arXiv:2602.03319v1 [cs.LG] 3 Feb 2026

面向目标的材料设计自适应采样信息论多模型融合

张逸轩[1*]，ZhiyuanLi[1]，何伟佳[2]，MianDai[1]，沈晨[2]，TengLong[2*]，HongbinZhang[1*]

[1]达姆施塔特工业大学材料科学研究所，Otto-Berndt-Straße 3，达姆施塔特，64287，德国。[2]山东大学材料科学与工程学院，济南经十路17923号，250061，山东，中国。

*通讯作者。电子邮箱：yixuan.zhang@tmm.tu-darmstadt.de；tenglong@sdu.edu.cn；hzhang@tmm.tu-darmstadt.de；贡献作者：zhiyuan.li@tmm.tu-darmstadt.de；weijia.he@stud.tu-darmsatdt.de；mian.dai@tu-darmstadt.de；chenshen@tmm.tu-darmstadt.de；

摘要

在评估预算有限的情况下，要实现目标导向发现，就必须在高维、异构的设计空间中可靠地取得进展；无论是实验测量还是高保真模拟，每一次新的测量都代价高昂。我们提出一个用于目标导向自适应采样的信息论框架，将优化重新定义为轨迹发现：该方法不再近似完整的响应面，而是维护并不断改进一个低熵信息状态，使搜索集中于目标相关方向。该方法通过维度感知信息预算、在异构代理模型库上进行自适应自举蒸馏，以及结合卡尔曼启发式多模型融合的结构感知候选流形分析，将数据、模型信念与物理／结构先验相结合，从而平衡共识驱动的利用与分歧驱动的探索。在统一协议下评估且不进行数据集特定调优后，该框架在涵盖 14 项单目标和多目标材料设计任务的测试中，提升了样本效率和可靠性；这些任务的候选池规模从 **600** 到 $\mathbf{4 \times 10^6}$，特征维度

从 **10** 到 $\mathbf{10^3}$, 。该框架通常能在 100 次评估内到达表现最佳的区域。补充的 20 维合成基准测试（Ackley、Rastrigin、Schwefel）进一步证明了其对崎岖、多模态景观的鲁棒性。

关键词： 信息论、贝叶斯优化、多模型集成、数据稀缺材料设计

1 引言

设计具有最优性能的材料，往往需要在广阔的高维参数空间中导航，而实验测量与理论模拟既代价高昂，数量也十分有限[1–5]。当必须同时优化多种性能，且设计变量涵盖数百乃至数千个特征时，这种数据稀缺尤为严峻[6–8]。传统上，科学发现源于数据、统计推断与物理建模之间的相互作用[9, 10]。然而，当数据稀缺且缺乏可靠的物理模型时，这种三位一体的理解便沦为纯粹的统计经验主义。尽管这一转变符合目标采集（占有）先于解释性建模（理解）的务实现实，但它迫使算法在没有结构约束的最大熵环境中导航，从而显著增加定位有效解所需的信息量 [1, 11]。有限数据与高信息需求之间由此产生的张力，构成了现代材料设计中的一个根本瓶颈[12, 13]。为缓解这一差距，可以利用隐含编码于候选池的结构组织以及代理模型行为中的潜在物理信息，因为二者均可承载植根于化学直觉、热力学可行性或经验设计启发式的先验判断[14–16]（参见图1a，上半部分）。至关重要的是，近期理论洞见表明，自然数据与有效物理解通常位于嵌入高维环境空间中的低维流形上 [17]。因此，任何与目标相关的轨迹，其复杂度往往远低于完整搜索域的复杂度[18]。因而，关键挑战在于将范式从对整个空间的穷尽建模转向轨迹发现，即建立一个连贯的低熵认知状态，使其沿着指向设计目标的高概率路径逐步收敛[19–21]。

从计算角度看，这一设定可视为采样约束极为严苛的目标导向型黑箱优化：算法必须仅凭数十次评估，就在可能拥有数百至数千个自由度的环境空间中可靠推进。核心难点不仅在于近似全局响应面，更在于从稀疏、含噪且异构的信息源中，迅速识别并沿着少数与目标相关的方向前进，也就是找到一条低熵轨迹。这促使我们从穷举式函数建模转向轨迹发现，目标是构建连贯的信息状态，将搜索精力集中到通往设计目标的高概率路径上。

从信息论视角看，要实现这一转变，需要构建一个三元认知系统，动态对齐数据、模型信念与物理约束，以最大化其与设计目标之间的互信息[22–24]（参见图1a）。系统不能孤立地看待这些要素，而应使其作为一个连贯整体不断演进：通过引导探索转向最能降低系统熵的区域，问题的有效复杂度会随着搜索推进而降低，从而将棘手的高维搜索投射到目标相关流形上[25, 26]。要在此类约束下实现快速收敛，需要采用两种互补策略：（i）维度感知的容量对齐与信息蒸馏，将搜索复杂度限制在数据的内在维度，从而防止模型在无关区域的高维噪声上过拟合[27, 28]（参见图1b–d）；以及（ii）结构化信息过滤与决策，利用异构信息通道将宏观趋势与局部波动区分开来，提取单一模型可能遗漏的互补信号[29, 30]（参见图1e–g）。

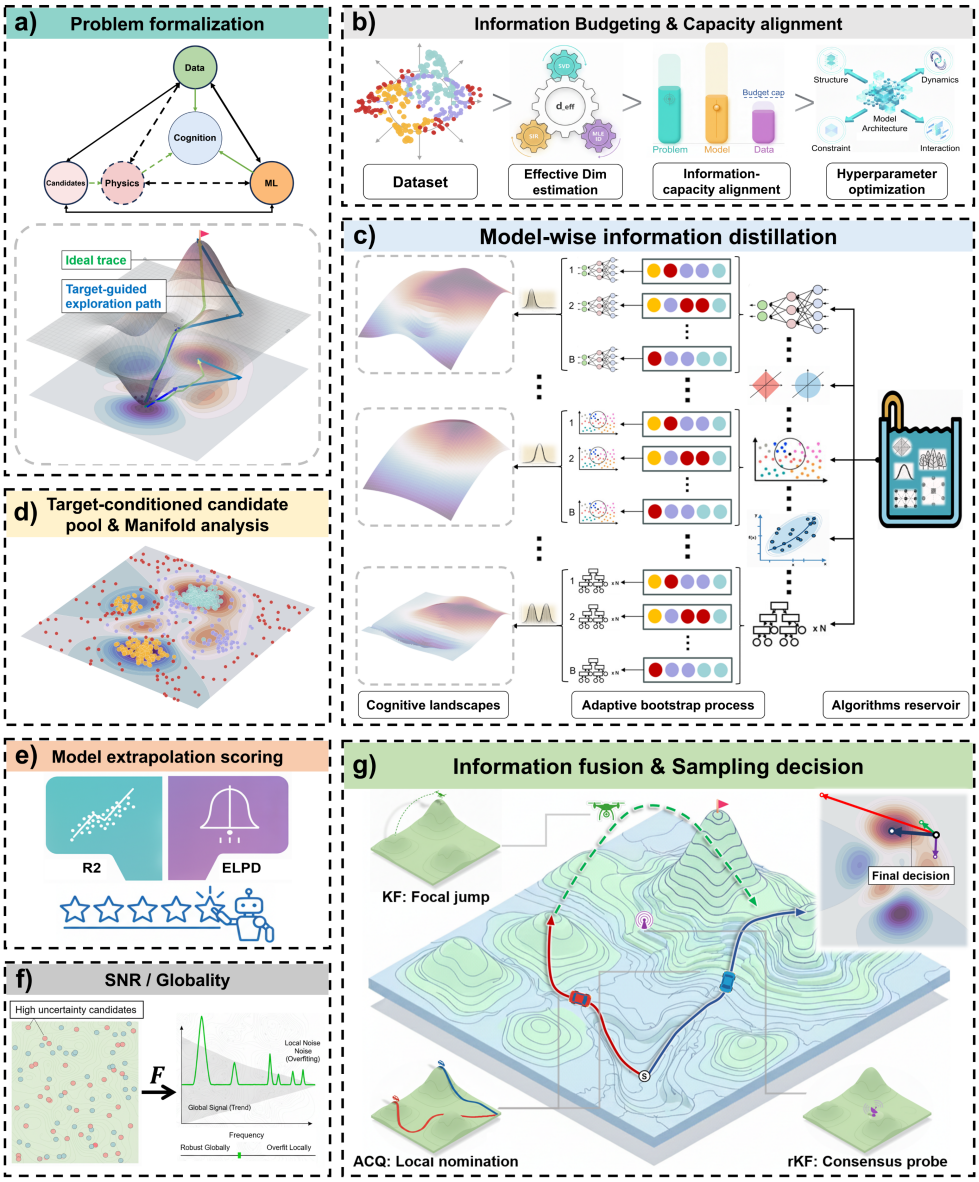
a) Problem formalization
Data
Cognition
Candidates
Physics
ML
Ideal trace
Target-guided exploration path
b) Information Budgeting & Capacity alignment
Budget cap
Problem
Model
Data
Structure
Dynamics
Model Architecture
Constraint
Interaction
Dataset
Effective Dim estimation
Information-capacity alignment
Hyperparameter optimization
c) Model-wise information distillation
Cognitive landscapes
Adaptive bootstrap process
Algorithms reservoir
d) Target-conditioned candidate pool & Manifold analysis
e) Model extrapolation scoring
R2
ELPD
f) SNR / Globality
High uncertainty candidates
F
Local Noise Noise (Overfitting)
Global Signal (Trend)
Frequency
Robust Globally
Overfit Locally
g) Information fusion & Sampling decision
KF: Focal jump
Final decision
ACQ: Local nomination
rKF: Consensus probe

图 1：**面向目标的自适应采样信息论多源融合流程。(a) 问题形式化**：我们将数据、模型信念和物理约束构建为一个三元认知系统，该系统协同演化以最大化与设计目标的互信息，从而将目标从穷尽式全局建模转向发现目标相关轨迹。**(b) 信息预算与容量对齐**：估算当前数据所隐含的有效信息维度，并结合剩余评估预算，使模型容量与问题复杂度相匹配；通过调整超参数，在保留目标相关结构的同时筛除高维噪声。**(c) 逐模型信息蒸馏**：通过自适应自助法流程训练异构模型库，生成各模型的"认知景观"，以编码互补的归纳偏置和不确定性视角。**(d) 目标条件候选生成与流形分析**：若提供候选集，则直接分析其流形结构；否则，从认知景观集合中采样目标相关候选点，再通过流形分析刻画搜索的可行结构区域。**(e) 模型外推评分**：自助采样期间的袋外评估可提供模型泛化诊断指标，包括点预测准确率和分布预测质量。**(f) 信噪比与全局性评估**：结合模型输出与候选流形，量化信噪比特征，并诊断每个模型的认知主要是全局性的还是局部性的。**(g) 信息融合与采样决策**：采用多种融合模式，将异构信号转化为行动。标准采集函数 (ACQ) 提名局部有潜力的区域，卡尔曼启发式融合 (KF) 汇总多模型证据，以实现共识驱动的焦点跳跃；而不确定性加权变体 (rKF) 则优先选择能最高效地减少分歧并加速向目标区域收敛的共识探测点。

传统的基于高斯过程（GP）的贝叶斯优化（BO），即使经过深度核学习等扩展，仍与这种高维、数据稀缺的情形存在根本性的不匹配[31, 32]。其主要失效模式之一在于缺乏维度感知的容量控制：在高维环境空间中，距离集中会削弱核有效性，而数据稀缺则使超参数难以可靠识别[33, 34]。若不对有效维度施加明确约束，标准代理模型就容易产生幻觉——过拟合于混叠的高频噪声，而非捕捉底层物理机制。此外，依赖任何单一代理模型族，都会为搜索施加僵化的结构先验和固定的谱偏置[35, 36]。单一模型通常如同固定带宽滤波器，难以同时捕捉实现全局覆盖所需的宏观趋势（低频信号），以及实现精确搜索所需的局部细粒度跃迁（高频信号）[37, 38]。这些局限促使我们从单模型贝叶斯优化转向一种自适应框架，使其发挥多尺度推断系统的作用。关键在于，要实现该系统的潜力，不能仅靠被动聚合；它还需要一种主动信息融合机制，动态裁定相互冲突的信念状态[39, 40]。通过根据实时可靠性评估，在模型共识（利用）与信息性分歧（探索）之间进行严格权衡

，该系统能够稳健地区分物理结构与高维噪声，确保即使对底层函数景观缺乏充分了解，搜索轨迹仍沿着信息增益最大的路径收敛[41, 42]。

基于这些原则，我们提出一种信息论轨迹发现框架，将优化重新定义为由数据、模型和物理三个轴构成的三元认知系统的熵减。不同于将这些要素孤立处理的传统方法，我们通过一个四阶段流程将它们协调起来，使其能够充当抵御高维噪声的异构认知滤波器。首先，我们实施维度感知容量控制，动态估计有效内在维度以限制模型复杂度，确保代理模型捕捉可学习流形，而不是对稀疏数据过拟合[43, 44]。其次，我们采用目标条件代理模型塑造，通过重要性采样在高价值区域训练异构模型（线性模型、基于树的模型、神经网络）[45, 46]。这个集成构成一个互补模型库：低容量模型确保覆盖宏观趋势，高容量模型则解析局部细节。第三，我们引入结构感知候选组织层，基于邻域和分区分析对候选点进行分组并估计结构权重，从而量化冗余、局部密度和可行变化，而无需显式嵌入或连续到图的投影，避免模式坍塌[47–49]。最后，决策由多源融合机制驱动，该机制运用类似卡尔曼的逻辑，在模型共识（利用）与高价值分歧（探索）之间进行权衡[50, 51]。通过显式最大化这一三元系统与目标设计之间的互信息，该框架构建出稳健的搜索轨迹，即使个别模型未能捕捉完整的物理规律，仍能保持有效[52, 53]。

该框架应用于14项单目标和多目标材料设计任务，涵盖样本量为600–4,000,000、特征维度为10–1025以及一至四个目标属性的数据集，并在统一的数据稀缺设置下运行：优化仅从20个随机选取的较差初始样本开始，这些样本的目标值小于全局最优点的50%；随后每次迭代以批次形式新增10次测量，通常在少于10次迭代（100次评估）内收敛。尽管采样预算极低，该方法仍能在所有材料问题中稳定识别出前10候选。在相同配置下，该方法在20维基准数学函数上也表现稳健：Ackley在100次迭代内达到全局最优点；Schwefel达到50%的全局最优收敛率，其余结果接近最优；对于Rastrigin，则能找到误差较低的局部最优值，性能差距低于50。总体而言，在统一的数据稀缺协议下，该框架在多种问题类别中均带来稳健的性能提升，无需依赖特定问题的采集策略设计或大量超参数调优。通过将来自候选点的物理先验、模型多样性和不确定性整合到单一的以信息为中心的控制回路中，该框架支持自适应采样决策，使其从合成高维函数到百万规模的材料候选集都能保持有效。

2 结果与讨论

2.1 在数学基准函数上的性能

我们采用三个经典的20维基准函数：Ackley、Rastrigin和Schwefel，因为它们揭示了高维黑箱优化中具有代表性的互补挑战。Ackley具有被狭窄中央谷地包围的近乎平坦外部区域；在高维情况下，谷地外部的微弱梯度加上距离集中效应，几乎无法提供方向信息，因此关键难点在于快速定位有信息量的谷地，并沿其收缩，而不是将样本浪费在准平台区域。Rastrigin呈现出密集的周期性多模态结构以及振幅较大的局部极小值；由于相邻吸引域相似，势垒跨越往往只能带来有限的信息增益，因此强烈的局部结构很容易掩盖全局进展，考验的是在极端多模态性下形成可靠全局趋势的能力。Schwefel的全局最优点远离原点，周围分布着许多具有吸引力的局部极小值；朴素轨迹会被吸引到欺骗性盆地中，而成功需要偶尔采取经过充分信息支持的长距离移动，以抵达遥远的全局吸引域。从统一视角来看，如果将局部最优值视为背景“噪声”，将指向真正最优点的全局趋势视为“信号”，那么这些基准函数的主要差异在于其信号与背景对比度：Ackley是在梯度微弱条件下的定位问题，Rastrigin是在高振幅局部噪声下的辨识问题，而Schwefel则是在欺骗性吸引子作用下的势垒跨越问题。这些函数中全局信号与局部背景之间逐步降低的对比度，为验证该框架的三项关键能力提供了结构化测试：(i) 在严重数据稀缺条件下主动收集并集中信息，从而快速定位有信息量的轨迹（Ackley）；(ii) 整合异质信息通道，将局部噪声与全局趋势区分开来（Rastrigin）；以及(iii) 触发有针对性的高增益跃迁，推动在欺骗性景观中实现势垒跨越（Schwefel）。

为确保在复杂度各异的景观上具有可比性，我们在统一配置下测试了全部三个基准函数。每个函数均在 20 维空间及其常规搜索域内进行评估：$[-32.768, 32.768]^{20}$ 对应 Ackley，$[-5.12, 5.12]^{20}$ 对应 Rastrigin，$[-500, 500]^{20}$ 对应 Schwefel。为与框架默认的最大化形式保持一致，我们对每个函数取反，使最小化原始目标函数等价于最大化其相反数形式。优化从随机选取的十个低质量初始点开始，每次迭代以十个候选点为一批进行，最多迭代 100 次，总计 1,000 次评估。所有情况下的目标都是达到原函数的全局最小值，这等价于达到其取反形式的全局最大值。每项实验均独立重复二十次，以反映统计变异性。在每次迭代中，框架都会记录：(i) 当前为止的最佳目标值；(ii) 提议候选点与已知全局最优点之间的最小特征空间距离；以及 (iii) 集成模型诊断指标，包括不确定性、信息增益和模型间共识。这些指标共同刻画了外部收敛

动态以及信息状态的内部演变，从而能够全面评估算法接近最优点的效率，以及其推断结构如何适应不同的景观复杂度。

图 2 总结了该框架在三个基准函数上进行二十次独立运行时的收敛情况。每个面板中，上方的图显示当前最佳目标值的变化，粗红线表示所有运行的均值，细蓝线表示各条独立轨迹；下方的图报告最佳预测点与真实全局最优点之间的最小特征空间距离，粗绿线和浅绿线分别表示均值和各次运行的结果。

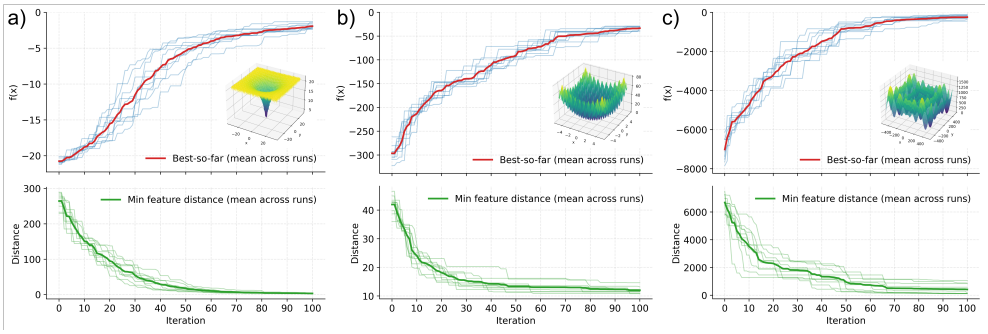

图 2：20 维数学基准上的收敛情况：a) Ackley；b) Rastrigin；c) Schwefel 函数。上方面板：当前最佳目标值（各次运行的均值；细线表示各次独立运行），中间的小面板展示了每个数学函数的二维示例。下方面板：所提出候选点到全局最优点的最小特征空间距离（各次运行的均值；细线表示各次独立运行）。初始化使用 10 个点；每次迭代提出一批包含 10 个候选点的批次；结果取 10 次独立运行的平均值。

在所有函数上，该框架均表现出一致的单调改进，表明即使景观复杂度显著不同，也能稳定收敛。对于 Ackley 函数（参见图 2.a），迄今最优值平稳地趋近最优点，所有单次运行的轨迹都非常接近，仅有细微偏差，显示出很强的可重复性。特征距离曲线几乎呈指数衰减，在约 60 次迭代内趋近于零，表明算法能够快速定位到中央谷地内。对于 Rastrigin 函数（参见图 2.b），轨迹呈阶梯式推进，对应于连续的势垒跨越；尽管存在密集多峰性，所有运行都收敛至近似最优区域，残余误差较小，而距离曲线则先急剧下降，随后逐渐细化，反映出算法能够快速识别全局吸引域并进行集中利用。对于 Schwefel 函数（参见图 2.c），由于其景观具有欺骗性，不同运行的轨迹差异较大，但平均趋势稳步趋近最优点；约有一半的运行达到全局最小值，其余则稳定在高质量的局部最优值附近。距离曲线在早期出现大幅波动——这是长距离探索性跳跃的特征——

到达全局吸引盆后，这些波动便逐渐减弱，说明该算法能够触发高增益跃迁，从而逃离欺骗性极小值。总体而言，轨迹分布较为集中，且特征距离持续衰减，凸显了所提出的信息融合策略的鲁棒性和样本效率，证实其在平滑、多模态及欺骗性景观中均能稳定收敛。

在确立了整体行为之后，我们接下来考察具有代表性的单次运行动态，以揭示在特定结构压力下，推断与采样如何协同演化，如图 3所示。每幅图包含：(a) 逐迭代目标值和特征距离轨迹，以及按簇带宽／质量演化；(b) 内部相似度、相对于历史的新颖性，以及低维 UMAP 结构；(c) 模型层面的 R^2–期望对数预测密度诊断和聚合得分比。这些图版共同呈现了信息分配、结构探索–利用平衡与评分通道交互如何在同一条轨迹中相互关联，从而从机理层面解释该方法为何以及如何加速趋近全局最优点。

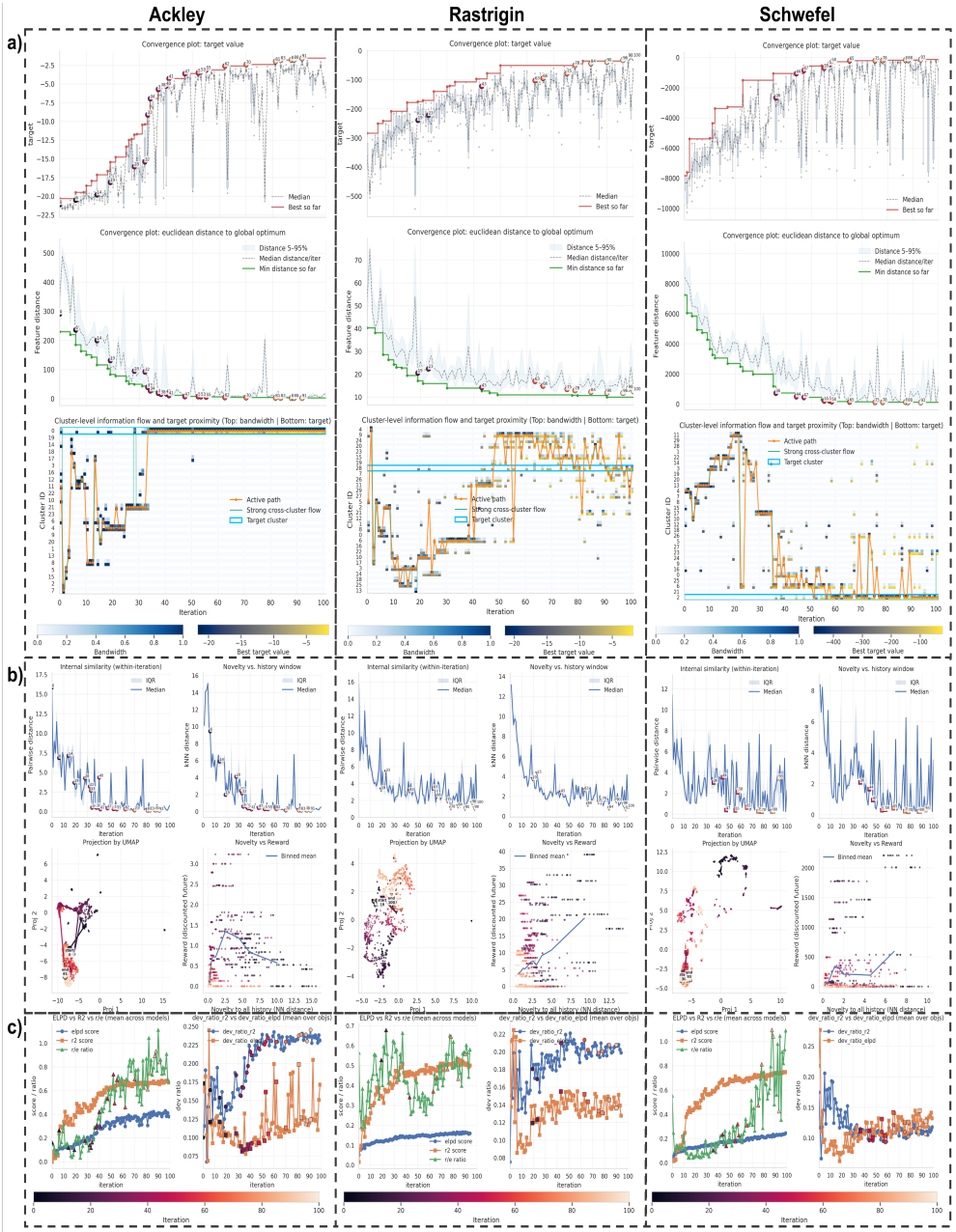
Ackley
Rastrigin
Schwefel
a)
b)
c)
Convergence plot: target value
Convergence plot: euclidean distance to global optimum
Cluster-level information flow and target proximity (Top: bandwidth | Bottom: target)
Internal similarity (within-iteration)
Novelty vs. history window
Projection by UMAP
Novelty vs Reward
ELPD vs R2 vs r/e (mean across models)
dev_ratio_r2 vs dev_ratio_elpd (mean over objs)
Iteration

图 3：Ackley 测试 3、Rastrigin 测试 18 和 Schwefel 测试 5 的综合可视化，展示了多模型优化动态、数据演化和性能分析。a) 动态部分：按迭代展示目标函数的收敛情况和特征空间距离（上图和中图），以及各簇的信息带宽和质量演化（下图），呈现优化过程中信息流如何在簇流形间集中并转移；b) 数据分析部分：内部相似度、新颖性–历史相关性和低维 UMAP 投影展示了结构聚类、探索–利用平衡以及迭代过程中的轨迹一致性；c) 得分部分：模型级评估指标，包括跨模型 R^2–$ELPD$ 一致性和聚合得分比，用于量化集成在优化过程中的预测稳定性和校准表现。

在全部三个基准测试中，优化动态呈现出一种典型的多阶段模式：探索性扩散、簇重新对齐和集中利用以自组织的方式交替进行。图 3 中的面板 (a) 展示了 100 次迭代过程中的优化动态（批次 $= 10$）。上方和中间的图分别追踪迄今为止的最佳目标值，以及到全局最优点的欧几里得距离。每个箱线图和浅蓝色区域表示当前批次的分布，虚线表示批次中位数，红色/绿色曲线分别表示累计最佳目标值/特征距离。数字表示包含最优点的簇（最佳簇）首次出现或更新该簇内最佳目标值时所经历的迭代次数。下图报告了各簇层面的采样带宽分配（每个单元格的上半部分）和各簇内的最佳目标值（下半部分）。黄色线条描绘了逐步改进的活跃路径，绿色线段则突出显示了显著的簇间转移；当带宽转移与质量增益的乘积超过设定阈值时，即判定为显著转移。

在所有情况下，迄今为止的最佳目标值（顶部图）都呈阶梯式上升，表明发生的是离散的转移事件，而非连续改进。从 Ackley 到 Rastrigin 再到 Schwefel，这些阶梯的幅度逐渐增大，与其景观结构复杂性的上升相一致。目标值的每次重大跃升都伴随着到全局最优点的特征空间距离（中部图）急剧下降，随后出现部分反弹并再次收缩，呈现出“暂时退化 $\rightarrow$恢复 $\rightarrow$ 突破”的振荡节奏。对于 Rastrigin 和 Schwefel，包含最佳样本的簇通常会在一次大规模转移附近出现：要么紧随其后，要么在随后的几次迭代中出现，此时采样从相邻的高增益簇迁移到真正的最优簇。这一模式表明，信息丰富区域并非通过渐进式细化发现，而是通过偶发的高方差转移打开通往此前未访问吸引域的通道。相比之下，在 Ackley 中，全局最优簇已在初始随机批次中出现，并在整个轨迹中反复重新出现。这不仅反映了该景观的简单性，也揭示出该框架即使从极度稀疏的数据中，也能够推断全局方向信息。由于全局趋势的信号在 Ackley 中占据主导地位，集成能够通过共识加权推断，几乎立即识别出一个有潜力的吸引盆，并逐步将其采样带宽向该区域收缩。

底部图显示，采样带宽——即每个批次分配给不同簇的比例——在优化过程中经历了结构化的重新分配。在早期阶段，带宽广泛分散，并频繁发生远距离转移，从而最大化方向信息并防止过早收敛。这种行为体现了该框架的设计原则：在探索阶段，目标不仅是快速提高目标值，还要获取全局结构信息。因此，算法会有意将采样分配给远离当前最佳区域的簇，从而在整个景观中进行高方差探索。与此同时，带宽的演化呈现出朝向全局最优点的定向趋势。由于图中的簇索引按照邻近程度排序，可以看出，早期阶段的大部分探索性带宽位于当前主导簇与真正最优簇之间。随着优化推进，这些中间簇逐渐积累质量更高的样本，采样也逐步迁移至最优簇。在中间阶段，采样集中于少数几个相邻簇，这些簇收集边界证据，并细化指向目标吸引盆的局部方向。在后期阶段，带宽收缩到一个或少数几个主导簇上，但仍保留对外围簇的小部分残余分配，以确保最低限度的探索能力。这种一般性的三阶段模式——广泛探索、邻域整合，以及带有残余探测的集中利用——在三个问题中都始终出现，但具有各自景观特有的表现。Ackley 在早期展现出大量强烈的跨簇转移，并迅速将全部带宽整合到单个主导簇中。Rastrigin 仅表现出一次显著的早期跃迁，并在整个过程中保持“一主多辅”的带宽结构，其中中距离转移确保了相邻吸引域之间的连续性。作为最具欺骗性的景观，Schwefel 在所有阶段都呈现出强烈的跨簇跃迁，即使接近收敛时，远处簇中仍保留低水平带宽，从而维持持续的远距离探索。对顶部、中部和底部图进行纵向比较可以发现，大多数显著的目标函数改进都与强烈的跨簇带宽转移相吻合，表明性能跃升伴随着采样资源的结构性重新分配。这种同步性说明，信息流会根据新获得的知识进行自适应重组。当一次探索性移动带来显著改进时，后续迭代会将采样能力重新导向相应簇，从而有效强化高价值信息通道。从信息论视角来看，该框架在簇流形上构建了一条有方向的熵压缩路径：探索性扩散产生信息多样性，而随后的收缩则将这一信息流聚焦到目标相关性最大的区域。总体而言，这些收敛行为不仅表明该框架能够在有限数据下识别并放大信息丰富的方向，还表明它能够根据问题复杂度，在利用与探索之间维持动态平衡。在平滑景观（Ackley）中，该过程表现为向单一吸引盆的确定性收缩；在多模态或欺骗性景观（Rastrigin、Schwefel）中，它则重构为一种多路径分配方案，其中辅助簇充当风险缓解探测。总之，这些耦合行为表明，该框架的收敛由一种闭环反馈

外部景观信号与内部信息重新分配之间的循环，为接下来讨论的数据层面和模型层面适应奠定了基础。

图 3 中的面板 (b) 从四个互补视角剖析优化过程在数据层面的演变，这些视角从左上到右下排列，共同揭示结构多样性、新颖性和信息增益如何随迭代而变化。第一个子图通过汇总每个批次内的成对特征距离，量化内部相似度，显示搜索何时在局部扩大多样性或收缩。第二个子图追踪相对于历史数据的新颖性，该指标根据当前样本到前三次迭代的 k个最近邻距离的平均值计算，从而衡量搜索对近期访问区域以外区域的探索强度。第三个子图通过基于自适应簇原型拟合的二维 UMAP 投影，展示所有样本，表明候选点沿低维流形连贯迁移，而非发生不规则跳跃。第四个子图将每个样本的新颖性与其折扣后的未来回报相关联，把探索幅度与后续性能提升联系起来，并突出从探索型采样阶段向利用型采样阶段的转变。这四个视角旨在共同揭示每次迭代背后的信息几何，包括算法如何扩展其表征支撑集、识别新的信息丰富区域，并随着全局结构逐渐明晰而收缩至目标流形。

将面板 (a) 与面板 (b) 的前两幅图对照可见，显著改进通常先出现持续 1–3 次迭代的“探索脉冲”：批内距离和相对于近期历史的新颖性同时上升，这与带宽热图中中程／远程的簇间迁移相吻合。总体而言，这些同步脉冲表明，采样会短暂地与近期样本去相关，从而提高信息增益；这证实探索并非随机游荡，而是旨在最大化方向性证据的、有组织的多样化过程。在 Ackley 中，带宽收缩至主导簇后，后期仍出现三次改进脉冲，且没有跨簇重新分配（迭代 50、63、78）。这些脉冲的批内距离幅度相近，但相对于近期历史的新颖性逐次提高，表明同一簇内出现了在时间上去相关、沿流形对齐的前进步。与此解释一致，批次中到全局最优点的最大特征距离基本保持在上限附近；这并非显式步长限制所致，而是因为评分与选择流程通过原型邻域、不确定性—一致性惩罚和多样性分配，隐式识别了簇／可行边界；与此同时，三个脉冲期间批次中位距离近似线性增大，这表明样本呈壳状向外重新分布，更多样本被分配到更远、但仍位于流形上的位置。目标值暂时下降（从 -5 降至 -20）也在预料之中：在高维 Ackley 函数宽阔平坦的谷地中，沿谷地的小角度偏移会累积成较大的 l_2 位移，导致目标值受罚，但同时也能在再次收缩前确认吸引盆的几何范围和曲率。相比之下，Rastrigin 在当前区域附近呈现较宽的批次（新颖性 $<$ 内部距离），符合对多个相邻吸引盆进行并行探测的情形；Schwefel 则在新的远距离位置呈现紧凑批次（新颖性 $>$ 内部距离），符合先远距离迁移、再集中进行局部细化的情形。

UMAP轨迹表明，采样总体沿着与流形对齐的带状路径推进，尽管其间偶有间隙。对于 Rastrigin，低维路径大体连贯，仅有轻微的不连续；早期远距离迁移之后，则是在目标吸引盆附近进行短距离细化。Schwefel 虽然早期表现出相似模式，但在后期迭代中仍偶尔出现远距离探索，这反映出需要重新评估欺骗性盆地并确认全局一致性。相比之下，Ackley 的线段间隔更大，因为其梯度微弱、信噪比较低，识别全局方向本身就十分困难。因此，早期的跨簇绕行是自适应探索操作，旨在先确定这一方向，再使搜索收缩回最优区域。所有这些行为都凸显了该框架能够根据景观的内在难度调整探索尺度，而非进行盲目扩散。不同函数中整体呈现的分段连贯性进一步印证了面板 (a) 的结论：该框架沿着有方向性的流形路径引导信息流，仅在需要验证几何结构或消除歧义时才进行间歇性的长距离跳跃。新颖度—奖励散点图（右下）进一步量化了探索强度与目标改进之间的关联。对于 Ackley，奖励在中等新颖性处达到峰值（≈ 2.5），证实一旦识别出全局方向，适度扰动最为有效。在更高新颖性下，收益集中为 ≈ 0 和 ≈ 0.5两个点，反映了后期在簇内进行壳状确认探测——这些在时间上去相关的前进步有时会带来暂时性惩罚，但偶尔也会产生小幅收益，同时帮助描绘吸引盆的几何结构。对于 Rastrigin，奖励几乎随新颖性线性增加，这与高方差探索在密集多模态景观中的价值相符，因为新的吸引盆能提供重要信息。对于 Schwefel，曲线呈非单调变化，具有两个峰值：较早的峰值出现在中等新颖性处（≈ 1.5），对应于抵达遥远的全局吸引域；随后在高新颖性处再次上升（≈ 7.5），表明为摆脱欺骗性吸引子而需要重新开展广泛探索。这些不同模式再次支持这样的观点：该框架会根据各景观的信噪比结构调整探索带宽，在全局趋势明确时收缩探索，并在出现欺骗性或歧义时重新启动高方差探索。

基于面板（a）—（b）中的动态变化和数据结构模式，面板（c）考察这些探索策略的变化如何通过集成的袋外（OOB）得分和融合权重被集成所吸收。第一个子图报告集成平均的 OOB R^2 和 ELPD，以及选择时使用的比率 R^2/ELPD。在此框架中，OOB R^2 是局部拟合的高频指标：当新的高价值样本或尾部样本能够在此前未探索的区域实现紧密插值时，它会迅速响应。OOB ELPD 的变化则较为缓慢，体现了其作为校准导向指标的作用，用于衡量集成的预测密度与重新加权后的数据分布的吻合程度；只有当由 R^2 驱动的采集积累到足够的数据量、足以重塑全局趋势时，它才会做出调整。

在全部三项基准测试中，OOB R^2 和期望对数预测密度呈现出鲜明的时间特征。R^2 会迅速上升，并在目标尾部附近的若干极端点被正确插值后趋于饱和；而期望对数预测密度的增长则更接近线性，因为预测概率质量逐渐重新分配至真实分布。二者的比值 R^2/期望对数预测密度凸显了

因景观而异的行为。对于 Ackley，该比值起初在 0.1 附近波动；约经过 30 次迭代后——此时恰好识别出全局最优簇——比值开始上升，并稳定在 0.8–1.2 附近。这表明，在找到可靠的全局吸引域后，搜索会逐步转向细粒度插值。对于 Rastrigin，该比值呈现三阶段模式：当集成主要依赖于密集多峰性内部的局部判别时，比值起初接近 0.7；在运行中期，当搜索远距离迁移至最优簇附近时，比值降至 0.3 左右（这反映出为了论证盆地切换，搜索暂时更加侧重全局校准）；随后，在确认新吸引盆地后，比值于后期回升至 0.5 左右。纵观整个运行过程，该比值在 0.3–0.6 的范围内波动，这与兼顾局部精度和全局趋势维持的需求相符。对于 Schwefel，在较长的早期阶段，该比值维持在 ~ 0.1–0.2 左右，反映出在欺骗性结构下优先建立连贯全局趋势的策略；只有在约 60 次迭代后（主导簇稳定下来后不久），比值才迅速升至 0.6–1.0，体现出更侧重于由 R^2 引导的利用。这种模式符合“趋势优先，精度随后”的策略。

第二个子图概括了偏差比 dev ratio$_{R^2}$ 和 dev ratio$_{\mathrm{ELPD},r}$ 这两个指标决定了采集效用如何将标准的基于方差的卡尔曼融合（KF）与其反向变体 rKF 相结合。每个偏差比均根据归一化袋外分数计算，具体为各评分通道的评分均值与评分方差之积，因此，数值较高意味着相应评分通道得分较高，且模型间差异较大。这体现了 rKF 的预期作用：引导采样转向模型认为很有潜力、同时仍存在不确定性的区域。这类边界点预计能与集成后验产生较高的互信息，并有助于调和模型分歧，同时避免过度强调明显的离群点。从经验上看，偏差比上升往往先于或伴随着面板（a）—（b）中观察到的新颖度脉冲：当某个评分通道内的模型分歧增大时，dev ratio 随之上升，会为rKF 组分分配更高权重，进而促使搜索更具探索性地向外移动，并增大批内距离；随着搜索重新收缩至更熟悉的区域，dev ratio 和新颖性也都会减弱。

在最初迭代阶段极早期经历了中到大幅度振荡的瞬态过程后（从 Schwefel 到 Rastrigin 再到 Ackley，该阶段的持续时间逐渐增加），三个基准测试呈现出不同的稳态模式。对于 Ackley，偏差比$_{R^2}$ 逐渐增大并稳定在 ~ 0.23附近，而偏差比$_{\mathrm{ELPD}}$ 保持较低水平（约为 ~ 0.10），但仍表现出幅度较大的振荡，这表明反向融合更强地应用于 R^2 通道，同时模型间持续存在的残余校准分歧仍在推动 ELPD 通道中不可忽略的 rKF 活动。对于 Rastrigin，两个偏差比以相近的频率上升，但保持着持续的偏移（ R^2 约稳定在 ~ 0.225 ，ELPD 约稳定在 ~ 0.125 ），这表明系统长期处于一种逐点判别和趋势校准都积极参与边界采样的状态，以应对密集的局部振荡。对于 Schwefel，偏差比$_{R^2}$ 在早期和中期阶段下降，而偏差比$_{\mathrm{ELPD}}$ 上升；二者最终在 ~ 0.125 附近相交，随后以相近的幅度同相振荡，反映出在解析欺骗性盆地时需要联合细化趋势和精度。

逐模型的详细轨迹进一步阐明了这些集成级趋势背后的分工。三个低信息容量的线性模型（Lasso、岭回归、弹性网络）很少主导最终性能，但在早期和中期阶段表现出持续上升的 OOBR^2 ，尤其是在 Schwefel 上，这表明其全局平滑的参数化能够捕捉粗粒度的大尺度趋势，而不会对局部波动反应过度。当它们的评分上升且集成权重暂时增加时，聚合预测往往倾向于沿着这些粗略方向移动，进而有助于触发长距离探索性跳跃，例如 Schwefel 中观察到的跳跃。这些跳跃并不总能立即带来更优的目标函数值——事实上，它们往往与目标值和到最优点的距离暂时恶化同时出现——但能够以相对较低的代价，为确认或证伪候选全局方向提供有价值的证据。相比之下，高信息容量模型（多层感知机、LightGBM 和 XGBoost）以及诸如 k近邻等中等容量模型，对局部结构更加敏感，并会在获取新的高目标值样本或边界样本时作出强烈响应。它们的 OOB R^2 和 ELPD 会随探索脉冲呈现明显波动，而模型间的异质评分是形成高均值、高方差配置的主要因素之一， rKF 的设计正是为了放大这种配置。因此，这些动态并非由任何单一组件驱动，而是源于耦合交互：低容量模型提供保守的全局趋势罗盘，高容量模型充当对局部敏感的结构探测器，两个评分通道共同调节反向融合的使用程度，以探索存在分歧的边界区域。

总的来说，面板（c）中的动态表明，该框架整合了三个相互作用层中的信息。在数据融合层，KF/rKF分支将各模型的预测均值和不确定性结合为共享的融合场，使跨模型证据能够塑造局部预测景观。在模型加权层，KF分支和基于UCB的采集分支都利用源自OOB的模型评分，调节各代理模型对预测和效用信号的贡献程度。在评分推断层，互补的R^2 和ELPD通道概括了两种认识论视角（逐点准确度与分布级校准），其偏差比则调节每种视角对逆融合组件的影响程度。结合低容量趋势估计器与高容量局部检测器之间的分工，这三个层次共同构成了一个连贯的反馈回路：模型行为的差异产生评分层面的重新加权，进而在预测层面和采集层面重塑融合，最终形成面板（a）和（b）中观察到的自适应探索-利用模式。

2.2 在异构数据集上的表现

我们在十四个材料数据集上对该框架进行了基准测试，这些数据集的规模跨越近四个数量级（从 $\sim 6 \times 10^2$ 到 $\sim 4 \times 10^6$ 个样本），特征维度则跨越两个以上数量级（从 10 个到 1,000 多个特征）1。为统一呈现各数据集在结构和信息多样性方面的特点，我们量化了每个数据集的几何与信息论指标，包括内在维度 d_{int}、有效分辨率 $R = N/d_{\mathrm{int}}$和多目标冲突指数

C_{obj}（表 1）。由此呈现出的景观涵盖了极其异质的多个领域：规模小、严重欠定的实验数据集，例如高熵合金硬度和居里温度（$N < 2{,}000$）；中等规模、复杂度适中的模拟数据集，例如介电、3DSC TC nosoap和Materials Project （$N \approx 2 \times 10^3$–5×10^4）；以及规模庞大、维度极高的数据集，例如QM9、alexandria icams和omol。（$N > 5 \times 10^4$）。

表1：用于基准测试的材料数据集摘要，结合了结构与信息复杂度指标。 N：样本数；d：特征维度； d_{int}：内在维度； $R = N/d_{\mathrm{int}}$：有效分辨率； C_{obj}：目标冲突指数。

数据集	Type	N	d	d_{int}	R	C_{obj}	目标属性
高熵合金硬度	Exp-S	635	145	11	58	-	硬度（H）
居里温度[54]	Exp-S	1,749	140	22	80	-	居里温度（T_C）
增材制造	Exp-M	2,167	10	6	361	-	相对密度（ρ_r）
钢[55]	Exp-M	2,180	133	6	363	0.29	0.2%条件屈服应力（$\sigma_{0.2}$），极限拉伸强度（σ_{UTS}）
熔点[56]	Exp-M	3,025	1,024	589	5	-	熔点（T_m）
带隙[57]	Exp-M	6,030	132	26	232	-	带隙（E_g）
3DSC_TC_nosoap[58]	ExpSim-M	5,773	148	25	231	1.02	临界温度-（$T_{critical}$），高于凸包能量（ΔE_{hull}），E_g，磁-化（M）
介电[59]	Sim-M	4,762	271	31	154	-	折射率（n）
optimade_2dmat[60]	Sim-M	6,351	274	34	187	-	E_g
Materials Project[61]	Sim-L	52,613	271	33	1,594	0.98	形成能（E_f），M，E_g
powerfactor[62]	Sim-L	94,250	28	13	7,250	-	功率因数（PF）
QM9[63]	Sim-L	133,139	1,025	820	162	0.60	热容量（C_v），各向同性极化率（α），HOMO–LUMO能隙（ΔE_{HL}）
alexandria icams[64]	Sim-L	415,412	275	37	11,227	0.92	ΔE_{hull}，M，E_g
omol[65]	Sim-L	3,986,754	128	15	265,784	-	ΔE_{HL}

在这些材料数据集上进行封闭池优化，远比在合成测试函数上更具挑战性。除了特征维度高、样本量差异大之外，若干相互交织的结构因素也决定了有效难度：严重稀疏性（有效分辨率范围为 R=5 至 2.7×10^5）、高达 $d_{\mathrm{int}} > 800$ 的内在维数、异质的局部邻域，以及复杂的

候选池拓扑结构。对于多目标数据集，目标之间的冲突还会带来相互竞争的下降方向和不兼容的局部盆地。复杂性的另一个来源是封闭候选池本身的熵。omol 和QM9 等大型数据集包含数百万个尚未查询的条目，形成高熵的组合景观，必须从中定位有信息量的子流形；而steel 或HEA 等小型数据集则面临覆盖性不足和连通性不完整的问题，使不确定性主要源自信息缺失。这两个极端——过大的搜索域和采样不足的流形——都会增加系统熵，并要求优化器抑制无关变化，同时将探索集中于与目标相关的区域。因此，有必要超越特征数量或数据集规模本身，对数据集难度进行系统分解。

因此，这些多维指标使我们能够按照三个大体正交的难度轴对数据集进行组织，如热图所示4。**A 轴** （信息匮乏）包括钢、powerfactor和3DSC TC nosoap等数据集；这些数据集图距离较大（$D_{\text{hop}} \to \infty$）、目标稀疏性强（$R_\rho > 2$）且特征–目标耦合较弱（$\bar{\text{MI}}^{\text{FC}}_{\text{avg}} < 0.1$），因此在数据严重受限的情况下需要进行主动信息收集。**B 轴** （异质性与多模态性）以3DSC TCnosoap、Materials Project和熔点为代表，其特征是空间自相关较低（Moran′$s\ I < 0.4$）、相关长度较短（$\ell_c < 0.5$）且存在多种结构模态（K^*=5）；这对框架提出了挑战，要求其融合异质的模型信息与邻域信息，形成连贯的全局趋势。**C 轴** （欺骗性与障碍主导）包括3DSC TCnosoap、Materials Project和介电等数据集；它们的最宽路径容量较窄（$B_{\text{mm}} < 0.1$）、割值较大（最小割 > 30），且临界跳跃距离较长（$\epsilon^\star > 80$），表明存在拓扑瓶颈，取得进展依赖于少见的高增益跃迁。总体而言，这三个轴涵盖了广泛且具有代表性的问题类型——从稀疏且欠定的系统，到异质、多模态且屏障主导的景观——为在不同信息机制下评估该框架提供了严格而多样的测试平台。有趣的是，为材料数据集确定的三个难度轴，分别映射了三个数学基准中编码的结构性挑战。与每个数学函数仅隔离一种主要失效模式不同，真实材料数据集往往同时呈现这三种挑战的组合，使封闭池优化成为对方向推断、异质性解析和跨盆地探索的综合考验。

我们接下来在这些数据集上评估所提出的框架，以量化其在不同复杂度水平下的收敛效率与鲁棒性。对于每个数据集，我们以20个属性值不超过数据集中位数的点进行初始化。每次迭代提出一批10个候选点；若在预算限制内（50次迭代、500个样本）能够找到前min(10, $0.01N$)个候选点中的任意一个，则该次运行视为成功并停止优化；否则，该次运行视为失败。为量化结构多样性下的鲁棒性，每个数据集重复10次，采样不同的初始化与采集轨迹。

表格2 表明，尽管这十四个数据集的规模和复杂程度差异很大，该框架仍能在所有数据集上保持较高的收敛效率和稳健性。总体而言，14 个数据集中有 13 个的成功率达到 100%，而其余一个仍保持

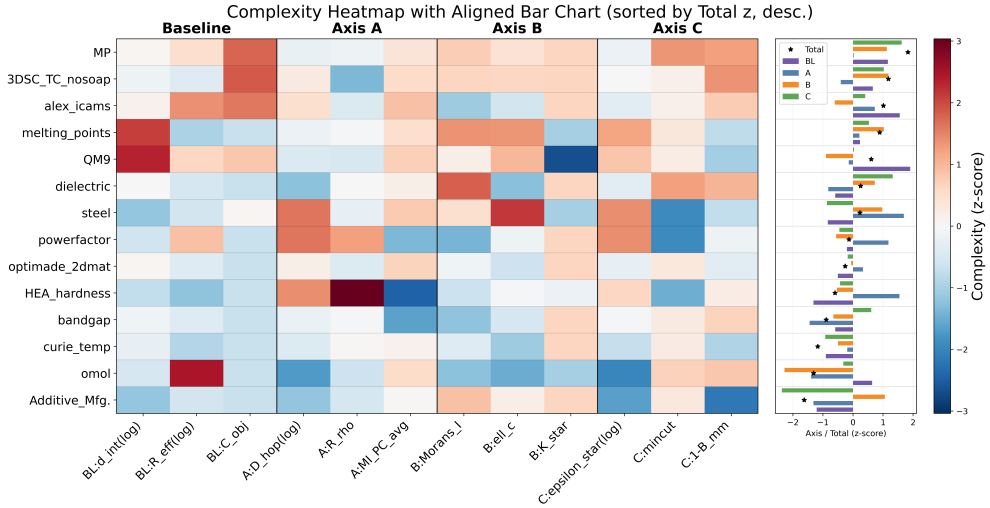

图 4：**所有数据集的复杂度热图**。每一行对应一个数据集，按归一化总难度（硬度 z-score）降序排列。各列分为四类：基线指标（d_{int}、有效分辨率$R_{\text{eff}} = N/d_{\text{int}}$和目标冲突 C_{obj}）；A 轴（信息匮乏：起点–目标图距离 D_{hop}、目标–邻域稀疏度 R_ρ、主成分与聚合目标之间的平均互信息 $\text{MI}_{\text{PC, avg}}$）；B 轴（异质性和多模态性：Moran's I、相关长度 ℓ_c、多模态性 K^*）；以及 C 轴（欺骗性与障碍主导：所需跳跃 ϵ^*、最小割容量、瓶颈宽度 $1 - B_{\text{mm}}$）。颜色表示标准化难度（z-score），红色表示更困难的条件，蓝色表示较容易的条件；白色表示平均水平。右侧对齐的条形图显示各轴综合得分（基线、A–C）和总体总难度，并与热图各行对齐。

较高水平（90%），即使在最极端的情况下也不例外：`omol`。所有情况下成功所需迭代次数的中位数都远低于 50 次的预算：小型数据集，或在轴 A/B/C 上难度较低的数据集（如高熵合金硬度、钢、带隙），通常在 2–8 次迭代内即可求解；而结构异质性较高的多目标数据集，例如`3DSC TC nosoap`、Materials Project、`powerfactor`和`alexandria icams`，也能在 15–21 次迭代内收敛，远低于采样预算。值得注意的是，超高维`QM9`数据集（$d_{\text{int}} > 800$）成功所需迭代次数的中位数仅为 2 次，这表明只要底层流形得到充分采样，高内在维数本身并不会降低性能。

不同数据集之间的变化与综合难度轴的相关性，比与单独的 N 或 d_{int} 的相关性更强。以 A 轴（信息稀缺）为主、但拓扑结构相对简单的数据集（例如 高熵合金硬度、增材制造）收敛迅速，四分位距较窄；而以 C 轴为主或 ABC 耦合的情形，若存在显著的瓶颈和多模态性（`3DSC TC nosoap`、Materials Project、`powerfactor`、

表2：所有材料数据集的性能汇总。对于每个数据集，我们报告主要难点维度、10 次运行的总体成功率、达到性能最佳候选项所需迭代次数的中位数，以及 20–80% 四分位距（IQR）。

数据集	Axis	成功率 [%]	成功所需迭代次数中位数	IQR [20%，80%]
高熵合金硬度	AC	100	2	[1, 3]
居里温度	BC	100	3	[3, 6]
增材制造_	BC	100	4	[2, 11]
钢	ABC	100	2	[1, 3]
熔点 _	ABC	100	7	[2, 11]
带隙	BC	100	8	[3, 12]
3DSC TC nosoap	ABC	100	16	[5, 26]
介电	BC	100	6	[4, 10]
optimade 2dmat	ABC	100	9	[4, 11]
MP	ABC	100	21	[13, 22]
powerfactor	ABC	100	15	[5, 24]
QM9	ABC	100	2	[2, 4]
alexandria icams	ABC	100	15	[5, 22]
omol	AC	90	4	[1, 39]

alexandriaicams），其中位迭代次数更高，四分位距也更宽。在 omol 这类超大型、高分辨率候选池中，要从数百万个条目中找出前10候选，实际上意味着目标落在分布中极其狭窄的尾部，因此一次运行必须积累更多信息才能取得成功；这自然会扩大所需工作量的分布，即使迭代次数的中位数仍然较低。总体而言，这些结果表明，所提出的框架能够在广泛的结构体制中可靠地发现性能最佳候选项；而高度异质或屏障主导数据集表面上工作量的增加，反映的是成功标准更加严格，而非底层优化机制失效。

为展示该框架在具有代表性信息特征的不同情形下的表现，我们在正文图5中详细呈现了三个材料数据集的结果：3DSC TC nosoap、alexandria icams和QM9。这些数据集涵盖了图4中确定的主要基线和难度维度。其余十一个数据集的完整优化结果——包括超大规模数据池（omol、Materials Project）、稀疏实验数据集（高熵合金硬度、居里温度、带隙），以及中等规模或多模态系统（钢、熔点、powerfactor）——见补充材料部分。 -

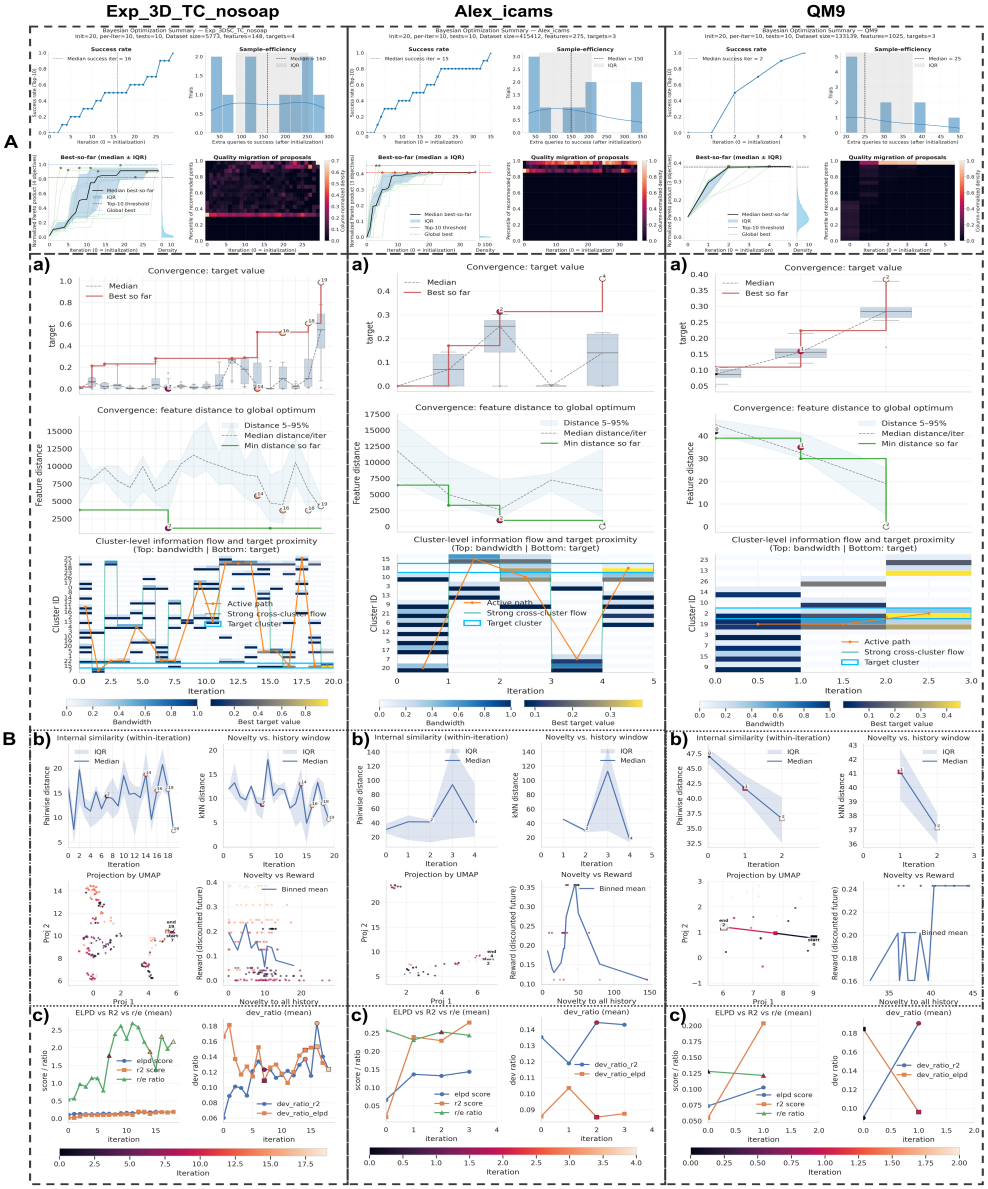
Exp_3D_TC_nosoap
Alex_icams
QM9
A
B
a)
b)
c)
Convergence: target value
Median
Best so far
target
Convergence: feature distance to global optimum
Distance 5–95%
Median distance/iter
Min distance so far
Feature distance
Cluster-level information flow and target proximity
(Top: bandwidth | Bottom: target)
Active path
Strong cross-cluster flow
Target cluster
Cluster ID
Iteration
Bandwidth
Best target value
Internal similarity (within-iteration)
IQR
Median
Pairwise distance
Novelty vs. history window
kNN distance
Projection by UMAP
Proj 1
Proj 2
Novelty vs Reward
Binned mean
Reward (discounted future)
Novelty to all history
ELPD vs R2 vs r/e (mean)
elpd score
r2 score
r/e ratio
score / ratio
dev_ratio (mean)
dev_ratio_r2
dev_ratio_elpd
dev ratio

图 5：**三个代表性材料数据集上的封闭池优化行为**。各列分别对应3DSCTC nosoap（左）、alexandria icams （中）和QM9 （右）。**A：10 次运行的总体性能**。成功率曲线（左上）、样本效率分布（右上）、迄今最优收敛与性质密度分布（左下），以及提议质量迁移（右下），共同概括了不同结构情形下的鲁棒性和样本效率。**B：具有代表性的单次运行分析**。各面板采用与数学基准测试相同的（a–b–c）分解方式：(a) 动态过程与簇级带宽流；(b) 数据几何演化（相似性、新颖性和 UMAP轨迹）；(c) 模型层面的分数自适应（R^2、期望对数预测密度，以及由偏差比驱动的 rKF 加权）。综合这些视图可以看出，该框架如何针对数据集的具体难度调整探索–利用平衡：在异质的3DSC TCnosoap中反复跨吸引盆迁移，在高分辨率alexandria icams中逐步筛选，并在平滑的高维QM9流形上快速完成单次定位。

作为对图中汇总统计的补充，5A，底部区块（图5B）展示了相同三个数据集的代表性单次运行轨迹，并采用与数学基准相同的三面板划分：动态变化和按簇带宽（a）、数据层面的结构与新颖性（b），以及模型层面的分数演变（c）。

对于3DSC-TC-nosoap，汇总面板 A 显示，成功率逐步上升，样本效率分布则相对宽泛且近乎均匀。前10候选稀疏地散布在长尾区间（约为 0.8–1.0，参见迄今最优图、密度图），而“质量迁移”热图显示，推荐样本覆盖了较广的性质分布范围，但随着迭代推进，0.9–1.0 区间内的占比逐渐提高。在代表性运行中，动态面板呈现出迄今最优目标值显著的阶梯式提升；而只有在发现首个高质量簇时，到全局最优的距离才会骤然缩短，随后保持在一个有限偏移量级 4×10^3；这与包含多个吸引力相当的吸引盆的景观相符。中位目标值和中位距离都经历了多次急剧下降，随后部分恢复；每次变化都与下方面板中显著的跨簇带宽转移同时发生：带宽持续分布在多个簇上，直到最后几次迭代才集中到少数主导采样的簇上。数据层面诊断显示出相应的新颖性脉冲（批内距离和相对于历史数据的新颖性同时激增），以及多叶UMAP结构，轨迹在不同流形之间跳转。新颖度–奖励关系随运行推进而上升，表明在收集到足够的结构信息后，高奖励样本往往具有中等到较高的新颖性。在模型侧，OOB R^2 略高于期望对数预测密度，但两者的绝对水平都不高；而R^2/期望对数预测密度比值较大，两个偏差比趋于相似水平，并与新颖性脉冲共同变化。这表明搜索机制由逐点、 R^2驱动的探索主导，其中反向融合会在两个通道上反复启用，以探查高分歧边界区域；这与合成基准测试中观察到的 Rastrigin/Schwefel 式行为十分相似。

对于alexandriaicams，它代表一个规模极大但解析充分的封闭候选池，汇总统计仍呈阶梯状，但集中程度明显更高。大多数运行在额外查询 0–200 次内成功，只有两个较晚的离群值接近 350 次查询的上限。前十样本的分布位于极长的尾部（约为 0.40–0.46），远离主峰；然而迄今最优曲线在大约五次迭代内便达到这一水平，即使最慢的运行在约 25 次迭代后也非常接近全局最优（参见迄今最优图）。质量迁移热图显示，从第一次迭代开始，提议就已高于第 80 百分位数，并迅速集中到 0.85–1.0 区间，之后逐步向 0.95–1.0 偏移。在单次运行动态中，迄今最优值随步长减小而平稳提升；经过初期较为分散的阶段后，带宽迅速在第二次迭代时锁定到主导簇，并于第四次迭代找到全局最优，仅发生少数中等距离的簇间跳转。在数据层面面板中，批内距离呈中等幅度的波动，但找到高质量区域后，相对于历史数据的新颖性迅速衰减，且 UMAP 轨迹形成一条相对连贯的带状结构，而非在非连通分量之间跳转。新颖度–奖励曲线显示，早期迭代中等新颖性带来的增益最大，而最后一次迭代仅包含小幅的局部细化移动；这与一种主要挑战在于筛选稠密候选池、而非跨越深层障碍的情形相符。相应地，OOB R^2和期望对数预测密度以更同步的方式上升，R^2/期望对数预测密度比值保持在中等范围，两个偏差比则朝相反方向变化，其中偏差比 $R^2 >$ 偏差比 ELPD；这表明集成已能较好地捕捉全局分布，并会择机使用 R^2 反向融合，在主导吸引域内细化决策边界，而非发起远距离迁移。对于QM9，难点主要在于内在维度高，以及需要进行远距离但与几何结构对齐的移动，而异质性相对较低。成功率曲线几乎线性上升，并在仅两次有效迭代后趋于饱和；样本效率直方图则呈现尖锐的峰值。迄今最优轨迹的四分位距极窄，并几乎立即达到前十区间（约为 0.36–0.38）。提议质量热图显示，第一次迭代后，几乎所有推荐分子都已位于候选池前 5%（0.95–1.0），后续迭代只是在该范围内继续细化。在代表性运行中，迄今最优值和距离都在少数几次迭代中近乎线性地改善，随后趋于饱和；簇带宽则迅速收缩到两个相邻的簇上，其中各自都包含近似最优的候选点。数据侧诊断显示，第一次迭代出现单个主导新颖性脉冲，随后批内距离和新颖性大致线性下降；UMAP 轨迹沿着一个数据充足的流形平滑地朝单一方向延伸。新颖度–奖励散点图随时间收拢至低新颖度、高奖励的区域，表明一旦确定了正确的流形区域，只需进行小幅且与几何结构对齐的扰动，便能达到最优点。在评分侧，OOB R^2 和期望对数预测密度都在前两次迭代内上升；到第二次迭代时，偏差比 R^2 急剧增加，而偏差比 ELPD 则下降。这与一种校准已趋稳定、并短暂强调 R^2 通道中的反向融合以细化正确吸引盆内局部几何结构的机制相符。

总体而言，这些单次运行分析表明，在合成基准上识别出的同一套信息论机制——探索性新颖脉冲、跨簇的带宽重新分配，以及互补的 R^2/ELPD通道（由偏差比控制的反向融合调制）——会在真实材料数据集中再次出现，但会随主导难度轴的不同而以不同方式显现。诸如3DSC TC nosoap 之类的异构多模态系统依赖于反复的高方差转移和持续的边界采样；诸如alexandria icams之类的密集高分辨率池则强调逐步筛选与局部边界锐化；而诸如QM9之类高维但填充良好的流形，则由一次强烈的探索性脉冲及随后的快速收缩来求解。这种行为多样性，连同表2中的高成功率，再次支持如下观点：该框架会使其探索–利用平衡适应底层信息体制，而不是遵循固定的采样模式。我们的方法与其他优化器在单一目标数据集上的封闭池基准测试见补充材料。

此外，我们在补充信息中报告了两组互为补充的实验，从数据角度进一步表征该框架。第一组测试考察了在严格限定的目标区间内识别候选点的能力，从而评估其不仅能否跟随趋势，还能否进行高精度筛选。对于包含 $\sim 4 \times 10^5$ 个条目的 alexandria icams 数据集，我们考虑了一个多目标区间约束任务，要求同时满足 $M \in [19.95, 20.05]\ \mu_{\mathrm{B}}$ f.u.$^{-1}$、凸包距离 < 0.03 eV atom^{-1} 和带隙 $E_{\mathrm{g}} \in [1.45, 1.55]$ eV。在两次独立运行中，该框架分别在 27 次和 35 次迭代内识别出满足全部三项约束的候选点，找到的目标值分别为 (M: 19.993，d_{conv}: 0，E_{g}: 1.509) 和 (M: 19.999，d_{conv}: 0.022，E_{g}: 1.526)，这表明，当设计目标要求严格的窄容差时，所提出的流程既能支持粗粒度的轨迹探索，也能进行严格的基于数值的筛选。

第二组实验聚焦于物理描述符的构建及其与信息流程的交互。在 3DSC 数据集上，结合 Magpie（148 维）+ SOAP（8715 维）的表征形成了一个 8863 维的特征空间。仅使用 Magpie 子集时，该框架已能实现具有竞争力的收敛效果；使用完整特征集并严格限制为 30 次迭代时，10 次独立运行中仍有 7 次成功，与低维设置相比性能仅略有下降。这表明该方法具有一定的维度鲁棒性：我们没有采用可能舍弃物理相关但相关性较弱方向的激进特征剪枝，而是保留所有候选特征，并在模型层面利用信息预算和容量控制来过滤噪声。作为对表征质量的补充考察，在 OMOL 实验中，我们将从预训练通用分子动力学势（UMA）中提取的 128 维描述符用作 $\sim 4 \times 10^6$ 分子的输入。在预算受限的情况下，该框架能够高效地发现性能优异的候选点，表明高质量的学习得到的表征天然适用于所提出的信息流程，并为通过描述符学习将大型材料基础模型整合到物理轴 Φ_t提供了直接途径。

3 方法

3.1 信息论表述：从函数逼近到系统熵减

标准贝叶斯优化通常将材料设计视为一个函数逼近问题：通过迭代优化响应面的代理模型$f(x)$，以启发式方式估计最优点 $x^\star$[13]。这种观点隐含地假设，代理模型的归纳偏置与底层物理机制高度契合；但在高维、数据稀缺情形下，这一假设往往不成立。在此类情形中，主要难点并非在所有地方逼近 $f(x$，而是对潜在最优结构形成连贯的判断 $Z^\star$，以表征目标相关流形的真实构型[23]。

我们不将代理模型孤立地看待，而是明确地将优化过程建模为一个三元信息系统的演化：

$$S_t = (D_t, \mathcal{M}_t, \Phi_t),$$

由三个正交信息轴构成（见算法 1）：

1. 数据轴（D_t）：截至第 t 次迭代累积的、有实验或模拟观测依据的数据集。2. 模型轴（$\mathcal{M}_t$）：异构代理模型集成及其不确定性估计和可靠性权重。3. 物理轴（Φ_t）：候选空间的结构约束与流形几何，包括外部库、盒约束和基于聚类的几何结构。

给定这一状态，设计结果的剩余不确定性由条件熵 $H(Z^\star \mid S_t)$ 描述。我们的目标并非最大化瞬时效用，而是在严格的评估预算下设计一种使该熵最小化的策略 π。在每次迭代中，我们从可行候选集 $\mathcal{X}_t \subseteq \mathcal{X}$ 中选择下一个查询 x_{t+1}，以最大程度地降低关于 $Z^\star$ 的预期不确定性：

$$x_{t+1}^\star \in \arg\max_{x \in \mathcal{X}_t} I(Z^\star; y(x) \mid S_t), \tag{1}$$

其中，$y(x)$ 表示在 x 处的观测（可能含噪且涉及多个目标），而 $I(\cdot;\cdot \mid \cdot)$ 表示条件互信息[24, 52]。根据对称性，

$$I(Z^\star; y(x) \mid S_t) = H(y(x) \mid S_t) - \mathbb{E}_{Z^\star \sim P(\cdot \mid S_t)}\big[H(y(x) \mid S_t, Z^\star)\big],$$

因此，当候选点具有较高的预测不确定性，且关于最优点的信息能够消除此不确定性时，它们会更受青睐；与任务无关的噪声则会被降低权重。

在标准的条件独立假设下，互信息是单调次模目标函数，在理想化情形中，贪心选择边际信息增益最大的点可达到近似最优 [66–68]。尽管我们没有

算法 1 熵感知多源贝叶斯优化

给定初始数据集 D_0, 领域规范（候选池 X_{pool} 或盒约束）和物理过滤器 Φ_{phys}。
初始化 $t \leftarrow 0$、$\mathcal{M}_0 \leftarrow \emptyset$、$\Phi_0 \leftarrow \Phi_{\text{phys}}$，状态 $S_0 = (D_0, \mathcal{M}_0, \Phi_0)$。
重复
  阶段 0：维度感知容量控制
  根据当前的（X_t, y_t）估算有效维度 d_{eff}。
  计算信息预算 N_{budget}。
  阶段 1：目标条件代理模型塑造
  在 N_{budget} 下，使用目标偏置自助采样拟合异质集成 $\mathcal{M}_t$。
  计算袋外准确率、校准、稳定性和结构趋势可靠性。
  阶段 2：结构感知候选构造
  如果 X_{pool} 可用，**则**
    $X_{\text{cand}} \leftarrow X_{\text{pool}}$
  else
    通过差分进化和索博尔探索生成 X_{cand}。
  结束如果
  嵌入并聚类 X_{cand}；计算结构权重 $\pi(x)$。
  使用 X_{cand} 的聚类结果更新 Φ_t 的结构/几何分量。
  阶段 3：多源融合与采集
  对每个 $x \in X_{\text{cand}}$ **执行**
    计算族级矩（$\mu_{a,\,t}(x)\sigma_{a,\,t}(x)$）。
    通过可靠性加权聚合，构建每个模型的采集通道。
    使用偏差比计算卡尔曼滤波/反向卡尔曼融合通道。
    通过 ℓ_2 后期融合融合各通道，得到 $A_t(x)$。
  结束循环
  使用 $U_t(x) = \pi(x)\, A_t(x)$ 对候选点进行排序（若 $q > 1$，则使用 MO 感知扩展）。
  通过 $U_t(x)$ 中的多样性感知排序选择批次 $X_{\text{next}} \subset X_{\text{cand}}$。
  在 X_{next} 上调用预言机以获得新的数据对；更新 D_{t+1}。
  设置 $S_{t+1} = (D_{t+1}, \mathcal{M}_t, \Phi_t)$ 和 $t \leftarrow 1 + t$。
直到 $|D_t| \geq B$ **或**达到所需的目标值
返回最终集成 $\mathcal{M}_T$ 和评估集 D_T。

以闭式形式计算式（1），这一结果提供了概念上的基准：我们的采集机制被设计为一个易于处理的、基于集成的代理，用于 $I(Z^\star; y(x) \mid S_t)$，并在有限候选集 $\mathcal{X}_t$上运行。

3.2 构建三方信息通道

直接在高维域上优化公式（1）是不可行的。因此，我们通过四阶段流程来塑造 S_t 的演化，使数据、模型和物理这三个轴协同对齐，从而最大化信息流。算法1 概述了整体循环；下面我们将说明各阶段的设计原则。详细的数学公式和实现选择见补充实现细节。

校准模型轴（阶段0–1）。

模型轴 $\mathcal{M}_t$ 被构建为函数空间后验 $P(f \mid D_t)$ 的粒子近似。为避免在高维空洞中臆造结构，我们首先进行维度感知容量控制（阶段0）。受高维数据的流形视角启发 [17],，我们估计观测到的设计–响应对的有效内在维度d_{eff} ，并将其映射为信息预算 N_{budget} ，以此限制代理模型复杂度和超参数范围[69]。这确保模型的表达能力仅随目标相关流形的估计复杂度按比例增长。

在此预算下，阶段1执行目标条件代理模型塑造。我们构建由线性、基于树和神经网络代理模型组成的异质集成，这些模型在目标偏置自助采样分布下训练；该分布源自对特征空间[39]的聚类。每个结构簇中的高性能样本会以“无温度”的方式提高权重，从而有效地在数据空间中实施重要性采样。针对每个族，我们在预算 N_{budget} 内优化超参数并将其固定；随后通过自助采样训练，获得袋外（OOB）精度、校准（例如 R^2、期望对数预测密度）、结构趋势保真度和稳定性的估计值。这些 OOB 指标会归一化为族级可靠性权重，并在阶段 3 中用于调节逐模型采集函数和融合权重。

阶段0在每次迭代中都会使用更新后的数据集 D_t重新评估，以便 d_{eff}和 N_{budget} 能够适应数据流形分辨率的不断变化。

约束物理轴（阶段 2）。

物理轴 Φ_t 定义了可行搜索几何。我们不在整个环境空间中进行优化，而是构建一个结构感知候选流形 $\mathcal{X}_t$。在封闭候选池设置中， $\mathcal{X}_t$ 与固定候选库一致。在连续域或混合域中，阶段 2 通过结合利用与探索来生成由代理模型隐含的候选点云：对于每个代理模型族，针对随机族级目标函数运行差分进化（DE），该目标函数通过对一小部分自助法成员进行随机平均构建[70]；此外，还针对集成平均目标函数运行一次 DE；最后，加入 Sobol序列（或拉丁超立方）设计，作为几何对齐探索基线[71]。

这些点的并集被嵌入低维空间，并通过自适应程序进行聚类，该程序结合了高斯混合模型、HDBSCAN、k-均值和采用多种超参数设置的Leiden划分[72, 73]。选定的划分为每个候选点生成簇标签和局部几何描述符（密度、到簇中心的距离、边界指标），并将其汇总为结构权重$\pi(x) \in (0, 1]$ 。对于认知充分区域内的核心点，赋予略低的 $\pi(x)$；而边界点、模式间桥接点以及稀疏采样尾部则会获得更高权重。聚类信息和结构权重会更新物理分量 Φ_t，而 $\mathcal{X}_t = X_{\text{cand}}$ 则构成有限支撑，基于该支撑对式（1）进行近似。

通过数据轴闭环（阶段 3）。

阶段 3 融合三个轴的信息，以计算$\mathcal{X}_t$上的采集分数。对于每个候选点 x、代理模型族 a 和目标 t，我们首先根据自助法成员计算模型族层面的矩（均值和方差），并据此构建双通道信噪比，以区分高价值峰值和宽广的改进边界。结合结构趋势指标后，可得到探索—利用比率$\gamma_{a,\,t}^{\mathrm{ee}} \in [0,1]$ 该比率决定模型族 a 针对目标 t 主要用于利用（由准确性驱动， R^2）还是用于探索（由校准驱动，期望对数预测密度）。

随后，将标准单模型采集函数（例如均值—方差权衡）按其可靠性以及 $\gamma_{a,\,t}^{\mathrm{ee}}$ 加权，并在不同模型系列间聚合，形成模型采集通道。与此同时，通过类卡尔曼聚合（KF）及其反向形式（rKF）构建融合通道，以放大高方差边界区域。偏差比 λ_t^{dev} 根据归一化袋外分数的均值和方差计算，用于控制 KF 与 rKF 之间的权重平衡：当平均性能较高但分散程度较大时，会增加 rKF 的权重，聚焦于集成模型置信度高、但内部差异较大，因而信息丰富的区域。

对于每个目标函数，模型采集通道和 KF/rKF 融合通道通过 ℓ_2 后期融合相结合，生成单个逐目标分数 $A_t(x)$。在多目标情形下，向量 $\mathbf{A}(x) = (A_1(x)\ldots,A_q(x))^\top$ 还会经过进一步处理，以纳入数据驱动的目标间依赖关系：我们根据训练残差估计残差协方差矩阵，并在相关后验下使用期望超体积改进的蒙特卡罗近似（MC-EHVI），从而得到多目标分数 $U_{\mathrm{MO}}(x)$[74]。

最后，将阶段 2 中的结构权重 $\pi(x)$ 用作几何先验，

$$U(x) = \pi(x)\, S_{\mathrm{MO}}(x),$$

并按 $U(x)$ 对候选点进行排序。簇感知平局打破规则可确保所选批次 X_{next} 覆盖多个结构模态。使用高成本预言机评估 X_{next} 后，我们更新 D_{t+1}，重新计算阶段 0 量，并将状态推进至 S_{t+1}。

3.3 假设分析与实用稳健性

我们框架中隐含的基于粒子的近似依赖于三个较弱的假设：可实现性（真实物理规律位于集成的假设包络内）、覆盖性（提议 $\mathcal{X}_t$ 与真实目标区域重叠）以及局部光滑性（响应不会在细于 $\mathcal{X}_t$间距的尺度上振荡）。在复杂材料景观中，这些假设可能在局部不成立，例如出现特征盲区、“大海捞针”式最优点或高频混叠。

我们从两个方面降低这些风险。在算法层面，阶段0的维度感知容量控制与阶段1的异质集成分别在两个互补层面发挥作用。阶段0施加一个与有效数据流形相关联的全局信息预算，确保整体假设空间的复杂度不会无限增长，

超过观测数据所能支持的程度。在这一受限预算内，阶段1将容量分配给一系列模型族：低容量分量充当有意欠参数化的代理模型，而高容量分量则专注于解析更精细的结构。与此同时，阶段2中的Sobol序列和边界注入确保探索概率非零，并防止提议分布坍缩；阶段3中的KF/rKF融合则将采样集中在信息性分歧上，而非任意的高方差伪迹。

更根本地说，在现实的实验工作流程中，首要成功标准是该流程是否确实产生高性能样本，而不是代理模型是否对整个响应面给出忠实重构。这种务实的不对称性使我们有理由优先考虑数据轴而非模型轴：只要查询点序列（ S_t 在 D_t 轴上的投影）逐步集中于令人满意的区域，对景观的内部认知表征就可以保持近似。因此，我们可以将学习目标从逐点收敛 $|f(x)-f(x)| \to 0$ 放宽为候选集上的保序排序，

$$f(x_A) > f(x_B) \;\Rightarrow\; \hat{f}(x_A) > \hat{f}(x_B),$$

因此，重要的是诱导排序在 $\mathcal{X}_t$ 上的稳定性，而非 f 在每一点[75]的精确数值精度。

在这一放宽的设定下，集成充当一个谱滤波器组，其分量由阶段0的全局预算控制：低容量族充当几何低通滤波器，用以稳定宏观趋势[17] 并维持覆盖性，而高容量族充当高通滤波器，用以分辨目标尾部[35]附近的局部非光滑性。即便可实现性、覆盖性或光滑性在局部被违反，系统仍会在排序意义上收敛到高效用区域，从而在严格的评估预算下实现快速目标发现。

4 结论

本文提出了材料设计的信息论重构：我们不再将材料设计中的贝叶斯优化视为全局函数逼近问题，而是将其视为三元系统状态$S_t = (D_t、\ \mathcal{M}_t、\ \Phi_t)$的演化，并旨在降低潜在最优结构 $Z^\star$的条件熵 $H(Z^\star \mid S_t)$。通过明确分离数据、模型和物理这三个轴，并借助四阶段流程将它们耦合起来，该框架将难以处理的互信息目标函数 $I(Z^\star; y(x) \mid S_t)$转化为一系列受容量控制、具备结构感知能力且由共识驱动的决策。

从概念上看，这一视角在两个方面有别于经典贝叶斯优化。首先，阶段0和阶段1实施维度感知的容量控制与目标条件训练，确保代理表达能力仅随数据所推断出的有效内在维度 d_{eff} 成比例增长。这可以防止集成在高维空洞中臆造结构，并将模型容量集中用于解析目标对齐流形。其次，阶段 2 和阶段 3 通过结构化候选流形和多通道采集规则对搜索重新参数化。

候选流形将探索限制在代理支撑轨迹和经策略性保留的应力点上，而采集规则则将逐模型分数、类卡尔曼一致性/分歧（卡尔曼滤波/反向卡尔曼融合）以及结构先验 $\pi(x)$ 结合起来，形成互信息增益的单一代理指标。这些机制共同将优化目标从对 $f(x)$ 的逐点重构，转向在候选集上维持稳健且保序的排序，这符合实际需求：与彻底理解景观相比，找到优质材料更为重要。

在高维合成基准与真实材料设计问题中，这种多源融合策略始终表现出三种典型行为。首先，它能迅速识别并跟踪目标对齐轨迹，优先选择能够细化有前景通道几何结构的查询，而不是把测量浪费在平坦、低收益区域。其次，它在严重模型失配下仍保持稳健：当单个代理模型将尖锐的物理转变误判为噪声或不确定性时，集成层面的可靠性、信噪比和结构评分可防止采集被任何单一错误的归纳偏置所主导。第三，通过利用反向卡尔曼融合驱动的高价值分歧区域探索，该方法系统地将预算分配给对集成当前信念的压力测试，从而即使真实值远在初始训练先验之外，也能实现快速熵减。

与此同时，我们方法的理论依据建立在三个虽弱但并非平凡的假设之上：可实现性（真实物理规律位于集成凸包之内）、覆盖性（候选点提议与 $Z^\star$重叠）以及局部光滑性（离散排序保持连续趋势）。我们的许多设计选择都可以理解为有针对性的对策：异构集成与容量瓶颈提升可实现性；阶段 2 中的Sobol序列与边界注入可防止模式坍塌、保障覆盖性；将优化限制在有效维度 d_{eff} 可减轻高维环境空间中的混叠。更根本地，通过优先考虑数据轴而非模型轴，并将目标从逐点准确度放宽到排序稳定性，该框架被设计为在这些假设仅近似成立时仍能优雅降级。低容量分量充当几何低通滤波器以确保全局覆盖，而高容量分量则细化目标尾部附近的局部结构；由此产生的谱分解将集成转化为对建模缺陷具有稳健性的滤波器组。

展望未来，若干方向显得尤为有前景。在建模方面，与学习描述符和生成先验的更紧密整合可以进一步强化覆盖性与可实现性假设，例如借助基于分数的模型或基于扩散的候选点提议。在信息论方面，对互信息更有原则的近似，以及跨迭代对信息预算的自适应调度，有望在极端数据稀缺条件下提高样本效率。更广泛地说，我们的结果表明，自主材料发现要取得稳健进展，可能需要从以价值为中心的贝叶斯优化转向明确以信息为中心、基于轨迹的设计。通过将数据、模型与物理视为统一熵减问题中的耦合通道，所提出的框架为未来系统提供了一份蓝图，使其不仅能够找到更好的材料

在紧张预算下，还能推理信息缺失之处以及如何最有效地获取信息。

致谢。作者衷心感谢德国研究联合会的支持——项目编号 405553726——TRR 270。作者还衷心感谢达姆施塔特工业大学 NHR4CES NHR 中心的 Lichtenberg 高性能计算机提供的计算时间。该项目由联邦教育与研究部以及各州政府资助；这些州政府依据 GWK 的决议，共同参与支持大学的国家级高性能计算（ www.nhr-verein.de/unsere-partner）。

声明

致谢

本研究得到德国研究联合会的支持——项目编号 405553726——TRR 270。我们还衷心感谢达姆施塔特工业大学 NHR4CES NHR 中心的 Lichtenberg 高性能计算机提供的计算时间。该项目由联邦教育与研究部以及各州政府资助；这些州政府依据 GWK 的决议，共同参与支持大学的国家级高性能计算（ https://www.nhr-verein.de/unsere-partner）。

利益冲突

不存在需要声明的利益冲突。

数据和代码可用性

如有合理需求，可向通讯作者索取开展本研究所需的全部数据。研究期间生成或使用的所有代码均可在 GitHub 代码库中获取。

作者贡献

张逸轩：概念构思、方法学、软件、撰写初稿、验证、形式分析、调查、可视化、数据整理；李志远：概念构思、方法学、软件、形式分析、验证、撰写、审阅与编辑；何伟佳：概念构思、方法学、软件、验证、撰写、审阅与编辑；戴冕：概念构思、验证、撰写、审阅与编辑；沈晨：撰写、验证、审阅与编辑；龙腾：概念构思、方法学、监督、撰写、审阅与编辑；张宏斌：概念构思、方法学、监督、经费获取、项目管理、撰写、审阅与编辑。

通讯作者：张逸轩、龙腾和张宏斌（联系邮箱：yixuan.zhang@tmm.tu-darmstadt.de、tenglong@sdu.edu.cn,

hzhang@tmm.tu-darmstadt.de)。

参考文献

[1] 材料发现与设计的信息科学（2016）。网址：https://link.springer.com/10.1007/978-3-319-23871-5。[2] Rajan, K. 材料信息学：材料的“基因”与大数据。《材料研究年度评论》**45**, 153–169（2015）。网址：https://www.annualreviews.org/content/journals/10.1146/annurev-matsci-070214-021132。出版方：Annual Reviews。[3] Lookman, T., Balachandran, P. V., Xue, D. & Yuan, R. 材料科学中的主动学习：侧重于利用不确定性进行自适应采样以实现定向设计。*npj Computational Materials* **5**, 21（2019）。网址：https://www.nature.com/articles/s41524-019-0153-8。出版方：Nature Publishing Group。[4] Agrawal, A. & Choudhary, A. 观点：材料信息学与大数据——材料科学中“科学第四范式”的实现。《*APL* 材料》**4**, 053208（2016）。网址：https://doi.org/10.1063/1.4946894。[5] Wang, H. 等 人工智能时代的科学发现。《自然》**620**, 47–60（2023）。[6]Ren, F. 等 通过机器学习与高通量实验的迭代加速金属玻璃的发现。《科学进展》**4**, eaaq1566（2018）。网址：https://www.science.org/doi/10.1126/sciadv.aaq1566。出版方：美国科学促进会。[7] Zhang, Y. & Ling, C. 将机器学习应用于材料科学小型数据集的策略。*npj Computational Materials* **4**, 25（2018）。网址 https://www.nature.com/articles/s41524-018-0081-z。出版方：Nature Publishing Group。[8] Zunger, A. 为寻找具有目标功能的材料而进行的逆向设计。《自然综述：化学》**2**, 0121（2018）。网址：https://www.nature.com/articles/s41570-018-0121。出版方：Nature Publishing Group。[9]Box, G. E. P. 科学与统计学。《美国统计学会杂志》**71**, 791–799（1976）。网址https://www.tandfonline.com/doi/abs/10.1080/01621459.1976.10480949。出版方：美国统计学会网站；电子版：https://www.tandfonline.com/doi/pdf/10.1080/01621459.1976.10480949。[10] MacKay, D. J. C. 《信息论、推理与学习算法》（剑桥大学出版社）。Google 图书 ID：AKuMj4PN EMC。

[11] Ramprasad, R., Batra, R., Pilania, G., Mannodi-Kanakkithodi, A. 和 Kim, C. 材料信息学中的机器学习：近期应用与前景。npj Computational Materials 3, 54 (2017). URL https://www.nature.com/articles/ s41524-017-0056-5. 出版方：Nature Publishing Group。[12]Karniadakis, G. E. 等。物理信息机器学习。《自然物理评论》3, 422–440 (2021). URL https://www.nature.com/articles/ s42254-021-00314-5. 出版方：Nature Publishing Group。[13] Garnett, R. 贝叶斯优化（剑桥大学出版社，2023）。[14] Ghiringhelli, L. M., Vybiral, J., Levchenko, S. V., Draxl, C. 和 Scheffler, M. 材料科学大数据：描述符的关键作用。《物理评论快报》114, 105503 (2015). URL https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett. 114.105503. 出版方：美国物理学会。[15]Ward, L., Agrawal, A., Choudhary, A. 和 Wolverton, C. 用于预测无机材料性质的通用机器学习框架。npj Computational Materials 2, 16028 (2016). URL https://www.nature.com/ articles/npjcompumats201628. 出版方：Nature Publishing Group。[16] Deringer, V. L. 等。用于材料和分子的高斯过程回归。Chemical Reviews 121, 10073–10141 (2021). URL https://doi.org/10.1021/acs. chemrev.1c00022. 出版方：美国化学学会。[17] Li, T. 和 He, K. 回归基础：让去噪生成模型执行去噪（2025）。URL https://arxiv.org/abs/2511.13720. arXiv:2511.13720。[18]G´omez-Bombarelli, R. 等。利用数据驱动的连续分子表征实现自动化学设计。ACS Central Science 4, 268–276 (2018)。[19] Shahriari, B., Swersky, K., Wang, Z., Adams, R. P. 和 de Freitas, N. 将人类移出闭环：贝叶斯优化综述。Proceedings of the IEEE 104, 148–175 (2016). URL https://ieeexplore.ieee.org/document/7352306。[20] Balachandran, P. V., Xue, D., Theiler, J., Hogden, J. 和 Lookman, T. 利用不确定性制定材料设计的自适应策略。Scientific Reports 6, 19660 (2016). URL https://www.nature.com/articles/srep19660. 出版方：Nature Publishing Group。[21] Tian, Y. 等。采用目标导向贝叶斯优化的材料设计。npj Computational Materials 11, 209 (2025). URL https://www.nature.com/articles/ s41524-025-01704-4. 出版方：Nature Publishing Group。[22] Qian, X., Yoon, B.-J., Arr´oyave, R., Qian, X. 和 Dougherty, E. R. 面向材料发现的不确定性下知识驱动的学习、优化与实验设计。Patterns 4 (2023)。

[23]Hennig, P. 和 Schuler, C. J. 用于高效信息利用全局优化的熵搜索。机器学习研究杂志 **13**, 1809–1837 (2012)。[24] Hern´andez-Lobato, J. M., Hoffman, M. W. 和 Ghahramani, Z. 用于黑箱函数高效全局优化的预测熵搜索。《神经信息处理系统进展》**27**(2014)。[25] Tenenbaum, J. B., Silva, V. d. 和 Langford, J. C. 用于非线性降维的全局几何框架。《科学》**290**, 2319–2323 (2000)。[26] Long, T., Zhang, Y. 和 Zhang, H. 用于材料逆向设计的生成式深度学习。*arXiv* 预印本 *arXiv:2409.19124* (2024)。[27]Eriksson, D., Pearce, M., Gardner, J., Turner, R. D. 和 Poloczek, M. 通过局部贝叶斯优化实现可扩展的全局优化。《神经信息处理系统进展》**32**(2019)。[28] Moriconi, R., Deisenroth, M. P. 和 Sesh Kumar, K. 利用低维特征空间进行高维贝叶斯优化。《机器学习》**109**, 1925– 1943 (2020)。[29] Kennedy, M. C. 和 O' Hagan, A. 在存在快速近似的情况下预测复杂计算机代码的输出。《生物计量学》**87**, 1–13 (2000)。[30] Abuawwad, N., Zhang, Y., Lounis, S. 和 Zhang, H. 卡尔曼滤波器增强的非弹性中子散射主动学习采样：以 CrSBr 为例。《物理评论*B*》**111**, 054404 (2025)。[31] Wilson, A. G., Hu, Z., Salakhutdinov, R. 和 Xing, E. P. 深度核学习 370–378 (2016)。[32] Ober, S. W., Rasmussen, C. E. 和 van der Wilk, M. 深度核学习的前景与陷阱 1206–1216 (2021)。[33] Aggarwal, C. C., Hinneburg, A. 和 Keim, D. A. 高维空间中距离度量的惊人表现 420–434 (2001)。[34] Binois, M. 和 Wycoff, N. 高维高斯过程建模综述及其在贝叶斯优化中的应用。*ACM*《进化学习与优化汇刊》**2**, 1–26 (2022)。[35] Rahaman, N. 等。 神经网络的谱偏置 5301–5310 (2019)。[36] Fanaskov, V. S. 和 Oseledets, I. V. 谱神经算子 **108**, S226–S232 (2023)。[37] Han, Y. 等。 学习为动态早退网络中的样本赋权 362–378 (2022)。

[38] Wu, H.、Xu, J.、Wang, J. & Long, M. Autoformer：用于长期序列预测的带自相关机制的分解变换器。《神经信息处理系统进展》**34**，22419–22430（2021）。[39] Lakshminarayanan, B.、Pritzel, A. & Blundell, C. 使用深度集成进行简单且可扩展的预测不确定性估计。《神经信息处理系统进展》**30**（2017）。[40] Erickson, N. 等。Autogluon-tabular：面向结构化数据的稳健且准确的自动机器学习。*arXiv* 预印本 *arXiv:2003.06505*（2020）。[41] Liang, C.、Ye, J.、Wang, S.、Pursel, B. & Giles, C. L. 探究主动学习在概念先修学习中的应用 **32**（2018）。[42] Beluch, W. H.、Genewein, T.、N¨urnberger, A. & K¨ohler, J. M. 集成在图像分类主动学习中的作用 9368–9377（2018）。[43] Campadelli, P.、Casiraghi, E.、Ceruti, C. & Rozza, A. 内在维度估计：相关技术与基准框架。工程数学问题**2015**，759567（2015）。[44] Floryan, D. & Graham, M. D. 数据驱动的内在动力学发现。《自然·机器智能》**4**，1113–1120（2022）。[45] Kumar, A.、Zhou, A.、Tucker, G. & Levine, S. 面向离线强化学习的保守Q学习。《神经信息处理系统进展》**33**，1179–1191（2020）。[46] Maraval, A. 等。使用概率变换器代理模型进行样本高效优化。*arXiv* 预印本 *arXiv:2205.13902*（2022）。[47] Belkin, M. & Niyogi, P. 用于降维和数据表示的拉普拉斯特征映射。《神经计算》**15**，1373–1396（2003）。[48] Merchant, A. 等。扩展深度学习以实现材料发现。《自然》**624**，80–85（2023）。[49] Tian, Y. 等。具有未知物理约束的贝叶斯优化边界探索 48295–48320（2024）。[50] Maddox, W. J.、Izmailov, P.、Garipov, T.、Vetrov, D. P. & Wilson, A. G. 深度学习中贝叶斯不确定性的简单基线。《神经信息处理系统进展》**32**（2019）。[51] Ma, H.、Yan, L.、Xia, Y. & Fu, M. 卡尔曼滤波与信息融合（Springer，2020）。

[52] Wang, Z. & Jegelka, S. 面向高效贝叶斯优化的最大值熵搜索 3627–3635（2017）。[53] Moss, H. B.、Leslie, D. S.、Gonzalez, J. & Rayson, P. Gibbon：通用的基于信息的贝叶斯优化。《机器学习研究杂志》22，1–49（2021）。[54] Long, T.、Fortunato, N. M.、Zhang, Y.、Gutfleisch, O. & Zhang, H. 通过机器学习建模磁性基态和居里温度，加速铁磁材料设计。《材料研究快报》9，169–174（2021）。[55] Dunn, A.、Wang, Q.、Ganose, A.、Dopp, D. & Jain, A. 材料性质预测方法基准测试：Matbench 测试集与 Automatminer 参考算法。npj Computational Materials 6，138（2020）。[56] Bradley, J.、Lang, A. & Williams, A. Jean-Claude Bradley Double Plus Good（高度整理和验证）的熔点数据集（2014）。DOI 10，m9。[57] Zhuo, Y.、Mansouri Tehrani, A. & Brgoch, J. 通过机器学习预测无机固体的带隙。《物理化学快报》9，1668–1673（2018）。[58]Sommer, T.、Willa, R.、Schmalian, J. & Friederich, P. 3DSC——包含晶体结构的超导体数据集。《科学数据》10，816（2023）。[59] Petousis, I. 等。高通量筛选无机化合物以发现新型介电和光学材料。《科学数据》4，1–12（2017）。[60] Zhou, J. 等。2DMatPedia：一个关于采用自顶向下和自底向上方法获得的二维材料的开放计算数据库。《科学数据》6，86（2019）。[61] Jain, A. 等。评论：材料项目——加速材料创新的材料基因组方法。《APL 材料》1（2013）。[62] Lim, Y.-F.、Ng, C. K.、Vaitesswar, U. & Hippalgaonkar, K. 使用高斯过程和神经网络集成代理模型的外推贝叶斯优化。《先进智能系统》3，2100101（2021）。[63] Ramakrishnan, R.、Dral, P. O.、Rupp, M. & Von Lilienfeld, O. A. 134,000个分子的量子化学结构与性质。《科学数据》1，1–7（2014）。[64] Schmidt, J. 等。通过大型数据集改进材料科学中的机器学习模型。《今日材料：物理》48，101560（2024）。[65] Levine, D. S. 等。Open Molecules 2025（OMol25）数据集、评估与模型。arXiv 预印本 arXiv:2505.08762（2025）。

[66] Nemhauser, G. L., Wolsey, L. A. & Fisher, M. L. 最大化次模集合函数的近似方法分析—i. 《数学规划》**14**,265–294 (1978).[67] Golovin, D. & Krause, A. 自适应次模性：主动学习与随机优化中的理论和应用 (2010). URL https://arxiv.org/abs/1003.3967. ArXiv预印本 arXiv:1003.3967v5, arXiv:1003.3967.[68] Krause, A., Singh, A. & Guestrin, C. 高斯过程中的近似最优传感器布置：理论、高效算法与实证研究. 《机器学习研究杂志》**9**(2008).[69] Levina, E. & Bickel, P. 内在维度的最大似然估计。《神经信息处理系统进展》**17**(2004).[70] Pant, M., Zaheer, H., Garcia-Hernandez, L., Abraham, A. 等人差分进化：二十余年研究综述。《人工智能工程应用》**90**, 103479 (2020).[71]Sobol', I. M., Asotsky, D., Kreinin, A. & Kucherenko, S. 高维Sobol序列生成器的构建与比较。*Wilmott* **2011**, 64–79 (2011).[72]McInnes, L., Healy, J., Astels, S. 等人hdbscan：基于层次密度的聚类。《开源软件杂志》**2**, 205 (2017).[73] Traag, V. A., Waltman, L. & Van Eck, N. J. 从Louvain到Leiden：确保社群连接紧密。*Scientific Reports***9**, 1–12 (2019).[74] Daulton, S., Balandat, M. & Bakshy, E. 用于并行多目标贝叶斯优化的可微期望超体积改进。《神经信息处理系统进展》**33**, 9851–9864 (2020).[75] Burges, C. J. 从RankNet到LambdaRank再到LambdaMART：概述。《机器学习》**11**, 81 (2010).