历时8年，困扰催化领域50年难题终破解

作者：writer 来源：科学网

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/30804.html

本文仅供学习交流之用，版权归原作者所有，请勿用于商业用途！

历时8年，困扰催化领域50年难题终破解。■本报记者 王敏

中国科学技术大学教授李微雪的电脑里有个文件夹，保存了同一论文的329个不同版本。每个版本按照日期命名，最早一版是2018年9月5日，最后一版是2024年10月20日。

近日，这篇解开困扰多相催化领域近50年难题的论文在线发表于《科学》。李微雪团队利用人工智能（AI）技术揭示了负载型金属催化剂中“ 金属-载体相互作用 ”的本质。

中国科学院院士、清华大学教授李亚栋认为，该成果“ 解决了多相催化研究中一个重大基础科学难题，对高效负载型催化剂的理性设计极具指导价值 ”。

以非常“ 优美 ”的方式解开难题

90%以上的化学品在催化剂的帮助下合成制备，氧化物负载金属催化剂是使用最广泛的工业催化剂之一。长期以来，科学家一直在努力开发高活性、高选择性和高稳定性的催化剂。

“ 负载型催化剂体系中有两大基石——催化剂与反应物的关系和催化剂与载体的关系。前者是提高催化活性和选择性的关键，后者则起到‘ 定海神针 ’的作用。 ”论文通讯作者李微雪说。

早期研究大多聚焦于金属催化剂与反应物的相互作用，而忽略了金属催化剂与载体的相互作用。随着研究不断深入，人们发现氧化物载体不仅发挥了稳定金属催化剂的作用，还能进一步影响催化剂体系中的电荷转移、形貌改变、新界面位点形成、化学成分以及界面包覆等，进而显著影响了催化剂的活性和选择性。

事实上，早在1978年，科学家就发现氧化物载体在高温还原环境下，出现了包裹金属催化剂的现象。这一现象被归结为由强金属-
载体相互作用所致。后来，人们用这一概念解释所有表现出显著界面效应的实验现象。

“ 影响金属与载体相互作用的因素太多、太复杂，涉及催化剂和载体的组分、结构、尺寸、形貌等。这一作用又敏感地依赖于催化剂的制备过程和反应条件等。 ”李微雪说，现在，每年有近7000篇论文涉及金属-载体相互作用这一概念，并且呈稳步增加的趋势，但对该作用的研究一直没有实现定量化，尤其是缺乏明确的构效关系。

为此，从2017年起，他带领学生利用AI技术“ 死磕 ”该问题，历时8年终于解开这一困扰多相催

化领域近50年的难题。

“ 令我们吃惊的是，在诸多复杂因素中，竟是金属催化剂与载体中的金属形成的金属-金属键产生了决定性影响，而不是大家长期以来所想象的金属-氧键。 ”李微雪说，这为理解金属-载体相互作用提供了全新视角。

《科学》审稿人高度评价了这项工作：“ 该研究对于改进工业催化剂非常重要，我对作者从原子层面出发并以一种‘ 优美 ’的方式解决这一问题表示祝贺！研究结果极具创造性、思想性和深刻性。 ”

从300亿个表达式中构建一个通用简洁公式

在这项研究中，科研人员先是收集了25种金属27种氧化物的178个实验数据，然后使用一种可解释性AI算法，构建了一个由300亿个表达式组成的候选空间，并在此基础上建立了一个具有明确物理意义的机器学习公式。

“ 可解释性AI算法从材料的基本性质出发，将材料已知的物理化学参数迭代地通过数学组合，得到300亿个表达式。 ”李微雪说，他们进一步基于压缩感知原理，从300亿个表达式中得到一个能再现所有实验数据的方程。

“ 得出一个机器学习公式比较简单，难的是如何结合具体问题让公式变得高度可解释，并从中挖掘出物理意义和科学原理。 ”李微雪说，这依赖于研究者对问题的认识和判断。

最终，他们结合领域知识和理论推导，建立了一个物理清晰、数值准确的简洁方程式，首次完整揭示了影响金属-载体相互作用的两个关键物理量，即“ 金属-氧相互作用 ”和“ 金属-金属相互作用 ”。

得出公式后，他们反复确认核实，对675个金属-氧化物体系进行了分析，发现“ 金属-氧相互作用 ”是形成界面的主要“ 贡献者 ”，而“ 金属-金属相互作用 ”是区分不同载体影响的关键因素。

“ 简单来说，所有的氧化物载体都含有氧，不同的是它们包含的金属不同。因此，显而易见，是‘ 金属-金属相互作用 ’对载体效应产生了决定性影响。 ”李微雪感叹，捅破这层“ 窗户纸 ”，人们竟然花了近50年时间。

值得一提的是，他们还提出了“ 强金属-金属作用 ”原理性判据，即当两种金属间作用强于氧化物中金属自身相互作用时，氧化物载体将包覆金属催化剂。比如，金属催化剂是铂，载体是氧化钛。当铂-钛键强于钛-钛键，就会发生氧化钛包覆铂催化剂的现象。这一简洁的判据有效阐释了目前几乎所有在这类体系中观测到的包覆现象。

一场跨越时空的接力赛

李微雪曾在德国马普学会弗里茨·哈伯研究所进行博士后阶段研究，并在回国后与该研究所所长Matthias Scheffler成立了中德马普伙伴研究小组。

2016年，Scheffler受邀参加中国科学技术大学的一场学术年会。与李微雪见面时，Scheffler夸奖起

他的博士后、之前是李微雪博士生的欧阳润海。他发展了一种可解释性AI算法SISSO，在材料领域研究中有广阔前景。

这给了李微雪启发。2017年，他安排刚进课题组读研究生的王泰然，用SISSO研究金属-载体相互作用这一问题。

王泰然从上百篇文献中收集了大量高质量的界面作用数据，并利用SISSO建立起相应的公式。但是，公式背后的物理意义和重要价值还有待深入挖掘。

2021年，这篇论文已经初步成形，但李微雪并没急于发表，一是当时得到的方程物理图像不是很清晰，二是新的金属-金属相互作用变量在催化过程中的重要性还不明确。

围绕上述问题，李微雪带领团队进行了大量探索，利用基于AI得到的方程预测、计算各种可能的物理量，并尝试将其与重要的催化问题相关联，文章也不断推倒重来，但结果还是难以令人满意。

转机出现在2023年。博士生胡建钰使用基于神经网络势函数的分子动力学模拟，成功在理论上重现了1978年实验上发现的包覆现象。

这一次，他们找到了理论应用的突破口。随着对文章的创新性、重要性、逻辑性、清晰性等进行反复修改，他们对公式物理意义的理解越来越清晰、深刻和全面。

从投稿到接收仅用85天

2024年7月30日，研究团队正式向《科学》投稿。这是论文的第320个版本。

9月7日，他们收到了审稿意见。令李微雪惊喜的是，编辑已经将论文彻底修改了一遍。“这表示论文基本上被接收了。”

根据审稿意见，研究团队完成了相应工作，于10月2日返稿。很快，10月22日，论文被正式接收。

研究用了8年，论文修改了329稿，从投稿到同意接收发表仅花了85天……慢与快的背后，是李微雪对科研的坚守、3名学生跨越时空的接力。

这一理论工作一经发表，立即得到了同领域科研人员的关注。“目前已有两个实验课题组利用这次提出的理论，合成了一系列新的包覆催化材料体系，后续新催化反应的研究工作也在快速推进中。”李微雪说。

“目前，我们仅描述了金属与氧化物界面的相互作用。接下来，我们将继续研究金属与各种金属化合物载体的相互作用。”李微雪说，他们的长期目标是建立起描述材料界面相互作用的一般性理论，加快新催化材料、新催化反应的发现，助推能源、环境和材料领域的绿色升级和可持续发展。

李微雪表示，此次科学突破还证明了可解释性AI算法的巨大潜力，为重大科学问题的解决提供了全新视角和方案。

相关论文信息：

https://doi.org/10.1126/science.adp6034

《中国科学报》(2024-12-11第1版要闻)
作者：王敏 来源：中国科学报

更多 科学进展 请访问 https://www.iikx.com/news/progress/

本文版权归原作者所有，请勿用于商业用途，爱科学iikx.com转发