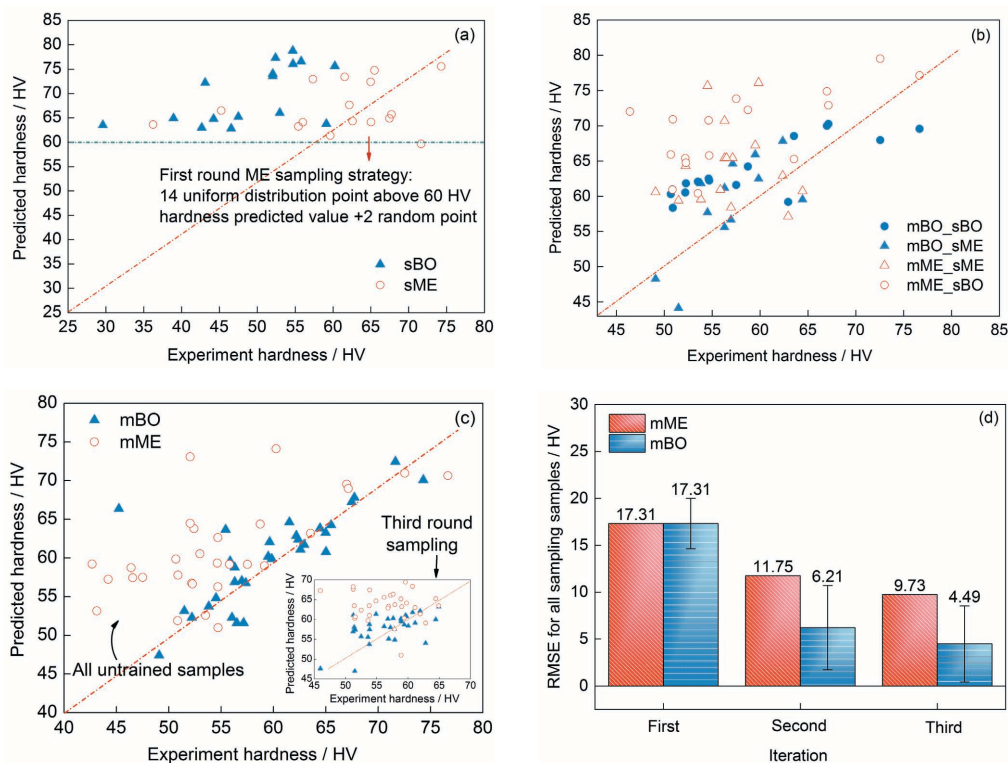


图 6 以人工经验采样数据填充的机器学习模型(mME)和以 Bayesian 优化采样数据填充的机器学习模型(mBO)建模结果对比

Fig.6 Prediction results of mME and mBO models in the first iteration (sBO—sampling based on BO, sME—sampling based on ME) (a), second iteration (b), third iteration (c), and comparisons of model error RMSE (The error bars are the mean standard deviation of the experiments) (d)

(sBO)和人工经验采样实验点(sME)的预测普遍偏高,误差较大且 EVS 为负值,呈欠拟合状态。第 2 轮迭代中,为丰富数据结构并避免重采样,ME 采样策略选取硬度预测值由高到低(80~50 HV)均匀分布且 Mg、Cu、Si、Fe 含量组合差异性较大的 16 个样本,由图 6b 及表 2 结果所示,预测偏高问题得到一定缓解, mME 和 mBO 模型的 MedAE 均显著降低,预测效果较第 1 轮呈优化态势。相比之下, mBO 模型 EVS 增

至 0.31 且 RMSE 降至 6.21 HV。各评估指标结果均优于同期 mME 模型,BO 采样策略在提高模型效果上展现了初步优势。经过 2 轮数据填充后,第 3 轮建模结果如图 6c 及表 2 所示, mME 预测值分散度及不稳定性在该轮得到进一步改善, EVS 变为正值,但 RMSE 等误差统计量依然相对较高,且 MedAE 仍在 0.03 左右,模型预测存在偏差。第 3 轮建模结果(图 6c 中插图)及两模型对于未参与训练的样本的预

测结果中, mBO 的预测样本点大部分分散在对角线周围, 与真实值基本吻合。mBO 的 EVS 趋于 0.50 且 MedAE 降至 0.007, 模型的可解释性进一步增强, 样本点预测大部分分散在对角线周围, 与真实值基本吻合。如图 6d 所示, mBO 模型预测硬度的 RMSE 由第 1 轮的 17.31 HV 降到了第 3 轮的 4.49 HV (7.23%), 比较接近该轮实验的平均误差值 4.05 HV, 远低于应用人工经验采样法的机器学习模型误差 9.73 HV (15.68%)。用 BO 采样策略填充数据集并建模的优势得到进一步认可。综上可知, 仅经过 3 轮迭代后, 用 64 个铝合金样品建模, mBO 模型对硬度预测准确度已经接近实验误差。与第 3 轮 mME 模型的预测相比, mBO 模型预测结果的 EVS 升高 212.5%, MAE 降低 63.03%, MSE 降低 78.71%, RMSE 降低 53.85%, MedAE 降低 66.67%。上述结果比较说明 BO 采样策略可以更有效地选取数据, 对数据分布不均导致模型不确定性大的区域进行数据填充, 在主动学习加速优化成分-硬度映射模型问题上占据优势, 而 ME 采样策略初期根据还不成熟的模型预测值进行筛选, 明显忽略了模型不确定性导致的误差负面影响。

由于实验本身存在测量误差, Tian 等<sup>[33]</sup>在 BO 采样算法的 EI 采集函数中引入实验误差项  $\text{err}$ , 在采样阶段考虑观测噪声, 有助于缩小不确定性采样空间搜索范围, 减少迭代次数, 加速模型优化。本工作探索建模阶段考虑观测噪声对模型预测精度的影响。首先将原始特征及硬度作为输入, 实验测量误差  $\text{err}$  作为输出进行建模学习, 并对 33600 个未知样本实验误差进行预测估计, 将上述机器学习预测的实验误差作为一系列独立特征量加入到原始特征空间中进行机器学习, 图 7 及表 2 给出加入实验误差特征的第

3 轮 mBO 模型(记为 mBOe)对未参与建模样本点的硬度预测结果。结果表明, 引入实验误差并没有达到提高精度的目标, 预测 RMSE 反而降低至 6.51 HV (10.49%), 且 EVS 变为负值。该效应的产生存在以下 3 种可能: 误差特征引入与预测精度间可能存在负相关; 机器学习预测的实验误差特征本身存在一定的不确定性; 实验误差特征干扰了基础数据的规律性。基于以上分析与探索, 实验误差是否适合作为建模阶段的特征量及其有效性, 仍有待进一步更系统深入的考察验证。

### 3 分析讨论

为了增强机器学习模型的可解释性和物理意义, 基于 SHAP 与 PDP 等可视化模型解释工具探究分析特征对铝合金硬度的贡献程度及影响趋势。SHAP 结果由图 8a 所示, 色散变化代表特征值的高低,  $Y$  方向从上到下为特征重要性程度排序,  $X$  方向为特征 SHAP 值大小, SHAP 值等于 0 对应中值样本, 某点处 SHAP 值大于 0 则说明特征对于该样本点硬度预测值起到提升作用, 反之减小。PDP 结果如图 9 所示,  $Y$  值表示模型预测值相较于基线值的变化大小, 折线及网格点表示特征对预测结果的影响趋势变化, 阴影部分表示置信区间, 置信区间越大代表该特征受其他特征变化影响较大, 对硬度预测的决定性权重较小。

综合上述 2 种机器学习模型解释策略对 mBO 模型预测结果进行分析发现, Si 元素的影响最为显著, 样本中 Si 含量增加对应 SHAP 值增大, 其含量与铝合金硬度呈正相关。当 Si 元素质量分数在小于 0.5% 的区间内, 其硬度估值随 Si 含量的增加大幅度提升, 当 Si 质量分数在 0.5%~0.7% 区间内时曲线持

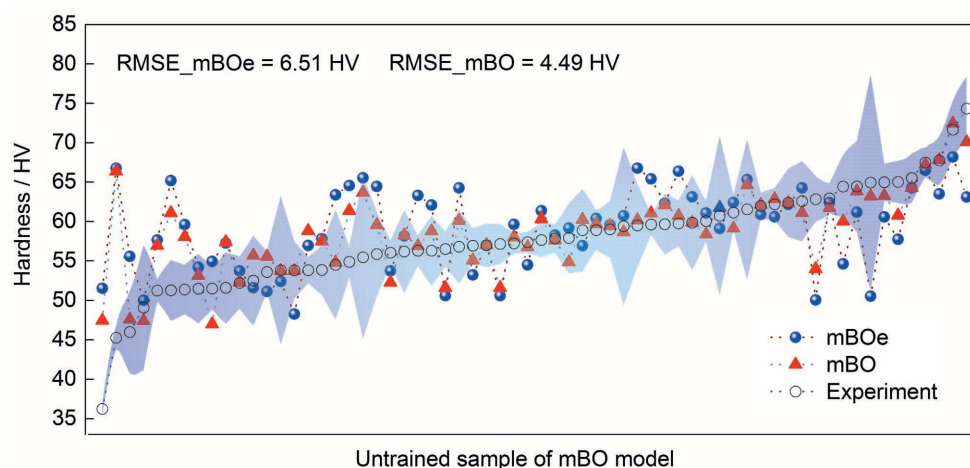


图 7 mBO 与包含实验误差特征的 mBO 机器学习模型(mBOe)建模预测结果对比

Fig. 7 Comparisons between prediction results of mBO and mBOe models

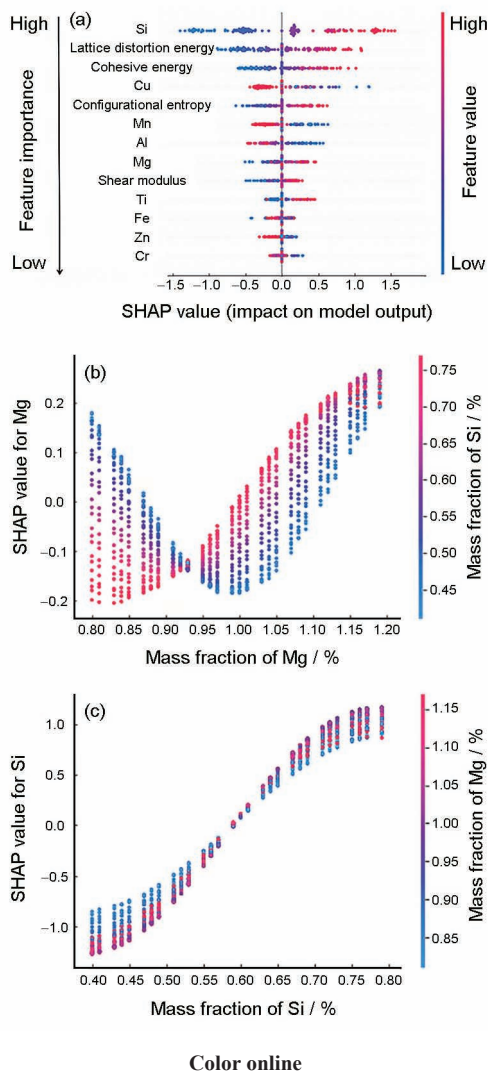


图8 基于 Shapley 解释法(SHAP)的特征重要性分析及Mg和Si相互作用关系依赖图

Fig.8 Features importance analyses and relational dependence plots of Mg and Si based on Shapley additive explanations (SHAP)

- (a) feature importance sorting  
(b) basic dependence plot of Mg  
(c) basic dependence plot of Si

平,其含量变化对硬度没有明显影响,直至大于0.7%后硬度再次有小幅度的提升。Cu和Mn元素重要性程度略小于Si,其含量与铝合金硬度呈负相关,当Cu的质量分数在0.25%~0.35%内时合金硬度出现明显减小,随后出现小幅度回升。而Mn的质量分数大于0.07%时硬度有降低趋势。文献[39]报道少量Mn能改善含有Cu与Si元素铝合金的高温强度,但是超过一定量后形成Al-Si-Fe-Mn四元化合物,反而起到负作用,这与本工作的机器学习预测分析一致。Mg和Ti元素质量分数与合金硬度呈正相关,且当Mg元素含量约为0.93%时积极作用最为明显,合金硬度随Ti含量缓慢增加最终至0.14%时趋

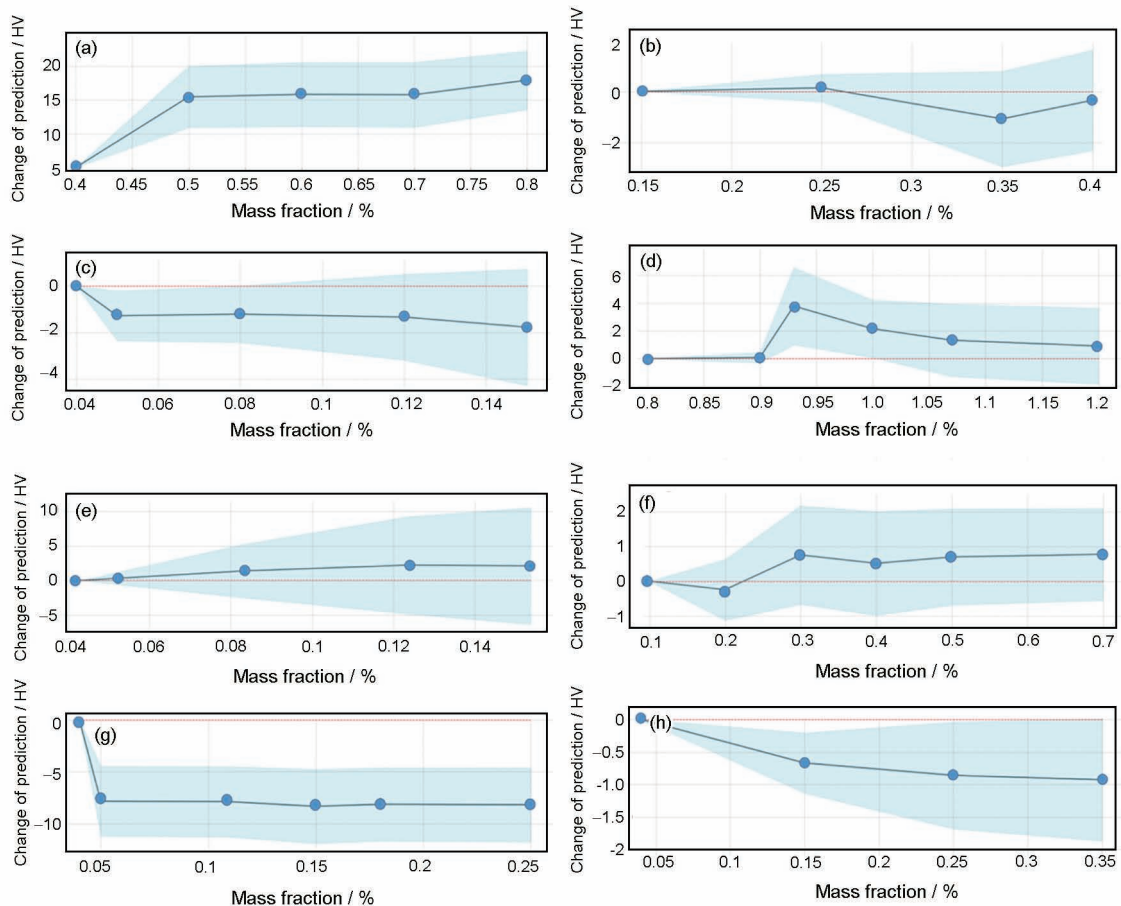
于平稳。文献[39]研究表明,增加1%Mg,抗拉强度大约升高34MPa,Ti在临界含量约为0.15%内,与Al形成TiAl<sub>2</sub>相,成为结晶时的非自发核心,起细化铸造组织和焊缝组织的作用,对提高硬度具有较好的效果。Fe、Zn和Cr元素影响远小于其他微量元素,且均呈负相关。少量的Cr元素及质量分数小于0.5%的Zn均会降低硬度预测值。已有经验表明,铝合金中若含有微量Zn,高温会使铝合金脆性增大,铸件易产生裂纹导致合金硬度及强度降低。同时需要注意铝合金热处理后合金元素的存在状态和作用也会改变。本工作针对铸态铝合金的研究主要聚焦其化学成分的本征“基因”作用和初步快速成分筛选。后续的热处理和压力加工工艺的影响和优化有待进一步研究。

图8a结果表明,最后一轮mBO机器学习模型所选择的4个性质:特征晶格畸变能、内聚能、构型熵及剪切模量,均与硬度呈正相关。材料发生晶格畸变时,原子离开平衡位置,诱发的微观应力场可阻碍位错滑移和材料变形,从而使材料强度和硬度提高。晶体的内聚能大时,金属键合较强,抵抗塑性变形能力变强,硬度会变大。构型熵增大代表微量元素含量尽可能均匀一致,也可导致硬度增加。剪切模量表示材料剪切变形的难易程度,表征材料抵抗切应变的能力,也会导致硬度变大<sup>[40]</sup>。

边际效应是在保持所有其他协变量不变的情况下,以某一解释变量变化的函数来衡量因变量的预期瞬时变化。铝合金中Mg和Si元素对铝合金性能的影响存在相关性。本工作基于SHAP计算Mg和Si元素的协同边际效应并给出相关性分析,其中垂直方向上的色散变化表示元素影响的相关性。由Mg为基础的相关性依赖图8b所示。在国标范围内,当Mg元素质量分数小于0.94%时,Si含量越低,Mg/Si越大时,SHAP贡献值越大,对应于更高的预测硬度。SHAP值大于0时,Mg/Si大于1.37。而Mg元素质量分数大于0.94%,Mg/Si比越小时。硬度预测值越高。SHAP值小于0时,Mg/Si大于1.72。类似的Si为基础的相关性依赖图如图8c所示,当Si质量分数小于0.58%时,Mg/Si越小,硬度越高,反之越低。当Mg/Si = 1.15 / 0.75 = 1.53左右时硬度预测值到达峰值,贡献效益最大化。

根据上述分析,mBO模型提供的Mg和Si协同影响结果为:当1.37 < Mg/Si < 1.72时有助于提高合金硬度及力学性能,而超出该范围时试样的力学性能骤降。当Mg/Si = 1.15/0.75 = 1.53时,合金硬度预测值达到峰值,对合金硬度及性能的贡献效益最大





Color online

图9 微量元素特征与硬度之间的绝对变化规律及贡献性分析

Fig.9 Absolute influence of trace element features on hardness (blue shade—confidence interval, red line—baseline value)

(a) Si (b) Cu (c) Mn (d) Mg (e) Ti (f) Fe (g) Zn (h) Cr

化。高爱华等<sup>[41]</sup>对 6063 铝合金的实验结果表明,合金抗拉强度、硬度和塑性都处于较优状态的 Mg/Si 作用范围为  $1.5 < \text{Mg/Si} < 1.7$ 。而叶於龙等<sup>[9]</sup>对 6101 铝合金的实验结果表明,铝合金名义成分的  $\text{Mg/Si} = 0.53\% / 0.35\% = 1.514$  时,抗拉强度达到最佳。以上文献结果与本工作中机器学习模型分析所得结果吻合。

综上所述,基于 mBO 模型解释的分析可知,本工作对铝合金各微量元素及性质对硬度的影响趋势预测与实际经验吻合较好,验证了 mBO 机器学习模型对铝合金各微量掺杂成分与硬度等性能的关系具有良好的学习预测能力。同时获得了各元素对合金性能的影响范围及高硬度对应的最佳 Mg/Si 比值范围,可为 6061 铝合金成分定量调控及精细优化设计提供依据。

#### 4 结论

(1) 相较于根据机器学习结果及专业知识的人工经验采样策略,基于 Bayesian 优化算法的自适应采样

策略可以更有效地指导实验。其中 mBO 相较同期 mME 的预测 EVS 升高 212.5%、MAE 降低 63.03%、MSE 降低 78.71%、RMSE 降低 53.85%、MedAE 降低 66.67%。最终 mBO 模型硬度预测 RMSE 为 4.49 HV (7.23%),与测试样品实验误差(4.05 HV)接近,初步满足成分-硬度映射模型的应用精度标准。

(2) 国家标准范围内,6061 铝合金硬度随 Si、Mg 和 Ti 的含量增大而升高,随 Cu、Mn、Fe、Zn 和 Cr 含量的减小而降低,且影响程度依次下降。晶格畸变能、内聚能、构型熵和剪切模量等复合性质均与硬度呈正相关。Mg/Si 对提高合金硬度及力学性能的最佳作用范围为  $1.37 < \text{Mg/Si} < 1.72$ ,当  $\text{Mg/Si} = 1.53$  时达到峰值,且上述定量分析均与文献及实验结果吻合。

(3) 基于自适应 Bayesian 采样优化后的机器学习模型经过解释及验证,能够为在 6061 铝合金标准名义成分范围内进行成分优化以及性能调控提供策略指导,以提高 6061 铝合金产品质量的性能和稳定性。高通量实验与机器学习结合的方法可以有效加速建

立一个能够对材料未知成分空间实现性能预测的机器学习模型,为后续多元合金成分精细优化设计和性能调控提供通用策略和可参考的量化指导意见。

### 参考文献

- [1] Bron F, Besson J. A yield function for anisotropic materials application to aluminum alloys [J]. *Int. J. Plast.*, 2004, 20: 937
- [2] Hou L G, Liu M L, Wang X D, et al. Cryogenic processing high-strength 7050 aluminum alloy and controlling of the microstructures and mechanical properties [J]. *Acta. Metall. Sin.*, 2017, 53: 1075  
(侯陇刚, 刘明荔, 王新东等. 高强 7050 铝合金超低温大变形加工与组织、性能调控 [J]. *金属学报*, 2017, 53: 1075)
- [3] Liu H L, Ding X Y, Xu L H. Effects of Mg<sub>2</sub>Si content on microstructure and mechanical properties of aluminum alloy 6061 [J]. *Southern Met.*, 2019, (4): 1  
(刘辉丽, 丁幸宇, 徐龙辉. Mg<sub>2</sub>Si 含量对 6061 铝合金组织和力学性能的影响 [J]. *南方金属*, 2019, (4): 1)
- [4] Zhong H, Rometsch P A, Cao L F, et al. The influence of Mg/Si ratio and Cu content on the stretch formability of 6xxx aluminium alloys [J]. *Mater. Sci. Eng.*, 2016, A651: 688
- [5] Ye Y L, Yang Z, Xu X X, et al. Effects of excess Mg and Si on the properties of 6101 conducting wire and its mechanism [J]. *Rare Met. Mater. Eng.*, 2016, 45: 968  
(叶于龙, 杨昭, 徐雪璇等. 过量 Mg、Si 元素对 6101 电工导线性能影响及机制 [J]. *稀有金属材料与工程*, 2016, 45: 968)
- [6] Wen Z, Wen J Y, Wang B, et al. The effects of Mn addition on microstructure and hardness in 6061 aluminium alloy [J]. *Pop. Sci. Technol.*, 2013, 15(11): 25  
(文忠, 文建源, 王彬等. Mn 对 6061 合金组织和硬度的影响 [J]. *大众科技*, 2013, 15(11): 25)
- [7] Zhang X M, Ke B, Tang J G, et al. Effects of Mn content on microstructure and mechanical properties of 6061 aluminum alloy [J]. *Chin. J. Mater. Res.*, 2013, 27: 338  
(张李明, 柯彬, 唐建国等. Mn 含量对 6061 铝合金组织与力学性能的影响 [J]. *材料研究学报*, 2013, 27: 338)
- [8] Wang Z X, Li H, Gu J H, et al. Effect of Cu content on microstructures and properties of Al-Mg-Si-Cu alloys [J]. *Chin. J. Nonferrous Met.*, 2012, 22: 3348  
(王芝秀, 李海, 顾建华等. Cu 含量对 Al-Mg-Si-Cu 合金微观组织和性能的影响 [J]. *中国有色金属学报*, 2012, 22: 3348)
- [9] Yu H B, Du Y L. Effect of alloying and heat treatment on microstructure and properties of 6061 aluminum alloy for automobile [J]. *Foundry Technol.*, 2017, 38: 2374  
(于洪兵, 杜艳丽. 合金化及热处理对汽车用 6061 铝合金组织与性能的影响 [J]. *铸造技术*, 2017, 38: 2374)
- [10] Wang X G, Li Q S, Ning X D, et al. Composition optimization design and properties simulation of Al-Zn-Mg aluminum alloy [J]. *Foundry Technol.*, 2018, 39: 2477  
(王孝国, 李秋书, 宁小丹等. Al-Zn-Mg 铝合金成分优化设计及性能仿真 [J]. *铸造技术*, 2018, 39: 2477)
- [11] Li X M, Yu J J. Using orthogonal experimental design to optimize alloy composition [J]. *AOP Conf. Ser. Mater. Sci. Eng.*, 2012, 33: 012065
- [12] Xiao B, Wu Y Q, Liu Y. Machine learning on doping of nickel-base single crystal superalloy based on first-principles calculation [J]. *Shanghai Met.*, 2020, 42(3): 97  
(肖斌, 吴雨沁, 刘轶. 基于第一性原理计算的镍基单晶高温合金掺杂的机器学习研究 [J]. *上海金属*, 2020, 42(3): 97)
- [13] Hao Y Z, Zhao H D, Lin J H. Properties of squeeze-cast aluminum alloys based on machine learning [J]. *Spec. Cast. Nonfer. Alloys*, 2019, 39: 859  
(郝永志, 赵海东, 林嘉华. 基于机器学习的挤压铸造铝合金力学性能预测 [J]. *特种铸造及有色合金*, 2019, 39: 859)
- [14] Su Y J, Fu H D, Bai Y, et al. Progress in materials genome engineering in China [J]. *Acta. Metall. Sin.*, 2020, 56: 1313  
(宿彦京, 付华栋, 白洋等. 中国材料基因工程研究进展 [J]. *金属学报*, 2020, 56: 1313)
- [15] Dehghannasiri R, Yoon B J, Dougherty E R. Optimal experimental design for gene regulatory networks in the presence of uncertainty [J]. *IEEE/ACM Trans. Comput. Biol. Bioinform.*, 2015, 12: 938
- [16] Ward L, Agrawal A, Choudhary A, et al. A general-purpose machine learning framework for predicting properties of inorganic materials [J]. *npj Comp. Mater.*, 2016, 2: 16028
- [17] Wang J, Xiao B, Liu Y. Machine learning assisted high-throughput experiments accelerates the composition design of hard high-entropy alloy Co<sub>x</sub>Cr<sub>y</sub>Ti<sub>z</sub>Mo<sub>w</sub>W<sub>v</sub> [J]. *Mater. China*, 2020, 39: 269  
(王炯, 肖斌, 刘轶. 机器学习辅助的高通量实验加速硬质高熵合金 Co<sub>x</sub>Cr<sub>y</sub>Ti<sub>z</sub>Mo<sub>w</sub>W<sub>v</sub> 成分设计 [J]. *中国材料进展*, 2020, 39: 269)
- [18] Balachandran P V, Young J, Lookman T, et al. Learning from data to design functional materials without inversion symmetry [J]. *Nat. Commun.*, 2017, 8: 14282
- [19] Liu X J, Chen Y C, Lu Y, et al. Present research situation and prospect of multi-scale design in novel Co-based superalloys: A review [J]. *Acta Metall. Sin.*, 2020, 56: 1  
(刘兴军, 陈悦超, 卢勇等. 新型钴基高温合金多尺度设计的研究现状与展望 [J]. *金属学报*, 2020, 56: 1)
- [20] Balachandran P V, Kowalski B, Sehirlioglu A, et al. Experimental search for high-temperature ferroelectric perovskites guided by two-step machine learning [J]. *Nat. Commun.*, 2018, 9: 1668
- [21] Balachandran P V. Machine learning guided design of functional materials with targeted properties [J]. *Comp. Mater. Sci.*, 2019, 164: 82
- [22] Gubernatis J E, Lookman T. Machine learning in materials design and discovery: Examples from the present and suggestions for the future [J]. *Phys. Rev. Mater.*, 2018, 2: 120301
- [23] Xiong J, Shi S Q, Zhang T Y. A machine-learning approach to predicting and understanding the properties of amorphous metallic alloys [J]. *Mater. Des.*, 2020, 187: 108378
- [24] Xu W, Huang M H, Wang J L, et al. Review: Relations between metastable austenite and fatigue behavior of steels [J]. *Acta. Metall. Sin.*, 2020, 56: 459  
(徐伟, 黄明浩, 王金亮等. 综述: 钢中亚稳奥氏体组织与疲劳性能关系 [J]. *金属学报*, 2020, 56: 459)
- [25] Bhadeshia H K D H, Dimitriu R C, Forsik S, et al. Performance of neural networks in materials science [J]. *Mater. Sci. Technol.*, 2019, 35: 1203

- 2013, 25: 504
- [26] Schütt K T, Sauceda H E, Kindermans P J, et al. SchNet—A deep learning architecture for molecules and materials [J]. *J. Chem. Phys.*, 2018, 148: 241722
- [27] Rodgers J R, Cebon D. Materials informatics [J]. *MRS Bull.*, 2011, 31: 975
- [28] Liu Z L, Li W, Liu H, et al. Research progress of high-throughput computational screening of metal-organic frameworks [J]. *Acta Chim. Sin.*, 2019, 77: 323  
(刘治鲁, 李 炜, 刘 昊等. 金属有机骨架的高通量计算筛选研究进展 [J]. *化学学报*, 2019, 77: 323)
- [29] Lookman T, Alexander F J, Rajan K. Information Science for Materials Discovery and Design [M]. Cham: Springer, 2016: 1
- [30] Lookman T, Balachandran P V, Xue D Z, et al. Active learning in materials science with emphasis on adaptive sampling using uncertainties for targeted design [J]. *Npj Comp. Mater.*, 2019, 5: 21
- [31] Yuan R H, Liu Z, Balachandran P V, et al. Accelerated discovery of large electrostrains in BaTiO<sub>3</sub>-based piezoelectrics using active learning [J]. *Adv. Mater.*, 2018, 30: 1702884
- [32] Jones D R, Schonlau M, Welch W J. Efficient global optimization of expensive black-box functions [J]. *J. Global. Optim.*, 1998, 13: 455
- [33] Tian Y, Yuan R H, Xue D Z, et al. Role of uncertainty estimation in accelerating materials development via active learning [J]. *J. Appl. Phys.*, 2020, 128: 014103
- [34] Xue D Z, Balachandran P V, Hogden J, et al. Accelerated search for materials with targeted properties by adaptive design [J]. *Nat. Commun.*, 2016, 7: 11241
- [35] Xue D Z, Xue D Q, Yuan R H, et al. An informatics approach to transformation temperatures of NiTi-based shape memory alloys [J]. *Acta Mater.*, 2017, 125: 532
- [36] Umemoto M, Liu Z G, Tsuchiya K, et al. Relationship between hardness and tensile properties in various single structured steels [J]. *Mater. Sci. Technol.*, 2013, 17: 505
- [37] Wu S, Lambard G, Liu C, et al. iQSPR in XenonPy: A bayesian molecular design algorithm [J]. *Mol. Inf.*, 2020, 39: 1900107
- [38] Aldrich C. Process variable importance analysis by use of random forests in a shapley regression framework [J]. *Minerals*, 2020, 10: 420
- [39] Zhang S J. Study on high-silicon die casting aluminum alloys with high strength [D]. Ji'nan: Shandong University, 2008  
(张士佼. 高强压铸高硅铝合金的研究 [D]. 济南: 山东大学, 2008)
- [40] Su X P. Engineering Materials [M]. Xiangtan: Xiangtan University Press, 2008: 1  
(苏旭平. 工程材料 [M]. 湘潭: 湘潭大学出版社, 2008: 1)
- [41] Gao A H, Wang F R. Effect of Mg/Si mass ratio on microstructure and properties of 6063 alloy [J]. *Mater. Heat Treat.*, 2012, 41(16): 23  
(高爱华, 王福荣. 镁硅质量比对 6063 铝合金组织和性能的影响 [J]. *材料热处理技术*, 2012, 41(16): 23)

(责任编辑:肖素红)