

理论计算在高熵陶瓷领域的研究进展

解陈一, 缪花明, 张蔚然, 刘荣军, 王衍飞, 李 端

(国防科技大学 空天科学学院, 长沙 410073)

摘 要: 高熵陶瓷(High-entropy ceramic, HEC)凭借其高熵效应、晶格畸变效应、迟滞扩散效应、鸡尾酒效应, 展现出优异的热学性能、力学性能和化学稳定性, 在航空航天、能源、核工业等领域具有巨大的应用潜力。然而, 由于 HEC 巨大的成分与结构空间, 传统试错法存在周期长、成本高等问题, 难以有效开展针对复杂体系的研究。因此, 理论计算成为破解这一难题的核心工具。为梳理近年来理论计算在 HEC 领域的研究进展, 本文聚焦当前主流的理论计算方法, 包括第一性原理计算、分子动力学模拟、机器学习以及相图计算技术等, 并结合高通量计算与性能描述符等研究范式, 全面论述这些方法在 HEC 研究中的关键作用与具体应用。本文首先简要概述 HEC 的基本特性和核心效应, 接着重点剖析上述计算方法的理论基础, 并详细阐述其在 HEC 组分设计、性能预测、微观结构解析与相稳定性评估等方面的应用。最后, 总结理论计算在研究多组元体系时面临的主要挑战, 如高质量数据集稀缺、构效关系模糊等, 并对该领域在数据驱动设计、跨尺度关联、极端环境模拟等方向的发展进行了前瞻性展望。

关 键 词: 高熵陶瓷; 理论计算; 第一性原理; 多尺度模拟; 机器学习; 综述

中图分类号: TB321 文献标志码: A 文章编号: 1000-324X(2026)05-0545-16

Research Progress on Theoretical Calculation in the Field of High-entropy Ceramics

XIE Chenyi, MIAO Huaming, ZHANG Weiran, LIU Rongjun, WANG Yanfei, LI Duan

(College of Aerospace Science and Engineering, National University of Defense Technology, Changsha 410073, China)

Abstract: High-entropy ceramic (HEC) demonstrates exceptional thermal and mechanical properties, along with outstanding chemical stability, which can be attributed to their high entropy, lattice distortion, sluggish diffusion, and cocktail effects. However, the expansive compositional and structural space associated with HEC renders traditional trial-and-error methods time-consuming, costly and inadequate for investigation of complex systems. Thus, theoretical calculation has become an indispensable tool for addressing these challenges. To outline recent advances in theoretical calculation for HEC, this article focuses on prevalent calculation methods, including first-principles calculations, molecular dynamics, machine learning, and calculation of phase diagrams. Additionally, it discusses research paradigms such as high-throughput computing and performance descriptors, providing a comprehensive overview of

收稿日期: 2025-08-19; 收到修改稿日期: 2025-11-04; 网络出版日期: 2025-11-11

基金项目: 国家自然科学基金联合基金项目(U2241239)

National Natural Science Foundation of China (U2241239)

作者简介: 解陈一(2000–), 男, 博士研究生. E-mail: 15806148102@163.com

XIE Chenyi (2000–), male, PhD candidate. E-mail: 15806148102@163.com

通信作者: 刘荣军, 研究员. E-mail: rongjunliu@163.com

LIU Rongjun, professor. E-mail: rongjunliu@163.com

their key roles and specific applications in HEC. The article first outlines fundamental characteristics and core effects of HEC, then turns to critically examine theoretical basis of these calculation methods, elaborating on their applications through specific examples in composition design, property prediction, microstructural parsing, and phase stability assessment. Finally, this paper summarizes the major challenges encountered in theoretical calculations in the study of multi-component systems, such as the scarcity of high-quality datasets and the ambiguity of structure-property relationships. It concludes with a forward-looking outlook on the development directions in this field, including data-driven design, cross-scale correlation, and extreme environment simulation.

Key words: high-entropy ceramic; theoretical calculation; first principles; multiscale simulation; machine learning; review

2004 年, 叶均蔚教授等^[1]和 Cantor 等^[2]分别提出了一种“多元素合金”(亦称高熵合金)的设计概念。该类合金定义为由五种及以上金属元素组成, 各元素摩尔分数介于 5%~35%之间的合金材料。通过调控组分配比, 可有效改变合金的晶体结构与相组成, 从而显著提升其性能。

受高熵合金设计理念及热力学原理的启发, Rost 等^[3]于 2015 年首次将高熵概念引入陶瓷领域, 并成功制备出单相高熵氧化物陶瓷($\text{Mg}_{0.2}\text{Ni}_{0.2}\text{Co}_{0.2}\text{Cu}_{0.2}\text{Zn}_{0.2}\text{O}$)。HEC 的特点在于其特定晶格位置可容纳多种阳离子、阴离子及缺陷。相较于传统陶瓷, 其在成分选择与结构设计上具有更高的自由度, 并表现出高模

量、高硬度、低热导率及优异的抗氧化性等综合性能。图 1(a, b)为近年来 HEC 领域的研究概况, 目前该领域发展迅速, 涵盖高熵碳化物陶瓷(High-entropy carbide ceramics, HECCs)^[4-6]、高熵氧化物陶瓷(High-entropy oxide ceramics, HEOCs)^[7-9]、高熵硼化物陶瓷(High-entropy boride ceramics, HEBCs)^[10-12]、高熵氮化物陶瓷(High-entropy nitride ceramics, HENCs)^[13-14]、高熵硅化物陶瓷(High-entropy silicide ceramics, HESCs)^[15-16]、高熵稀土陶瓷(High-entropy rare earth ceramics, HERCs)^[17-19]等多种体系。按晶体结构分类, 已开发出岩盐结构^[20-21]、萤石结构^[22-23]、钙钛矿结构^[24-25]等, 如图 1(c)所示^[26]。

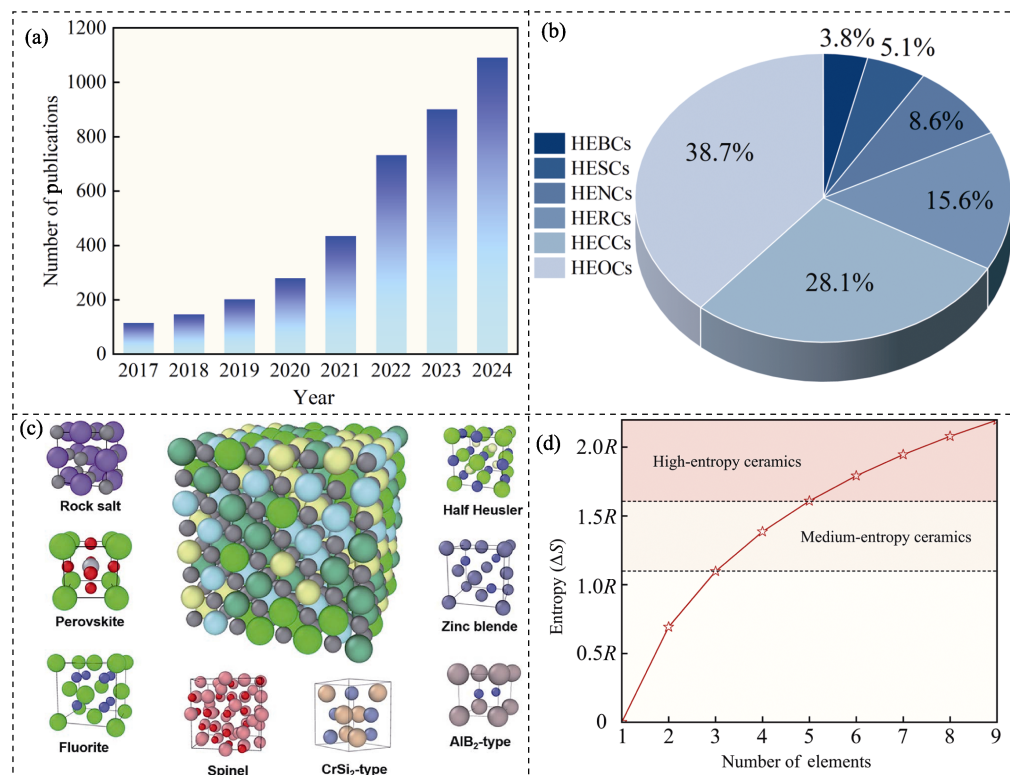


图 1 HEC 领域研究概况

Fig. 1 Overview of research in the field of HEC

(a) Amount of publications of HEC in Web of Science database from 2017 to 2024; (b) Percentage of publications on various types of HEC in 2024; (c) Schematic diagrams of HEC with different crystal structures^[26]; (d) Relationship between entropy and number of components, as well as definition of medium-entropy and high-entropy ceramics

然而, HEC 因体系复杂性及传统试错法的局限, 其研究难度显著高于传统陶瓷材料。近年来, 随着计算机科学与人工智能的迅猛发展, 理论计算在材料科学研究中的应用日益广泛^[27]。借助高通量计算、多尺度模拟和机器学习等技术手段, 理论计算不仅能够突破实验试错的瓶颈, 提升新材料的研发效率, 还可以深入揭示 HEC 的本征特性, 为开发面向极端环境的特种材料提供理论依据, 推动 HEC 在功能性应用领域的发展与创新^[28]。

本文首先概述 HEC 的基本特性, 随后重点介绍常见的理论计算方法, 并系统阐述这些方法在 HEC 组分设计、性能预测、微观机理分析以及稳定性评估等方面的具体应用; 最后, 总结当前研究面临的挑战, 并对未来发展方向进行展望。

1 高熵陶瓷概述

1.1 高熵陶瓷的概念及效应

HEC 通常是指由五种及以上阳离子(等摩尔比或近等摩尔比)和至少一种阴离子(C、O、N 等)组成的单相固溶体陶瓷。图 1(d)为熵与组元数的关系以

及中熵和高熵陶瓷的界定。随着高熵材料体系的发展与完善, 四金属主元(近)等摩尔比的材料体系有时也被称为高熵体系^[26, 29-30]。

高熵效应(热力学)、晶格畸变效应(结构)、迟滞扩散效应(动力学)和鸡尾酒效应(性能)是高熵合金区别于传统材料的四大特性。HEC 因其高构型熵, 亦被广泛证实具有上述效应, 其示意图如图 2 所示。热力学上的高熵效应是最核心的特征。高构型熵能够降低体系的吉布斯自由能, 提高材料的热稳定性和不同元素的相容性, 从而使多组元体系更倾向于形成单相固溶体。结构上的晶格畸变效应, 其机制是不同元素的原子半径和化学键差异导致晶格产生严重的局部畸变。该畸变会在原子周围形成应力场, 阻碍位错的滑移, 是提升材料强度的常见机制; 同时也会增大原子扩散的阻力, 有利于维持高温强度及微观结构的稳定性。动力学上的迟滞扩散效应, 其机制是晶格畸变增加了原子迁移所需的能垒。在 HEC 内部, 严重的晶格畸变和大量缺陷能够显著降低体系内原子扩散速率, 从而抑制材料的相变、再结晶与晶粒生长过程。性能上的鸡尾酒效应指 HEC 的性能并非单个元素特性的简单叠加, 而是源于元素间的非线性相互作用, 能够达到“1+1>2”的效果。

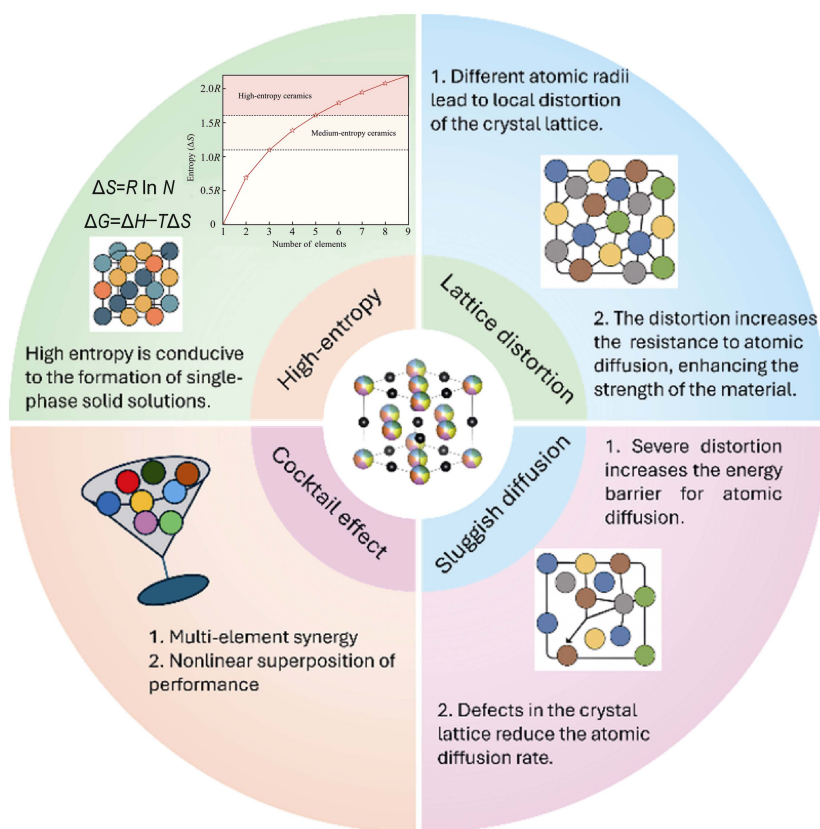


图 2 高熵材料的四大效应

Fig. 2 Four major effects of high-entropy materials

1.2 高熵陶瓷研究存在的挑战

当前, HEC 在高温热防护、核能安全、能源转换等领域具有广阔的应用前景, 但其研究仍存在巨大的困境与挑战, 可归纳为三个方面: 材料体系的复杂性与传统试错法的局限性, 高熵机制与构效关系不明晰, 以及制备工艺与工程化应用的瓶颈。

HEC 的研究面临多维度挑战, 其核心问题源于材料体系的复杂性。HEC 通常由 5 种及以上元素组成, 其成分空间呈指数级增长。以常见的 9 种过渡族金属元素以及 C、N、O、B 等阴离子元素为例, 传统试错法难以有效覆盖所有组合。此外, 从粉末制备、高温烧结到分析表征与方案优化的整个过程, 单次实验周期长达 1~2 周, 对某一特定材料体系的优化往往会陷入“边际收益递减”的困境。其次, 高熵机制构效关系的模糊性阻碍了性能的定向设计。在没有明确晶格畸变、高熵效应等核心机制与材料性能的关联时, 设计高性能 HEC 需要通过试错法不断调整成分, 导致效率低下且难以精准调控性能。对于 HEC 的制备, 固相法所需温度较高且易引入杂质^[31-32], 液相法(如溶胶凝胶法、先驱体转化法等)存在制备工艺复杂和储存条件恶劣等问题^[33-34]; 高温烧结可能导致晶粒长大^[35-36], 且烧结参数依赖大量试验。此外, HEC 在极端环境下的考核验证仍然不足, 缺乏长期有效的服役数据。这些问题对 HEC 从实验室合成到规模化应用构成了严峻挑战。

1.3 理论计算在高熵陶瓷研究中的作用

针对上述问题, 研究人员利用多种理论计算方法对 HEC 进行了深入研究, 尤其在解决体系复杂性、构效关系模糊性以及制备与工程化应用受限等方面, 取得了显著成效。

首先, 机器学习结合高通量计算可以弥补实验试错法的不足, 高效筛选形成稳定相的成分空间。通过构建包含多种描述符的模型, 可以预判单相形成条件与固溶体稳定性, 显著降低实验试错成本。其次, 通过建立从电子结构到宏观性能的跨尺度关联, 理论计算能够揭示高熵机制的构效关系, 例如分析晶格畸变对热导率的抑制效应和位错运动对力学性能的调控规律。最后, 通过模拟烧结、扩散等非平衡过程, 可以预测热力学与动力学过程以及缺陷演化, 从而优化制备工艺。

2 理论计算方法概述

理论计算已成为 HEC 领域加速材料设计与性

能预测的重要工具^[37-42]。常见的方法有第一性原理计算(First-principles calculation, FPC)^[43]、分子动力学模拟(Molecular dynamics simulation, MDS)^[44]、蒙特卡罗模拟(Monte Carlo simulation, MCS)^[45]、相图计算技术(Calculation of phase diagrams, CALPHAD)^[46]、机器学习(Machine learning, ML)^[47]等。相关理论计算方法的发展历程如图 3 所示。虽然高通量计算(High-throughput computing, HTC)^[48]和描述符(Descriptor)^[39]不是独立的计算方法, 但其本质是基于理论计算的大规模研究范式, 广泛应用于 HEC 材料研究, 因此在本章节中也进行介绍。

本章节主要概述不同理论计算方法的概念、核心机制及其在 HEC 领域的应用, 并对比分析了不同计算方法的核心机制、优势、局限性及应用场景等, 如表 1 所示。在 HEC 这一复杂多元体系中, 这些研究方法并非孤立, 而是紧密关联, 构成一个多尺度协同的研究框架。例如, FPC 的结果可以作为 MDS 中势函数拟合的参数, 或为 CALPHAD 提供热力学数据; HTC 生成的海量数据可以用于训练 ML 模型, 从而快速筛选有潜力的材料体系。

2.1 第一性原理计算

FPC 基于量子力学基本原理, 不依赖经验参数, 而是直接从原子和电子尺度预测材料性质。其核心在于通过计算求解薛定谔方程, 来预测材料的微观结构及其物化特性。该方法的基础是密度泛函理论(DFT), 通过求解 Kohn-Sham 方程, 将多电子问题转化为有效势场中的单电子问题, 从最根本层面揭示物质特性的内在起源, 从而实现对新材料的设计和性能预测。

在 HEC 研究中, FPC 是揭示多元复杂体系微观机制的重要工具。其核心应用包括: 预测固溶体稳定性与新结构的形成; 揭示晶格畸变强化、电子结构调控等规律; 模拟缺陷、界面及极端环境下的行为^[49-51]。该方法的优势在于从原子尺度阐明“高熵成分-无序结构-优异性能”的内在关联, 为设计耐高温^[52]、抗腐蚀^[53-54]等新型 HEC 提供理论支持。

2.2 分子动力学模拟

MDS 基于牛顿力学, 通过数值求解原子/分子的运动方程, 模拟其在特定力场作用下的运动轨迹, 从而关联材料微观结构与宏观性质。计算过程包括: 构建初始模型, 设定研究对象的边界条件, 保持目标系综(如 NVT、NPT), 跟踪轨迹并进行统计平均, 最终提取径向分布函数、均方位移等参数, 以分析材料的结构稳定性、扩散行为及力学性能等。

表 1 不同理论计算方法的机制、尺度适用性、优势、局限性及应用场景的对比

Table 1 Comparison of mechanisms, scale applicability, advantages, limitations, and application scenarios of different theoretical computing methods

Method	Mechanism	Spatial scale	Time scale	Advantage	Limitation	Application
FPC	Quantum mechanics	Atomic/electronic scale (angstrom)	Femtosecond to picosecond level	High accuracy without empirical parameters	High computational cost and limited system size	Electronic structures, interface mechanisms
MDS	Newtonian mechanics and force fields	Nanoscale	Picosecond to microsecond level	Simulation of kinetic processes	Highly dependent on accuracy of the potential function	Mechanical properties, diffusion behavior
MCS	Probability sampling	Atomic to macroscopic scale	Equilibrium state	Exploring equilibrium state processes	Inability to simulate kinetic processes	Phase equilibrium prediction, formation energy calculation
CALPHAD	Gibbs free energy	Macro system	Thermodynamic equilibrium state	Predicting phase diagrams	Calibration dependent on experimental data	Phase diagram calculation, component optimization
ML	Algorithm and data-driven	Multi-scale	Instantaneous prediction	High-throughput screening and resolving complex associations	Weak model interpretability	Performance prediction, component optimization

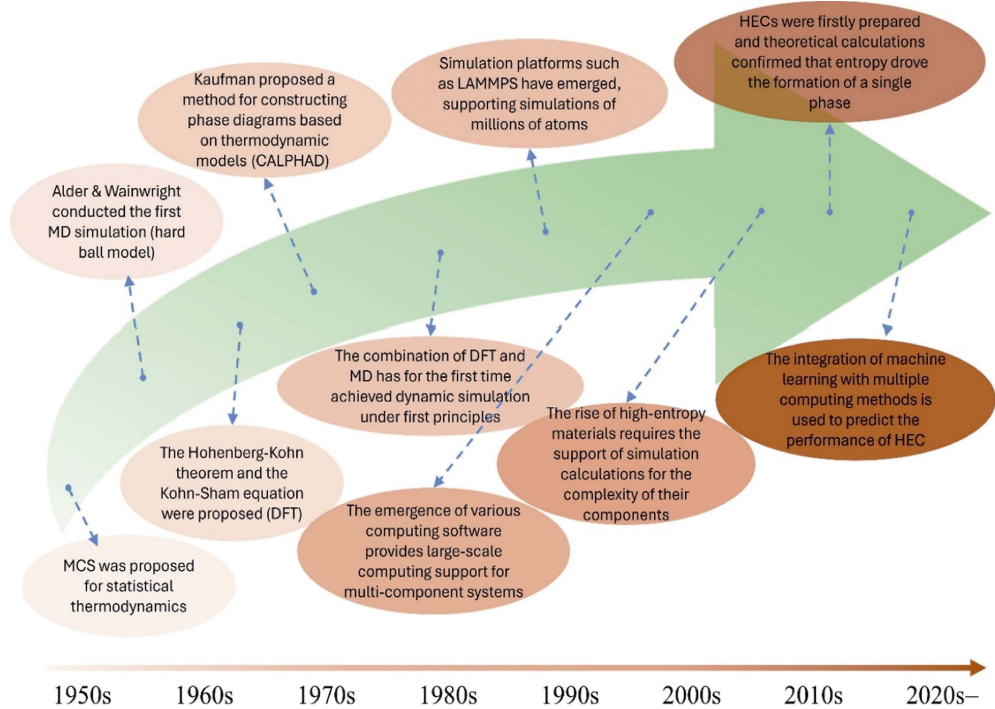


图 3 相关理论计算方法的发展历程

Fig. 3 Development history of relevant theoretical calculation methods

在 HEC 研究中, MDS 通过解析多主体体系的复杂相互作用, 为成分设计与性能优化提供关键依据。其核心应用包括: 预测相结构和稳定性; 计算弹性常数和模量等, 评估材料力学性能; 模拟升温过程, 研究高温下晶粒生长等行为^[55-57]。该方法克服了实验观测的时空限制, 通过构建多主体模型并运用特定力场, 可高效预测扩散系数和弹性常数等关键参数, 为筛选最优成分提供支持, 推动 HEC 从

经验试错向理论指导设计的转变。

2.3 蒙特卡罗模拟

MCS 是一种基于概率统计的数值方法, 通过大量随机抽样和统计分析模拟复杂系统的行为。其核心是将研究对象抽象为概率模型, 定义状态空间与状态转移规则, 利用随机数模拟系统演化。

MCS 的核心应用包括: 模拟原子在晶格中的随机占据, 预测相稳定性与固溶体形成; 计算空位形

成能,分析成分均匀性与缺陷热力学;模拟表面重构与吸附,优化表面/界面性质^[58-59]。通过统计平衡态样本的平均值或概率分布,MCS能高效求解平衡态热力学性质。该方法在处理高维状态空间和复杂相互作用方面具有显著优势,适用于研究实验难以实现的高温环境和多主元交互作用,为成分设计提供指导,降低实验试错成本。

2.4 相图计算技术

CALPHAD通过整合热力学理论与实验数据,定量计算材料相图及热力学性质。其核心是基于热力学平衡条件,构建合金体系中各相的吉布斯自由能模型,从而求解多相平衡时的成分-温度关系。基本流程包括:建立各相的热力学参数表达式,通过实验数据(如相图、热容)优化参数,形成自洽的热力学数据库,最终预测相图、相变行为及热力学性质。

在HEC研究中,CALPHAD通过构建各相的吉布斯自由能模型来解决多组元体系相平衡关系复杂的难题,精准预测相组成、相变温度及热力学稳定性,为成分筛选、烧结工艺优化(避免有害相)及显微组织调控提供理论依据。CALPHAD的优势在于突破复杂体系的限制,仅需少量关键实验数据即可构建自洽的热力学数据库。与传统试错法相比,该方法可显著减少实验数量,降低研发成本,尤其适用于探索熵稳定固溶体的形成和高温相演变规律,有效推动HEC的工程化应用。受限于现有相图数据库,CALPHAD在HEC领域的研究较少^[60]。

2.5 机器学习

ML是人工智能的一个分支,通过计算机分析数据,自主学习规律,进而做出预测或决策,无需人工编写明确具体的规则。其核心思想是利用算法从数据中提取模式,并不断优化模型以提升效能。其具体工作流程包括数据收集、数据库建立、特征工程(核心是构建物理意义明确的描述符)、模型训练与选择、模型应用以及实验验证等。

在HEC研究中,ML的核心思路是将传统试错法转变为数据驱动的研究范式。它利用描述符将材料特性转化为可计算和量化的特征,通过处理研究人员难以直接分析的复杂数据,挖掘成分、工艺与性能之间的潜在关联,建立预测模型,辅助筛选材料体系和成分区间,从而极大缩小实验范围并降低研发成本。ML与其他理论计算方法深度融合,显著加速了新材料的研发。FPC为ML模型生成可靠的训练数据^[61],经过训练的ML模型能够以接近计算的精度预测新成分的性质,实现高通量初筛。ML

与MDS结合,可开发基于ML势函数的分子动力学模型,克服经典MDS使用经验化参数的缺陷,在保持接近计算精度的同时,高效模拟数万原子、纳秒尺度的体系^[62-63]。

2.6 高通量计算

HTC本身并不是一种孤立的计算方法,而是一种结合了理论计算、自动化和大数据分析的研究范式,其本质是通过搭建标准化的计算框架,系统性、大规模地执行计算任务,从而快速筛选体系并预测材料性能。

HEC的核心特征是其广泛的成分空间(多种元素在多个晶格位点上的排列组合),材料体系涵盖从原子到宏观的多个尺度。HTC可以串联不同的理论计算方法,从而实现HEC材料体系的高效筛选与性能预测。常见的方法是将HTC与ML结合,前者高效探索成分空间并降低成本,后者解析复杂耦合效应,从而精准预测关键特性^[64]。在原子和电子尺度,HTC与FPC相结合可以进行大量的形成能、电子结构和本征力学性质的高精度计算^[65];在宏观热力学层面,HTC也为CALPHAD方法提供了关键数据支撑。多种方法融合,极大地推动了复杂材料体系的理性设计与加速发现。

2.7 描述符

HEC描述符是一系列用于表征HEC体系特征的物理或化学参量。这些描述符是从构成HEC的组分元素的本征属性中提炼出来的量化指标,可能是经验的、统计的,或基于量子力学原理计算得到的。其核心目的是将复杂的定性材料性质转化为可计算、可比较的数值特征。描述符是连接材料本征特性与ML模型的桥梁,它不仅服务于传统的经验模型,更是ML模型的核心输入特征。

常见的描述符有熵形成能力描述符(EFA)^[66]、晶格尺寸差异参数(δ)^[67]、价电子浓度(VEC)^[68]、无序熵描述符(DEED)^[69-70]、混合熵描述符(MEED)^[71]、Goldschmidt容忍因子(t_G)^[72-73]、尺寸无序参数($\delta \cdot \text{size}$)^[74]等。在ML流程中,这些描述符通过特征工程被组合或转换,以优化模型的预测能力,在HEC体系的可合成性和稳定性方面发挥着重要作用,为ML驱动的材料设计提供可解释性。

3 理论计算在高熵陶瓷研究中的具体应用

前文概述了常见的理论计算方法,对比了这些

方法的核心机制、优势、局限性以及应用场景。本章节将聚焦理论计算在 HEC 研究中的具体应用场景, 深入阐释相关方法在材料设计、稳定相评估、性能预测等环节发挥的关键作用。

3.1 相稳定性预测

通过计算形成能、混合焓等参数, 理论计算能够预测产物能否形成单相固溶体, 进而指导实验设计及优化合成条件, 降低多组元体系的研发成本。

Sarker 等^[66]首次通过 EFA 理论, 结合高通量 FPC, 研究了由 8 种过渡金属元素(Hf, Nb, Mo, Ta, Ti, V, W, Zr)构成的 56 种五元高熵碳化物的 EFA, 结果如图 4(a)所示。按 EFA 高低筛选出 9 种体系进行实验验证, 结果表明, 高 EFA 体系均形成单相结构, 而低 EFA 体系则存在第二相。该研究成功设计并制备出兼具高强度和低热导的 HECCs, 体现了“理论预测-实验验证”在新材料体系开发中的优势。进一

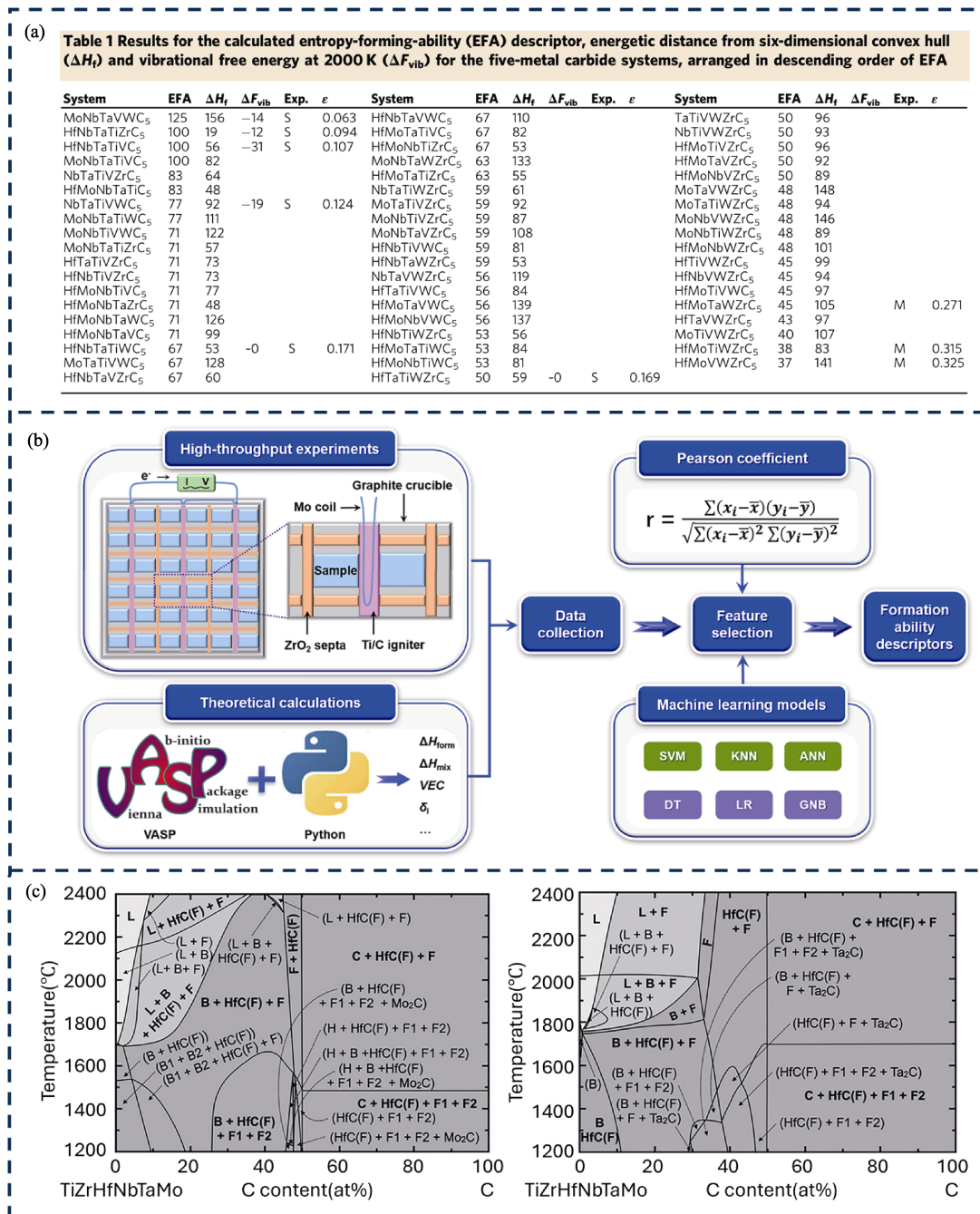


图 4 相结构预测相关的研究工作^[66, 76, 82]

Fig. 4 Researches on phase structure prediction^[66, 76, 82]

(a) EFA of 56 kinds of high-entropy ceramics calculated by FPC^[66]; (b) Flowchart of the HEBs formation capability descriptor prediction model^[76]; (c) Pseudo-binary phase diagrams for (Ti-Zr-Hf-Nb-Ta)-C and (Ti-Zr-Hf-Nb-Ta)-C^[82]

步地, Divilov 等^[69]针对 HEC 实验驱动效率低及仅碳化物可计算预测的现状, 提出“功能可合成性”的概念, 构建了 DEED, 通过平衡熵增与焓损量化 HEC 的单相形成能力, 成功预测并实验合成新型单相高熵碳氮化物和硼化物, 为 HEC 的计算驱动发现提供了高效工具。Dey 等^[71]利用提出的 MEED 将材料体系扩展至 2D 层状硫化物, 为设计新型 HEC 提供了更为普适的工具。

在新体系 HEC 的设计过程中, ML 发挥着重要作用。褚衍辉团队提出了一种结合高通量实验、计算与 ML 的研究方法, 成功应用于高熵碳化物(HECs)^[75]、高熵硼化物(HEBs)^[76]、高熵稀土单硅酸盐(HEREMs)^[77]的高效探索。该团队分别通过自主研发的高通量合成技术制备了 91 种 HECs、70 种 HEBs 以及 132 种 HEREMs 样品, 并利用计算、ML 及遗传算法从数十个潜在描述符中筛选出预测材料形成能力的关键描述符组合。以 HEBs 为例, 图 4(b)展示了 HEBs 形成能力描述符预测模型的流程图, 其模型验证准确率均达到极高水平(HECs: 93.4%; HEBs: 97.1%; HEREMs: 96.2%, 100%)^[76]。这些工作不仅为不同体系的 HEC 建立了精准的预测模型, 揭示了关键物理化学因素的核心作用, 同时还预测了数千种潜在的新型高熵化合物, 充分验证了该研究范式在加速高熵材料发现与设计方面的普适性。Mitra 等^[78]和 Zhang 等^[79]也进行了相关研究, 为预测 HEC 相结构提供了可借鉴的模型。

高熵碳化物的合成通常需要较高温度, 而单相产物形成的温度仍为未知。为解决这一问题, Pak 等^[80]通过正则 MCS, 确定了单相和多相样品形成的温度条件, 并利用电弧等离子体法在 2000 K 成功合成单相 HEC, 在 1200 K 以下观察到样品分解为 (Ti-Nb-Ta)C 及多种 Zr-Hf 基碳化物混合相。该研究为多组分材料的靶向合成提供了新思路。Liu 等^[81]通过 CALPHAD 计算了 (VNbTaMoW)_{0.5}C_x 体系的相图, 预测了形成单相的温度区间, 并合成了高熵碳化物陶瓷, 筛选出具有优异力学性能的四元(4 种)和三元(6 种)单相碳化物陶瓷。这充分体现了 CALPHAD 方法在组分设计和性能预测中的作用。Arai 等^[82]也通过 CALPHAD 计算方法设计了适用于熔体渗透的 Ti-Zr-Mo 合金。如图 4(c)所示, 利用该方法得到的相图可用于筛选合金成分和碳的范围, 形成目标高熵碳化物, 制备出 HEC 基复合材料, 在 2000 °C 以下依靠复杂的氧化产物实现高效抗氧化, 为超高温应用提供一条新的路径。

上述不同计算方法能够初步预测相结构、单相

的形成能力及亚稳相存在的可能性, 但由于当前计算精度的限制, 难以对多组元体系的化学无序结构进行精确建模。

3.2 物理性能模拟

通过第一性原理、分子动力学等计算方法, 研究人员可以避免高成本实验, 直接预测 HEC 的热学、力学以及电学性能, 揭示微观结构与宏观性能的联系, 指导材料设计与优化。

Lu 等^[83]通过第一性原理计算了不同成分比例的 (TiZrNbTaMo)C 的弹性常数, 得到每个体系的体积模量 B 、剪切模量 G 、杨氏模量 E 、泊松比 ν 以及 VEC, 并绘制了“成分-结构-性能”相关性热图, 如图 5(a)所示。计算结果表明, 添加 Ti 元素有利于提高硬度和模量, 而添加 Mo 元素则效果相反。随后, 通过碳热还原反应制备的 (Ti_xZr₂Nb₂Ta₂Mo_{4-x})-C_{10-y} ($x=1, 2, 3$) 验证了第一性原理计算的预测趋势。

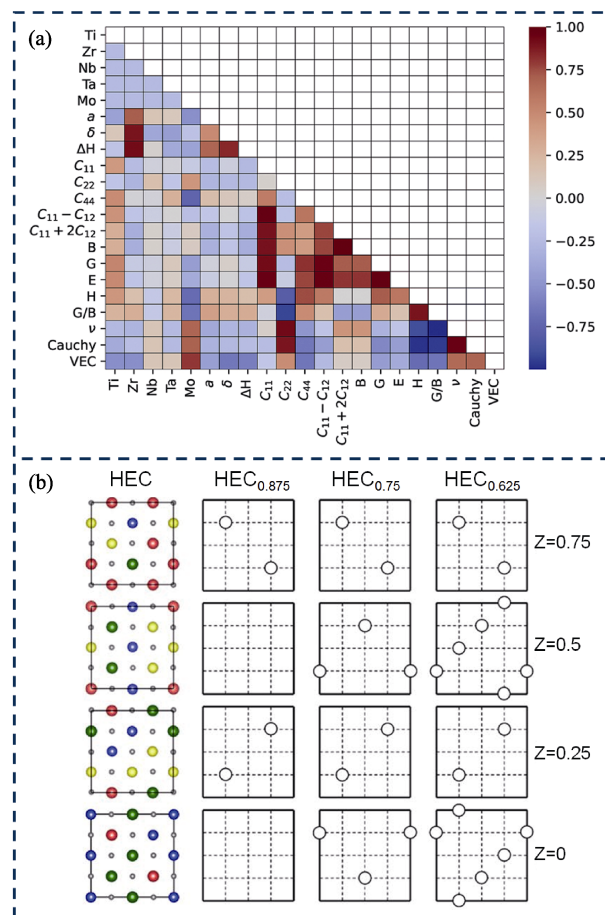


图 5 高熵陶瓷的结构表征与性能关联研究^[83, 85]

Fig. 5 Researches on structural characterization and performance correlation of high-entropy ceramics^[83, 85]

(a) “Composition-structure-elastic properties” correlation heatmapping of (TiZrNbTaMo)C^[83], (b) Spatial schematic diagrams of high-entropy ceramic components with different carbon vacancy concentrations^[85]

Song 等^[84]通过调节碳空位来改善 $(\text{Zr}_{0.25}\text{Hf}_{0.25}\text{Ta}_{0.25}\text{Nb}_{0.25})\text{C}_x$ 的形成能力、烧结性能及力学性能, 但由于传统试错法的局限性, 仅研究了 $x=1, 0.8, 0.6$ 的情况。而理论计算可以扩展研究更多的成分空间。例如, Bai 等^[85]利用 FPC 系统研究了不同碳空位浓度(成分空间如图 5(b)所示)对高熵碳化物 $(\text{HfTaZrNb})\text{C}_{1-x}$ 的电子结构、力学和热学性质的影响机制, 弥补了传统试错法和高温实验操作困难的缺陷, 为实验合成提供了理论依据。

在揭示 HEC 的微观机制和性能预测方面, 褚衍辉团队成功地将基于 ML 势函数的 MDS 应用于

HECs^[86]和 HEBs^[87]体系。在针对 HECs 的研究中, 该团队构建了一个具有出色成分迁移性的神经进化势(图 6(a)), 该势函数仅需依赖小型数据集进行训练, 即可高效、准确地预测多种 HECs 的力学与热学性能, 为高通量筛选目标材料提供强大的工具^[86]。而在以 HEBs 为对象的机理研究中, 该团队则结合 ML 势函数的 MDS 与实验验证, 明确指出晶格畸变是导致 HEBs 晶格热导率显著降低的主要机制, 并揭示了其通过散射声子和降低声子速度等路径影响热输运过程的物理本质^[87]。这两项工作为设计与筛选高性能 HEC 提供了全面指导。

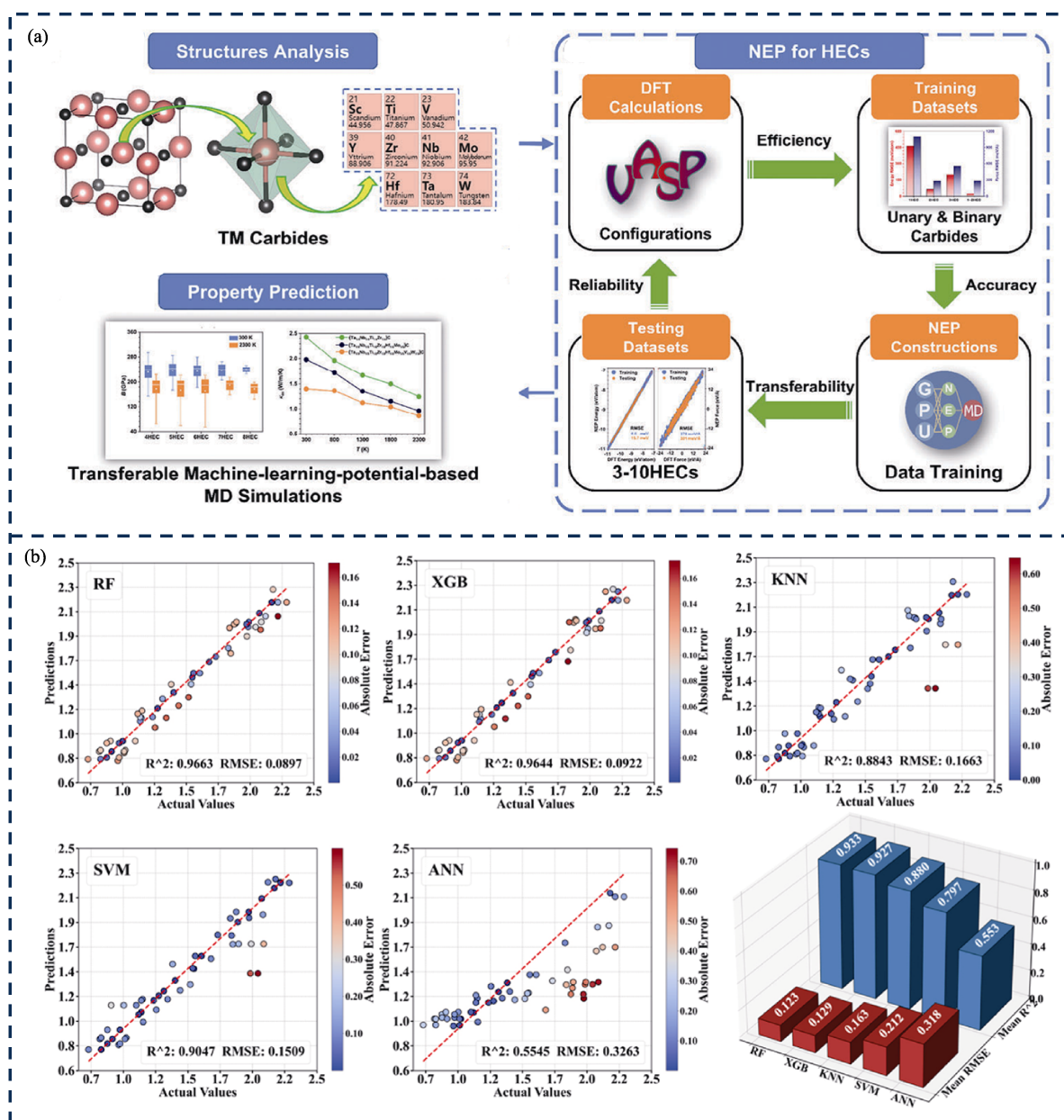


图 6 机器学习驱动的高熵陶瓷物理性能模拟与预测方法研究^[86, 88]

Fig. 6 Researches on simulation and prediction methods of physical properties of high-entropy ceramics driven by machine learning^[86, 88]
(a) Schematic of transferable machine-learning-potential-based MDS for HECs^[86]; (b) Performance of five ML models^[88]

为预测 $A_2B_2O_7$ 型 HEC 的热导率, Wen 等^[88]提出了一种结合多维各向异性交互技术(DAFI)与 ML 的方法。利用 DAFI 生成 594 种特征组合, 筛选出与热导率强相关的交互特征, 并基于这些特征构建了五种 ML 模型, 如图 6(b)所示。通过实验合成了三种 HEC 以验证这些模型, 预测误差均 $<5\%$, 证实了特征组合对提升预测精度的重要性。该研究为高效设计低热导率 HEC 提供了新路径。

为设计兼具高硬度和良好导电性的高熵十二硼化物陶瓷, Zheng 等^[89]提出了一种反直觉设计策略。首先通过计算晶格参数与形成能, 验证形成高熵固溶体的可行性, 进而预测其高硬度的力学特性和金属性的电子结构, 指出三维硼网络是维持高电导率的关键通道。这些计算结果为材料设计提供了理论依据, 并揭示了材料在提升硬度的同时不影响电导率的微观机制, 为实验合成与性能优化奠定了坚实的理论基础。Cui 等^[90]也开展了关于高熵十二硼化物的相关研究, 解决了传统材料中硬度与导电性的矛盾。

在实验合成前, Zheng 等^[91]通过理论计算模拟材料性能。模拟结果表明, Nb/Ta 含量高的 HECCs 具有更优的强度、刚度、高温体积模量和更低的热膨胀系数, 而 Ti/Hf 含量高的 HECCs 则表现出更高的硬度和脆性。部分计算结果得到了实验验证。Zeng 等^[92]通过 FPC 结合高压实验, 研究了 $Ti_{0.2}Zr_{0.2}Nb_{0.2}Mo_{0.2}Ta_{0.2}C_x$ 的电子结构和超导性。计算结果显示该材料的电子结构中存在类狄拉克点 (-0.75 eV), 主要来源于过渡金属 d 轨道与碳 p 轨道的杂化, 且自旋轨道耦合未完全破坏该特征。实验证实该材料具有 II 型超导性(最高居里温度 $T_c \approx 4$ K), 比热跳变和弱电子-声子耦合符合 Bardeen-Cooper-Schrieffer(BCS)机制。这项工作拓宽了 HEC 在拓扑超导体研究中的应用, 也为设计量子器件提供了新的材料体系。

以上研究表明, 理论计算能够建立起成分-微观结构-性能之间的联系, 指导材料的设计, 但对于多元素耦合效应的量化以及极端环境下性能预测仍较为困难。

3.3 扩散行为与原子尺度机制研究

理论计算通过多尺度模拟, 从原子角度揭示 HEC 的氧化、扩散、吸附等行为机制, 阐明晶格畸变与高温原子迁移规律, 从而指导材料的烧结工艺优化及高温稳定性设计。

Liu 等^[93]通过 FPC 与 MDS, 首次揭示了 $(Zr_{0.25}Ti_{0.25}Nb_{0.25}Ta_{0.25})B_2$ 的初始氧化机制, 阐明了氧分子自发解离吸附与氧扩散的原子级路径。该研

究还对比了四种单组元二硼化物的吸附能与扩散势垒(图 7(a)), 指出可以通过调控金属元素种类来优化 $(Zr_{0.25}Ti_{0.25}Nb_{0.25}Ta_{0.25})B_2$ 的抗氧化性, 为设计高性能抗氧化材料提供了新视角。

Fan 等^[94]通过第一性原理解决了 $(TiZrHfNbTa)C$ 形貌演化的微观机制问题。通过计算不同晶面的表面能差异, 并进行表面重构模拟揭示了 Nb 元素的偏析与核壳结构形成机理。结合混合焓与扩散动力学, 阐明了 IV 族(Ti/Zr/Hf)与 V 族(Nb/Ta)元素在反应序列中的竞争机制, 揭示了形貌与性能之间的关联, 从而有效弥补了实验无法直接观测的微观过程。

Li 等^[95]针对 HECCs 在高温氧化环境中的应用瓶颈, 提出了一种成分优化策略。首先通过 FPC 研究氧原子在不同吸附位点的吸附能, 从原子尺度阐明元素选择性氧化机制; 然后通过遗传算法高效筛选出最优成分区间, 避免传统试错法的盲目性; 最后通过 MDS 分析 $(NbTaZrHf)C$ 在 1200 K 下的氧化过程。这项工作将计算与实验相结合, 为加速开发抗氧化 HECCs 提供了可借鉴的经验。同样地, Ye 等^[96]也将 FPC 与实验相结合, 研究了 $(MoNbTaVW)Si_2$ 的热稳定性和抗氧化性能。该研究揭示了高熵效应的双重作用, 即迟滞扩散效应与选择性氧化。如图 7(b)所示, 仅存在 Si 氧化形成连续的 SiO_2 保护层, 解决了传统二硅化物在 500~1000 °C 的氧化难题。

以上研究表明, 利用多尺度模拟, 理论计算能够揭示原子的迁移机制, 预测材料的微观结构, 进而指导材料的设计, 但受限于算力, 理论计算的时间尺度远远小于实际过程, 从而制约了模拟的精度。

3.4 数据驱动辅助材料设计

基于 ML 的数据驱动方法不仅可以预测 HEC 的相结构, 还可以指导材料的设计与合成, 预测特定组分下材料的性能, 优化制备工艺, 并建立“组分-结构-性能”之间的联系, 从而显著缩短新材料体系的研发周期。

为解决 HECs 在高温应用中因热膨胀系数(CTE)失配导致材料失效问题, Kim 等^[61]通过高通量计算生成 3360 个数据点, 并筛选出 24 个关键特征训练随机森林(RF)和神经网络(NET)模型。该研究成功预测了 HECs 的 CTE, 并发现结合能(H6)、体模量(H9)、杨氏模量(H11)是影响 CTE 的三大关键因素(图 8(a)为基于表征参数对 CTE 重要性的预处理)。RF 和 NET 模型预测精度高, 仅依赖 3 个参数即可实现大于 97% 的预测精度, 大幅降低了计算成本, 为设计低 CTE 材料提供了新的研究范式。

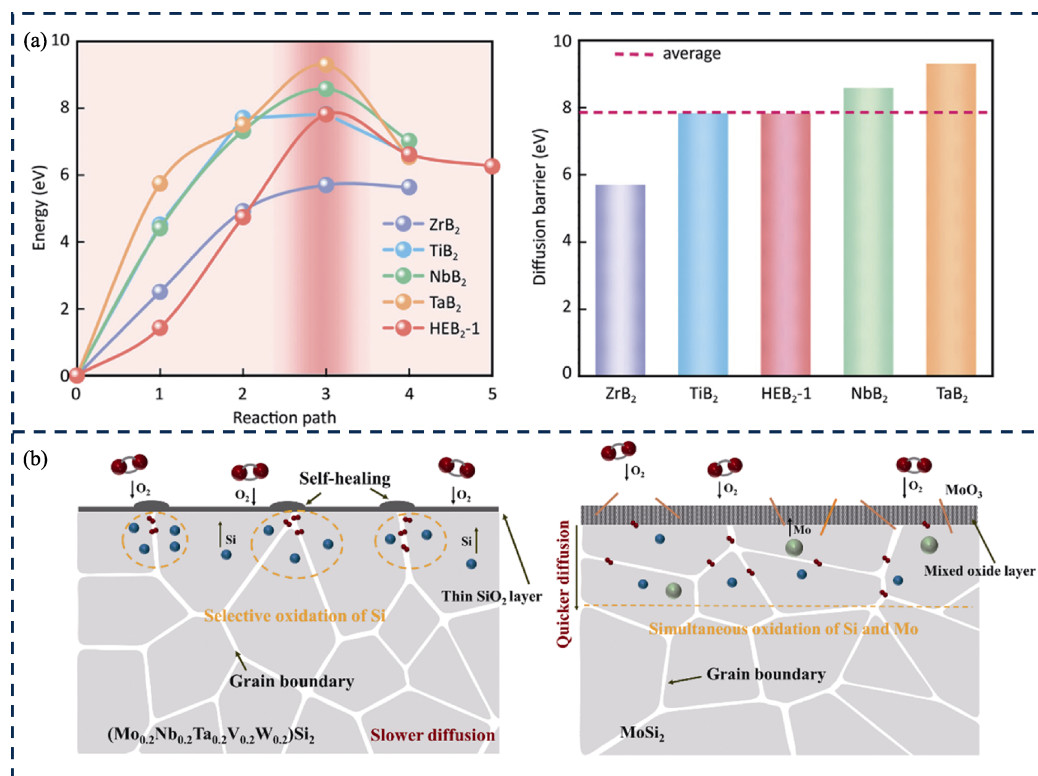


图 7 扩散行为与原子尺度机制相关的研究工作^[93, 96]

Fig. 7 Researches on diffusive behavior and atomic scale mechanisms^[93, 96]

(a) Adsorption energy and diffusion barrier of high-entropy diborides and four single-component diborides^[93];
(b) Simplified schematic diagrams of oxidation mechanism of (Mo_{0.2}Nb_{0.2}Ta_{0.2}V_{0.2}W_{0.2})Si₂ and MoSi₂^[96]

HEC 作为极端环境服役的特种材料, 其硬度设计与预测同样重要。Zhou 等^[97]基于 119 组数据, 筛选出梯度提升决策树模型, 测试集 R^2 达 0.876, 文献数据和新实验数据的平均验证误差分别为 2.9% 和 6.5%, 成功开发了 HEBs 的硬度预测模型。如图 8(b)所示, 对硬度影响最大的因素依次为: 平均质量($\bar{m}$)、平均电子亲和力($\bar{E}_a$)、平均电离能($\bar{E}_I$)、相对密度(K)以及制备工艺参数(Syn)。例如, 添加 Mo 元素使得 m 从 146.2 降低到 137.5, (Hf_{0.25}Zr_{0.25}Ti_{0.25}Ta_{0.25})B₂ 硬度提高了 7%。该研究首次将 Syn 与描述符共同纳入特征空间, 强调了制备工艺的关键作用, 实现了成分/工艺的协同优化。

不仅局限于 HECs、HEBs, 高熵氮化物(HENs)同样具有优异的性能。Zhou 等^[98]提出了一种基于数据增强生成对抗网络驱动的 ML 策略(图 8(c)), 用于预测 HENs 的硬度、模量以及耐磨性。该研究在小样本条件下实现了性能预测, 并首次解释了元素差异度对性能的主导作用, 成功预测出 7 种未合成的超硬 HENs。类似地, Xu 等^[99]利用 ML 结合高通量实验的方法, 预测并制备了一种超硬 HENs 涂层, 该涂层成为现有报道中硬度最高的五组元陶瓷体系(图 8(d))。

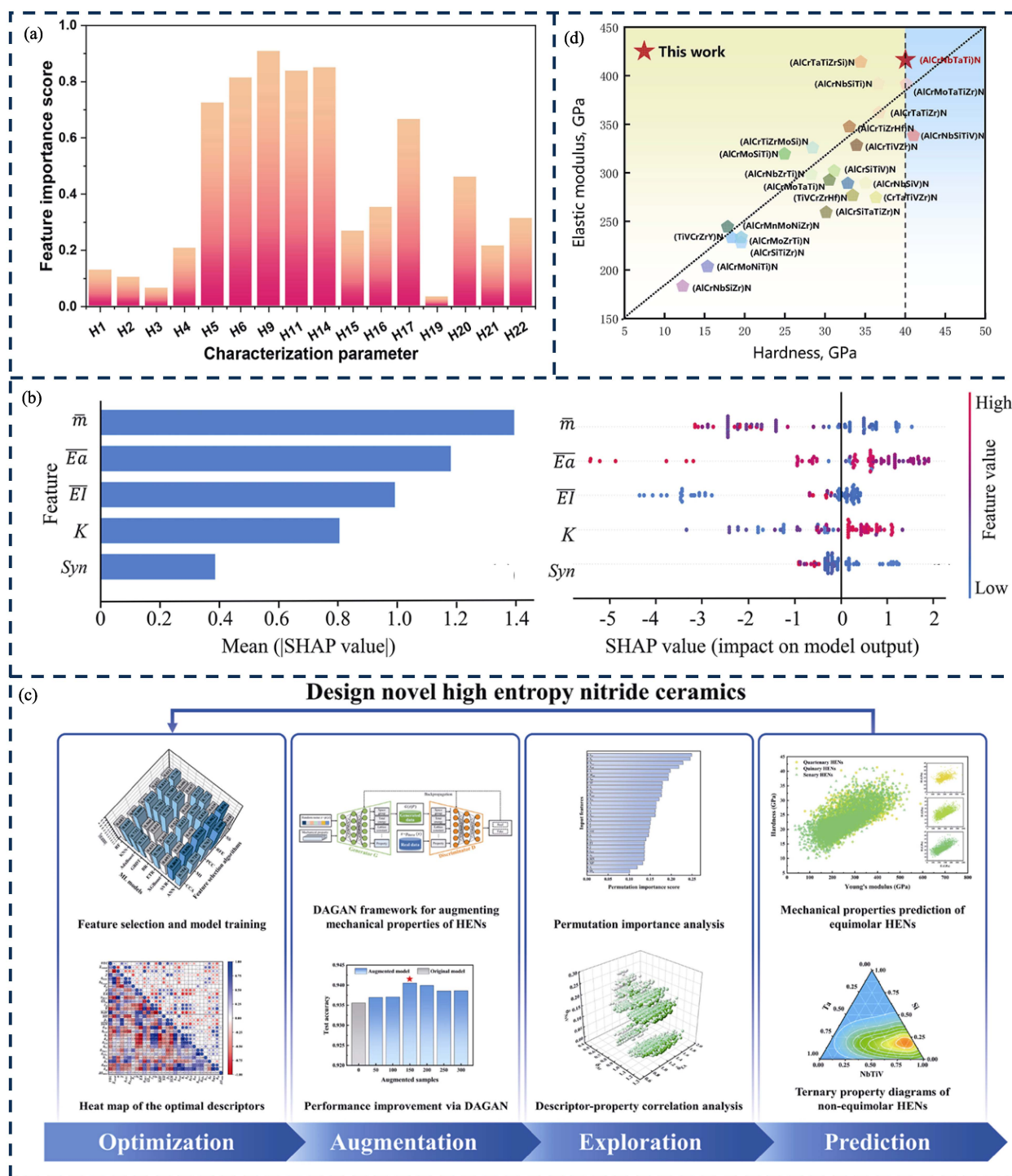
综上所述, 基于 ML 的数据驱动方法在设计和制备具有优异性能的不同体系 HEC 方面展现出巨大潜力。

4 理论计算存在的问题

HEC 因其独特的高熵效应和优异的性能潜力而备受关注。理论计算在形成机制、预测性能、筛选成分和指导实验设计等方面发挥着重要作用。然而, 当前研究仍面临若干不容忽视的问题, 主要体现在以下几个方面。

(1) 体系复杂性与计算精度的矛盾

HEC 通常由五种或五种以上元素组成, 其原子排列呈现高度无序性, 这使得传统理论模型难以准确描述其复杂的结构特征。而精确描述所有可能构型需要巨大的计算量, 即使是中等规模的超胞, 其可能的构型数量也随着元素和原子数量呈指数级增长。高精度的 FPC 和 MDS 受限于计算成本, 通常只能处理数百至数千原子体系, 且时间尺度局限于皮秒至飞秒量级, 现有的计算能力难以弥补从精确计算到宏观性能预测之间的巨大差距。因此, 提升算力或研发更高效的算法是提高模拟计算精度

图 8 数据驱动辅助材料设计相关的研究工作^[61, 97-99]Fig. 8 Researches on data-driven assisted material design^[61, 97-99]

(a) Preprocessing of characterization parameters based on their importance relative to CTE^[61]; (b) Ranking of features which have the greatest impact on hardness^[97]; (c) ML-assisted design strategy for prediction of mechanical properties and descriptor-property correlation analysis of HENs^[98]; (d) Comparison of mechanical properties of high-entropy ceramic coatings^[99]

的关键途径。

(2) 高质量数据集的稀缺

ML 模型的开发与性能高度依赖于高质量、大规模的数据集。目前, 在 HEC 领域, 理论计算与实验数据存在一定局限性, 且缺乏统一标准, 制约了

模型的泛化能力与可靠性。在计算数据方面, 尽管近年来 ML 势函数的发展已极大地丰富了数据集, 但大多数 ML 模型主要集中在几种特定的结构上, 未能涵盖 HEC 结构的多样性。相比之下, 实验数据的稀缺问题更为突出。现有的实验研究通常关注单

相陶瓷,而多相陶瓷的相关数据往往会被忽略,导致 ML 模型的数据不平衡^[47]。此外,关键工艺参数的缺失进一步影响了数据集的质量。刘娟等^[100]通过建立 ML 模型设计并制备了高熵氮化物陶瓷,但烧结温度、制备方法、孔隙率等关键工艺参数未被记录,这影响了模型对特征与性能的关联,降低了数据集的质量。因此,建立标准范式,构建高质量数据库有利于推动 ML 模型的开发。

(3)微观结构与宏观性能的关联模糊

HEC 的性能提升通常得益于熵增效应、晶格畸变及价电子浓度等微观机制,但理论计算在揭示这些微观结构及其对宏观性能的影响时面临巨大挑战。Wei 等^[101]通过化学短程有序(SRO)策略,设计了 Nb 掺杂的 $(\text{Bi}_{0.2}\text{Na}_{0.2}\text{K}_{0.2}\text{La}_{0.2}\text{Sr}_{0.2})\text{TiO}_3$ 高熵弛豫铁电材料,解决了陶瓷电容器能量储存密度低的问题。然而,SRO 的验证仅依赖于间接推测(DFT 计算与局部透射电镜观测),未考虑实际界面效应和缺陷等因素,缺乏跨尺度的验证。Wang 等^[49]通过 DFT 计算研究了 $(\text{TiZrHfVNb})\text{C}_5$ 在 0~100 GPa 高压下的结构稳定性、力学行为和电子结构等,但对于材料硬度下降以及脆-韧转变的预测缺乏明晰的理论解释与实验验证。因此,要想建立微观与宏观的桥梁,需要融合多个尺度的模拟。Zhang 等^[102]首次将 CALPHAD、ML 以及关键实验相结合,解决了 $(\text{Ti,Zr,Hf})\text{C}$ 陶瓷固有的硬度-韧性的权衡问题,实现了材料“成分-工艺-性能”的定量预测。实验表明,时效处理诱导的纳米结构演化与位错协同作用使硬度(27.26 GPa)和断裂韧性($3.47 \text{ MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$)分别提升了 32%和 80%,揭示了微观变形机制对宏观性能的贡献。

5 结论与展望

HEC 凭借其独特的“高熵效应”,展现出超越传统陶瓷的优异综合性能,在航空航天、能源系统、核反应堆等关键领域展现出巨大的应用前景。然而,由于其成分复杂性与结构无序性,传统研究方法面临瓶颈。理论计算的发展,为解决这一核心难题提供了强有力的工具。

本文系统梳理了理论计算方法在 HEC 领域中的关键作用和应用进展,并指出当前理论计算面临的诸多挑战。作为材料设计与性能优化的核心工具,理论计算将会在 HEC 领域发挥更大的作用,今后应重点关注以下几个方面的发展。

(1)高性能计算与先进算法的协同融合

在原子尺度模拟方面,ML 势函数的开发与应用已取得显著进展。但面对 HEC 巨大的成分构型空间,如何在高精度与高效率之间实现统一,仍是当前面临的核心问题。未来需着力推动高性能计算资源与先进算法的深度融合。例如,构建基于主动学习的高效势函数生成框架,利用迁移学习策略将小体系计算精度推广至大体系。通过上述手段,在确保计算精度的前提下突破体系尺寸与时间尺度的限制,为揭示 HEC 的复杂物理本质提供更可靠的理论支撑。

(2)标准化、高质量的数据库构建

ML 模型的性能依赖高质量和大规模的数据集,尽管 ML 势函数的发展在一定程度上丰富了计算数据集,但 HEC 领域的数据库资源仍存在分散化与碎片化等问题。亟需整合高通量计算、高通量实验以及文献中分散的数据,针对 HEC 广阔的“成分-结构-工艺”空间建立系统完善、内容完整的标准数据库,为 ML 模型的构建与优化提供坚实基础。

(3)跨尺度模拟计算的关联交互

为明晰 HEC“成分-结构-性能”之间的内在关联,需整合从原子/电子尺度(如 FPC)、纳米尺度(如 MDS,特别是基于 ML 势函数的方法)、介观尺度直至宏观尺度的多尺度模拟方法。建立有效的跨尺度信息传递机制,将电子结构信息作为底层输入,逐级上推以预测宏观性能,从而构建一个从微观结构到宏观性能的完整理论预测体系。

(4)极端服役环境的精准模拟

针对 HEC 在高温、高压、强辐照及腐蚀等极端环境下的原位实验研究目前仍面临诸多技术瓶颈和安全挑战,发展适用于这些极端条件的模拟计算方法至关重要。例如,开发能够准确描述极端条件下原子间相互作用的热-力-化学耦合势函数,以模拟材料在长时间辐照下的损伤积累与相稳定性。此类模拟研究不仅能够弥补实验研究的不足,更能从原子层面揭示材料在极端条件下的结构演化规律与失效机理,为新型高性能 HEC 的设计提供理论指导。

参考文献:

- [1] HUANG P K, YEH J W, SHUN T T, *et al.* Multi-principal-element alloys with improved oxidation and wear resistance for thermal spray coating. *Advanced Engineering Materials*, 2004, **6**(1): 74.
- [2] CANTOR B, CHANG I T H, KNIGHT P, *et al.* Microstructural development in equiatomic multicomponent alloys. *Materials Science and Engineering: A*, 2004, **375**: 213.

- [3] ROST C M, SACHET E, BORMAN T, *et al.* Entropy-stabilized oxides. *Nature Communications*, 2015, **6**: 8485.
- [4] XIE C Y, MIAO H M, WANG Y F, *et al.* Preparation of $(\text{Zr}_{0.25}\text{Hf}_{0.25}\text{Ta}_{0.25}\text{Nb}_{0.25})\text{C}$ high-entropy ceramic nanopowders via liquid-phase precursor route at a low temperature of 1500 °C. *Ceramics International*, 2024, **50(23)**: 51243.
- [5] XIE C Y, MIAO H M, WAN F, *et al.* Preparation of $(\text{Ti}_{0.2}\text{Zr}_{0.2}\text{Hf}_{0.2}\text{Nb}_{0.2}\text{Ta}_{0.2})\text{C}$ high-entropy ceramic nanopowders via liquid-phase precursor. *Journal of the American Ceramic Society*, 2024, **107(7)**: 5105.
- [6] CUI N, ZHANG Y X, WANG L J, *et al.* Single-phase formation process and carbon vacancy regulation of $(\text{TiVNbMoW})\text{C}_x$ high-entropy ceramics. *Journal of Inorganic Materials*, 2025, **40(5)**: 511.
- [7] BAI Y H, LI J R, LU H, *et al.* Ultrafast high-temperature sintering of high-entropy oxides with refined microstructure and superior lithium-ion storage performance. *Journal of Advanced Ceramics*, 2023, **12(10)**: 1857.
- [8] CHEN G J, LI C W, JIA H M, *et al.* A novel approach for the composition design of high-entropy fluorite oxides with low thermal conductivity. *Journal of Advanced Ceramics*, 2024, **13(9)**: 1369.
- [9] LI W G, LIU D G, WANG K W, *et al.* High entropy oxide ceramics $(\text{MgCoNiCuZn})\text{O}$: flash sintering synthesis and properties. *Journal of Inorganic Materials*, 2022, **37(12)**: 1289.
- [10] LIU D, WEN T Q, YE B L, *et al.* Synthesis of superfine high-entropy metal diboride powders. *Scripta Materialia*, 2019, **167**: 110.
- [11] GILD J, ZHANG Y Y, HARRINGTON T, *et al.* High-entropy metal diborides: a new class of high-entropy materials and a new type of ultrahigh temperature ceramics. *Scientific Reports*, 2016, **6**: 37946.
- [12] YU L Y Y, ZHAO F X, ZHANG S X, *et al.* Preparation of high-entropy boride powders for plasma spraying by inductive plasma spheroidization. *Journal of Inorganic Materials*, 2025, **40(7)**: 808.
- [13] LIU X, LU Y J, XU Q, *et al.* Synthesis of $(\text{HfZrTiNbTa})\text{N}$ powders via nitride thermal reduction with soft mechano-chemical assistance. *Journal of Advanced Ceramics*, 2023, **12(3)**: 565.
- [14] WANG P X, YU Z L, MO P C, *et al.* The effect of N vacancy on the synthesis and properties of high-entropy nitride ceramics $(\text{Ti}_{0.25}\text{V}_{0.25}\text{Cr}_{0.25}\text{Nb}_{0.25})\text{N}_{0.825}$. *Journal of Solid State Chemistry*, 2025, **344**: 125202.
- [15] KUANG J, ZHANG P, WANG Q Q, *et al.* Formation and oxidation behavior of refractory high-entropy silicide $(\text{NbMoTaW})\text{Si}_2$ coating. *Corrosion Science*, 2022, **198**: 110134.
- [16] SHIVAKUMAR S, QIN M D, ZHANG D W, *et al.* A new type of compositionally complex M_5Si_3 silicides: cation ordering and unexpected phase stability. *Scripta Materialia*, 2022, **212**: 114557.
- [17] NI B, LIU H W, ZOU S, *et al.* Enhancing electrical resistivity of titanium-substituted rare-earth orthoferrite high-entropy ceramics by engineering grain and grain boundary. *Ceramics International*, 2024, **50(9)**: 15750.
- [18] NI B, ZOU S, GU Y H, *et al.* Entropy regulated ferroelectric properties of rare-earth and transition metal perovskite type ceramics. *Journal of Alloys and Compounds*, 2024, **984**: 173820.
- [19] ZHU J T, LOU Z H, ZHANG P, *et al.* Preparation and thermal properties of rare earth tantalates (RETaO_4) high-entropy ceramics. *Journal of Inorganic Materials*, 2021, **36(4)**: 411.
- [20] FENG L, FAHRENHOLTZ W G, HILMAS G E. Low-temperature sintering of single-phase, high-entropy carbide ceramics. *Journal of the American Ceramic Society*, 2019, **102(12)**: 7217.
- [21] YANG H T, KLEMM S, MÜLLER J, *et al.* Synthesis of high-entropy carbides from multi-metal polymer precursors. *Journal of the European Ceramic Society*, 2023, **43(10)**: 4233.
- [22] YE F X, MENG F W, LUO T Y, *et al.* Ultrafast high-temperature sintering of high-entropy $(\text{La}_{0.2}\text{Nd}_{0.2}\text{Sm}_{0.2}\text{Eu}_{0.2}\text{Gd}_{0.2})_2\text{Hf}_2\text{O}_7$ ceramics with fluorite structure. *Ceramics International*, 2022, **48(23)**: 35649.
- [23] ZENG J J, ZHANG K B, CHEN D M, *et al.* Preparation of $(\text{La}_{0.2}\text{Nd}_{0.2}\text{Sm}_{0.2}\text{Gd}_{0.2}\text{Er}_{0.2})_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ high-entropy transparent ceramics by vacuum sintering. *Journal of Inorganic Materials*, 2021, **36(4)**: 418.
- [24] ZHANG X Y, LIU X Y, YAN J H, *et al.* Preparation and property of high-entropy $(\text{La}_{0.2}\text{Li}_{0.2}\text{Ba}_{0.2}\text{Sr}_{0.2}\text{Ca}_{0.2})\text{TiO}_3$ perovskite ceramics. *Journal of Inorganic Materials*, 2021, **36(4)**: 379.
- [25] CHEN Y Q, LI R, ZHANG Y, *et al.* Preparation and dielectric properties of lead-free perovskite-structured high-entropy ceramics of $(\text{La}_{0.25}\text{Sr}_{0.25}\text{Ba}_{0.25}\text{Na}_{0.25})(\text{Ti}_{0.5}\text{Me}_{0.5})\text{O}_{3-\delta}$ (Me=Sn, Zr, Hf) via doping at both A and B sites. *Ceramics International*, 2023, **49(1)**: 1038.
- [26] ZHANG R Z, REECE M J. Review of high entropy ceramics: design, synthesis, structure and properties. *Journal of Materials Chemistry A*, 2019, **7(39)**: 22148.
- [27] WANG J S, JIANG J Z, LIAW P K, *et al.* Data science in order and disorder of high-entropy materials. *Metals*, 2025, **15(6)**: 632.
- [28] LIU H Y, CHEN B, CHEN R, *et al.* Computational simulation of short-range order structures in high-entropy alloys: a review on formation patterns, multiscale characterization, and performance modulation mechanisms. *Advances in Physics: X*, 2025, **10(1)**: 2527417.
- [29] OSES C, TOHER C, CURTAROLO S. High-entropy ceramics. *Nature Reviews Materials*, 2020, **5(4)**: 295.
- [30] WRIGHT A J, LUO J. A step forward from high-entropy ceramics to compositionally complex ceramics: a new perspective. *Journal of Materials Science*, 2020, **55(23)**: 9812.
- [31] MOSKOVSKIKH D O, VOROTILO S, SEDEGOV A S, *et al.* High-entropy $(\text{HfTaTiNbZr})\text{C}$ and $(\text{HfTaTiNbMo})\text{C}$ carbides fabricated through reactive high-energy ball milling and spark plasma sintering. *Ceramics International*, 2020, **46(11)**: 19008.
- [32] FENG L, FAHRENHOLTZ W G, HILMAS G E, *et al.* Synthesis of single-phase high-entropy carbide powders. *Scripta Materialia*, 2019, **162**: 90.
- [33] SUN Y N, CHEN F H, QIU W F, *et al.* Synthesis of rare earth containing single-phase multicomponent metal carbides via liquid polymer precursor route. *Journal of the American Ceramic Society*, 2020, **103(11)**: 6081.
- [34] DU B, LIU H H, CHU Y H. Fabrication and characterization of polymer-derived high-entropy carbide ceramic powders. *Journal of the American Ceramic Society*, 2020, **103(8)**: 4063.
- [35] YAN X L, CONSTANTIN L, LU Y F, *et al.* $(\text{Hf}_{0.2}\text{Zr}_{0.2}\text{Ta}_{0.2}\text{Nb}_{0.2}\text{Ti}_{0.2})\text{C}$ high-entropy ceramics with low thermal conductivity. *Journal of the American Ceramic Society*, 2018, **101(10)**: 4486.
- [36] WANG K, CHEN L, XU C G, *et al.* Microstructure and mechanical properties of $(\text{TiZrNbTaMo})\text{C}$ high-entropy ceramic. *Journal of Materials Science & Technology*, 2020, **39**: 99.
- [37] 林奕希, 蒋雨桥, 冯相民, 等. 机器学习原子间势分子动力学模拟在电化学储能材料研究中的应用进展. *中国材料进展*, 2025, **44(4)**: 330.
- [38] 张聪, 刘杰, 解树一, 等. 高通量计算与机器学习驱动高熵合金的研究进展. *材料工程*, 2023, **51(3)**: 1.
- [39] 张勇, 朱祥涵. 高熵陶瓷的功能性应用和数据驱动设计. *四川师范大学学报(自然科学版)*, 2025, **48(3)**: 285.
- [40] 郑博远, 吴一栋, 惠希东. 高熵碳化物陶瓷第一性原理计算研究进展与展望. *智能安全*, 2024, **3(2)**: 87.
- [41] 鲁楠, 何鹏飞, 种晓宇, 等. 多尺度模拟计算方法在超高温高熵陶瓷材料中的应用进展. *宇航材料工艺*, 2023, **53(1)**: 1.
- [42] 林洋, 卜文刚, 何鹏飞, 等. 材料智能计算在多主元超高温金属陶瓷设计中的应用进展. *智能安全*, 2024, **3(3)**: 100.

- [43] LIU B, ZHAO J L, LIU Y C, *et al.* Application of high-throughput first-principles calculations in ceramic innovation. *Journal of Materials Science & Technology*, 2021, **88**: 143.
- [44] LI J, FANG Q H, LIAW P K. Microstructures and properties of high-entropy materials: modeling, simulation, and experiments. *Advanced Engineering Materials*, 2021, **23**(1): 2001044.
- [45] SHAO H, SANDVIK A W. Progress on stochastic analytic continuation of quantum Monte Carlo data. *Physics Reports*, 2023, **1003**: 1.
- [46] VYATSKIKH A L, MACDONALD B E, DUPUY A D, *et al.* High entropy silicides: CALPHAD-guided prediction and thin film fabrication. *Scripta Materialia*, 2021, **201**: 113914.
- [47] ZHANG J, XIANG X P, XU B, *et al.* Rational design of high-entropy ceramics based on machine learning—a critical review. *Current Opinion in Solid State and Materials Science*, 2023, **27**(2): 101057.
- [48] NISAR A, ZHANG C, BOESL B, *et al.* A perspective on challenges and opportunities in developing high entropy-ultra high temperature ceramics. *Ceramics International*, 2020, **46**(16): 25845.
- [49] WANG Z S, LIU G T, GAO W H, *et al.* Mechanical behavior of high entropy ceramic (TiZrHfVNb)C₅ under extreme conditions: a first-principles density functional theory study. *Ceramics International*, 2024, **50**(6): 9820.
- [50] LIU S Y, CUI J, ZHANG C, *et al.* First-principles study on the thermodynamic miscibility and mechanical properties of high-entropy quaternary metal nitrides. *Materials Today Communications*, 2025, **45**: 112157.
- [51] FENG X K, WANG X C, WU L F, *et al.* The effects of refractory elements on the properties of quaternary high entropy carbides—a first-principles and experiment study. *Computational Materials Science*, 2024, **245**: 113324.
- [52] YU H Y, LIANG W P, MIAO Q, *et al.* Study on the wear resistance and thermodynamic stability of (MnNbTaZrTi)N (M=Cr, Hf) high-entropy nitride coatings at elevated temperatures. *Surface and Coatings Technology*, 2025, **497**: 131792.
- [53] XU L, GAO H F, HE X, *et al.* Understanding the CMAS corrosion behavior of high-entropy (La_{0.2}Sm_{0.2}Er_{0.2}Y_{0.2}Yb_{0.2})₂Ce₂O₇. *Journal of the American Ceramic Society*, 2025, **108**(5): e20355.
- [54] YAN R X, LIANG W P, MIAO Q, *et al.* Corrosion mechanisms of high-entropy rare earth zirconate (Gd_{0.2}Y_{0.2}Er_{0.2}Tm_{0.2}Yb_{0.2})₂Zr₂O₇ exposed to CMAS and multi-medium (NaVO₃+CMAS). *Journal of the European Ceramic Society*, 2024, **44**(5): 3277.
- [55] ZHOU X T, XU Y J, CHEN Y, *et al.* Mechanism on lattice thermal conductivity of carbon-vacancy and porous medium entropy ceramics. *Scripta Materialia*, 2025, **259**: 116568.
- [56] BAI Y, LIANG Y X, BI J, *et al.* Sintering, high-temperature stability, and thermal conductivity of (Zr, Nb, Hf, Ta)(C, N) high-entropy carbonitrides. *Ceramics International*, 2025, **51**(18): 24731.
- [57] MENG H, LIU Y W, YU H L, *et al.* Machine-learning-potential-driven prediction of high-entropy ceramics with ultra-high melting points. *Cell Reports Physical Science*, 2025, **6**(2): 102449.
- [58] NITOL M S, ECHEVERRIA M J, DANG K, *et al.* New modified embedded-atom method interatomic potential to understand deformation behavior in VNbTaTiZr refractory high entropy alloy. *Computational Materials Science*, 2024, **237**: 112886.
- [59] LU W Y, XU J R, HUANG S S, *et al.* The coupling of carbon non-stoichiometry and short-range order in governing mechanical properties of high-entropy ceramics. *npj Computational Materials*, 2025, **11**: 64.
- [60] WANG X Y, ZHAN Z J, CAO H Y, *et al.* CALPHAD, preparation, and mechanical properties of quaternary solid solution nitrides with various nitrogen stoichiometry. *Ceramics International*, 2024, **50**(19): 34914.
- [61] KIM M, KIM J, KIM H, *et al.* High-throughput data-driven machine learning prediction of thermal expansion coefficients of high-entropy solid solution carbides. *International Journal of Refractory Metals and Hard Materials*, 2024, **122**: 106738.
- [62] DAI F Z, SUN Y J, WEN B, *et al.* Temperature dependent thermal and elastic properties of high entropy (Ti_{0.2}Zr_{0.2}Hf_{0.2}Nb_{0.2}Ta_{0.2})B₂: molecular dynamics simulation by deep learning potential. *Journal of Materials Science & Technology*, 2021, **72**: 8.
- [63] DAI F Z, WEN B, SUN Y J, *et al.* Theoretical prediction on thermal and mechanical properties of high entropy (Zr_{0.2}Hf_{0.2}Ti_{0.2}Nb_{0.2}Ta_{0.2})C by deep learning potential. *Journal of Materials Science & Technology*, 2020, **43**: 168.
- [64] ZHANG Y, REN K, WANG W Y, *et al.* Discovering the ultralow thermal conductive A₂B₂O₇-type high-entropy oxides through the hybrid knowledge-assisted data-driven machine learning. *Journal of Materials Science & Technology*, 2024, **168**: 131.
- [65] LIU S Y, QIN L, ZHANG H L, *et al.* Design of superhard high-entropy diborides via high-throughput DFT and thermodynamics calculations. *Ceramics International*, 2024, **50**(10): 17977.
- [66] SARKER P, HARRINGTON T, TOHER C, *et al.* High-entropy high-hardness metal carbides discovered by entropy descriptors. *Nature Communications*, 2018, **9**: 4980.
- [67] NING S S, WEN T Q, YE B L, *et al.* Low-temperature molten salt synthesis of high-entropy carbide nanopowders. *Journal of the American Ceramic Society*, 2020, **103**(3): 2244.
- [68] HOSSAIN M D, BORMAN T, OSES C, *et al.* Entropy landscaping of high-entropy carbides. *Advanced Materials*, 2021, **33**(42): 2102904.
- [69] DIVILOV S, ECKERT H, HICKS D, *et al.* Disordered enthalpy-entropy descriptor for high-entropy ceramics discovery. *Nature*, 2024, **625**(7993): 66.
- [70] MENG H, YU H L, ZHUANG L, *et al.* Data-driven acceleration of high-entropy ceramic discovery. *Matter*, 2024, **7**(8): 2646.
- [71] DEY D, LIANG L B, YU L P. Mixed enthalpy-entropy descriptor for the rational design of synthesizable high-entropy materials over vast chemical spaces. *Journal of the American Chemical Society*, 2024, **146**(8): 5142.
- [72] JIANG S C, HU T, GILD J, *et al.* A new class of high-entropy perovskite oxides. *Scripta Materialia*, 2018, **142**: 116.
- [73] SUN Q D, YIN W J. Thermodynamic stability trend of cubic perovskites. *Journal of the American Chemical Society*, 2017, **139**(42): 14905.
- [74] WRIGHT A J, WANG Q Y, KO S T, *et al.* Size disorder as a descriptor for predicting reduced thermal conductivity in medium- and high-entropy pyrochlore oxides. *Scripta Materialia*, 2020, **181**: 76.
- [75] MENG H, YU R W, TANG Z Y, *et al.* Formation ability descriptors for high-entropy carbides established through high-throughput methods and machine learning. *Cell Reports Physical Science*, 2023, **4**(8): 101512.
- [76] MENG H, YU R W, TANG Z Y, *et al.* Formation ability descriptors for high-entropy diborides established through high-throughput experiments and machine learning. *Acta Materialia*, 2023, **256**: 119132.
- [77] MENG H, WEI P, TANG Z Y, *et al.* Data-driven discovery of formation ability descriptors for high-entropy rare-earth monosilicates. *Journal of Materiomics*, 2024, **10**(3): 738.
- [78] MITRA R, BAJPAI A, BISWAS K. ADASYN-assisted machine learning for phase prediction of high entropy carbides. *Computational Materials Science*, 2023, **223**: 112142.
- [79] ZHANG H Z, LIN W W, REN L, *et al.* Phase structure prediction

- of high-entropy carbide ceramics based on two-stage data enhancement. *Journal of the Australian Ceramic Society*, **61**: 1705.
- [80] PAK A Y, SOTSKOV V, GUMOVSKAYA A A, *et al.* Machine learning-driven synthesis of TiZrNbHfTaC₃ high-entropy carbide. *npj Computational Materials*, 2023, **9**: 7.
- [81] LIU D Q, HOU Y Q, ZHANG A J, *et al.* Experimental studies on critical compositions for fabricating single-phase high entropy carbides based on the calculated phase diagram of (VNBaMoW)_{0.5}C_x (0 < x < 0.6). *Journal of the European Ceramic Society*, 2021, **41**(15): 7488.
- [82] ARAI Y, SAITO M, SAMIZO A, *et al.* Material design using calculation phase diagram for refractory high-entropy ceramic matrix composites. *International Journal of Applied Ceramic Technology*, 2024, **21**(4): 2702.
- [83] LU W Y, CHEN L, ZHANG W, *et al.* Single-phase formation and mechanical properties of (TiZrNbTaMo)C high-entropy ceramics: first-principles prediction and experimental study. *Journal of the European Ceramic Society*, 2022, **42**(5): 2021.
- [84] SONG J T, CHEN G Q, XIANG H M, *et al.* Regulating the formation ability and mechanical properties of high-entropy transition metal carbides by carbon stoichiometry. *Journal of Materials Science & Technology*, 2022, **121**: 181.
- [85] BAI Y, LIANG Y X, BI J, *et al.* Role of carbon vacancies in determining the structural, mechanical, and thermodynamic properties of (HfTaZrNb)C_{1-x} high entropy carbides: a first-principles study. *Journal of Materials Science*, 2024, **59**(40): 19112.
- [86] LIU Y W, MENG H, ZHU Z J, *et al.* Predicting mechanical and thermal properties of high-entropy ceramics via transferable machine-learning-potential-based molecular dynamics. *Advanced Functional Materials*, 2025, **35**(16): 2418802.
- [87] LIU Y W, FU Y M, GU F C, *et al.* Lattice-distortion-driven reduced lattice thermal conductivity in high-entropy ceramics. *Advanced Science*, 2025, **12**(19): 2501157.
- [88] WEN W, YAN X X, PEI X H, *et al.* Multi-dimensional anisotropic feature interaction with machine learning to predict the thermal conductivity of A₂B₂O₇-type high-entropy ceramics. *Ceramics International*, 2025, **51**(13): 17860.
- [89] ZHENG X W, CUI J, GU C, *et al.* Superhard high-entropy dodecaboride with high electrical conductivity. *Scripta Materialia*, 2022, **220**: 114938.
- [90] CUI J, ZHENG X W, BAO W C, *et al.* Coexistence of superhardness and metal-like electrical conductivity in high-entropy dodecaboride composite with atomic-scale interlocks. *Nano Letters*, 2023, **23**(20): 9319.
- [91] ZHENG B Y, WU Y D, LIN D Y, *et al.* First-principles study on the structure, mechanical and thermodynamic properties of (Ti, Hf, Nb, Ta)C high-entropy carbide ceramics. *Ceramics International*, 2024, **50**(13): 23097.
- [92] ZENG L Y, HU X W, ZHOU Y Z, *et al.* Superconductivity in the high-entropy ceramics Ti_{0.2}Zr_{0.2}Nb_{0.2}Mo_{0.2}Ta_{0.2}C_x with possible nontrivial band topology. *Advanced Science*, 2024, **11**(5): 2305054.
- [93] LIU Y W, YU H L, MENG H, *et al.* Atomic-level insights into the initial oxidation mechanism of high-entropy diborides by first-principles calculations. *Journal of Materiomics*, 2024, **10**(2): 423.
- [94] FAN Y, CHEN Y Y, WANG J, *et al.* Insights into crystal growth and morphology evolution mechanism of multi-component carbide: experiments and first-principles calculations. *Journal of Materials Science & Technology*, 2026, **240**: 27.
- [95] LI Y L, HE L, PAN H, *et al.* Compositional optimization for enhanced oxidation resistance of high-entropy carbide ceramics. *Acta Materialia*, 2025, **282**: 120463.
- [96] YE S B, ZHU J P, WANG H L, *et al.* Phase evolution and thermal stability of novel high-entropy (Mo_{0.2}Nb_{0.2}Ta_{0.2}V_{0.2}W_{0.2})Si₂ ceramics. *Journal of the European Ceramic Society*, 2022, **42**(13): 5314.
- [97] ZHOU J, WANG A Z, WANG H F, *et al.* Data-driven assisted design and quantitative prediction of hardness in high-entropy boride ceramics. *Materials Today Communications*, 2025, **46**: 112800.
- [98] ZHOU Q, XU F, GAO C Z, *et al.* Design of high-performance high-entropy nitride ceramics via machine learning-driven strategy. *Ceramics International*, 2023, **49**(15): 25964.
- [99] XU X Q, WANG X B, WU S Y, *et al.* Design of super-hard high-entropy ceramics coatings via machine learning. *Ceramics International*, 2022, **48**(21): 32064.
- [100] 刘娟, 田传进, 汪长安. 基于机器学习设计和制备高熵氮化物陶瓷. *硅酸盐学报*, 2023, **51**(12): 3095.
- [101] WEI T X, ZOU J Z, ZHOU X F, *et al.* High-entropy assisted capacitive energy storage in relaxor ferroelectrics by chemical short-range order. *Nature Communications*, 2025, **16**: 807.
- [102] ZHANG Z X, HOU C Y, ZHANG Z Y, *et al.* Data-driven design of spinodal decomposition in (Ti, Zr, Hf)C composite carbides for optimizing the hardness-toughness trade-off. *Advanced Functional Materials*, 2025, **35**(36): 2502555.