

附件 6



**中国科学院大学**  
University of Chinese Academy of Sciences

## 博士学位论文评阅书

论文题目 基于 SAPO-34 催化剂甲醇制烯烃反应的积碳调控研究

作者姓名 周吉彬

学位类别 工学博士

学科（专业） 化学工程

研究所（院系） 大连化学物理研究所

中国科学院大学制

## 学术道德评价

(一票否决)

评价要素	评价意见 (请在相应栏内划“√”)
是否存在剽窃他人成果、伪造数据、由他人代写等严重作假行为	<input type="checkbox"/> 是 (具体说明存在的问题)
	<input checked="" type="checkbox"/> 否

## 评阅意见

评 价 要 素			权重	具体得分 (百分制)
1	论文选题	选题的理论意义、实用价值	10%	95
2	文献综述	反映该学科及相关领域的前人成果和前沿动态	15%	94
3	创新成果	论文成果创新性, 对学科发展、技术进步、经济建设、国家安全等方面产生的影响和贡献	40%	91
4	基础理论和专门知识	基础理论的宽厚度、坚实度, 专门知识的系统性、深入性	10%	92
5	科研能力	论文体现科研潜质与独立科研能力	15%	91
6	论文写作	论文结构、撰写规范性; 文字表达准确、清晰和流畅性; 引文严谨、规范性	10%	92
总体评价			总分	93

注: “分数”栏每项均按百分制整数评分, 各项满分均为 100 分。评分分为四档: 大于等于 90 分为优秀; 大于等于 75 分小于 89 分为良好; 大于等于 60 分小于 74 分为一般; 小于 60 分为差。

## 学术道德评价

(一票否决)

评价要素	评价意见 (请在相应栏内划“√”)
是否存在剽窃他人成果、伪造数据、由他人代写等严重作假行为	<input type="checkbox"/> 是 (具体说明存在的问题)
	<input checked="" type="checkbox"/> 否

## 评阅意见

评 价 要 素			权重	具体得分 (百分制)
1	论文选题	选题的理论意义、实用价值	10%	10
2	文献综述	反映该学科及相关领域的前人成果和前沿动态	15%	13
3	创新成果	论文成果创新性, 对学科发展、技术进步、经济建设、国家安全等方面产生的影响和贡献	40%	38
4	基础理论和专门知识	基础理论的宽厚度、坚实度, 专门知识的系统性、深入性	10%	8
5	科研能力	论文体现科研潜质与独立科研能力	15%	13
6	论文写作	论文结构、撰写规范性; 文字表达准确、清晰和流畅性; 引文严谨、规范性	10%	8
总体评价			总分	90

注: “分数”栏每项均按百分制整数评分, 各项满分均为 100 分。评分分为四档: 大于等于 90 分为优秀; 大于等于 75 分小于 89 分为良好; 大于等于 60 分小于 74 分为一般; 小于 60 分为差。

## 学术道德评价

（一票否决）

评价要素	评价意见（请在相应栏内划“√”）
是否存在剽窃他人成果、伪造数据、由他人代写等严重作假行为	<input type="checkbox"/> 是（具体说明存在的问题）
	<input checked="" type="checkbox"/> 否

## 评阅意见

评 价 要 素			权重	具体得分 (百分制)
1	论文选题	选题的理论意义、实用价值	10%	10
2	文献综述	反映该学科及相关领域的前人成果和前沿动态	15%	13.5
3	创新成果	论文成果创新性，对学科发展、技术进步、经济建设、国家安全等方面产生的影响和贡献	40%	36
4	基础理论和专门知识	基础理论的宽厚度、坚实度，专门知识的系统性、深入性	10%	9.5
5	科研能力	论文体现科研潜质与独立科研能力	15%	13.5
6	论文写作	论文结构、撰写规范性；文字表达准确、清晰和流畅性；引文严谨、规范性	10%	9.5
总体评价			总分	92

注：“分数”栏每项均按百分制整数评分，各项满分均为100分。评分分为四档：大于等于90分为优秀；大于等于75分小于89分为良好；大于等于60分小于74分为一般；小于60分为差。

## 学术道德评价

（一票否决）

评价要素	评价意见（请在相应栏内划“√”）
是否存在剽窃他人成果、伪造数据、由他人代写等严重作假行为	<input type="checkbox"/> 是（具体说明存在的问题）
	<input checked="" type="checkbox"/> 否

## 评阅意见

评 价 要 素			权重	具体得分 (百分制)
1	论文选题	选题的理论意义、实用价值	10%	95
2	文献综述	反映该学科及相关领域的前人成果和前沿动态	15%	93
3	创新成果	论文成果创新性，对学科发展、技术进步、经济建设、国家安全等方面产生的影响和贡献	40%	95
4	基础理论和专门知识	基础理论的宽厚度、坚实度，专门知识的系统性、深入性	10%	92
5	科研能力	论文体现科研潜质与独立科研能力	15%	93
6	论文写作	论文结构、撰写规范性；文字表达准确、清晰和流畅性；引文严谨、规范性	10%	92
总体评价			总分	94

注：“分数”栏每项均按百分制整数评分，各项满分均为 100 分。评分分为四档：大于等于 90 分为优秀；大于等于 75 分小于 89 分为良好；大于等于 60 分小于 74 分为一般；小于 60 分为差。

## 学术道德评价

(一票否决)

评价要素	评价意见 (请在相应栏内划“√”)
是否存在剽窃他人成果、伪造数据、由他人代写等严重作假行为	<input type="checkbox"/> 是 (具体说明存在的问题)
	<input checked="" type="checkbox"/> 否

## 评阅意见

评 价 要 素			权重	具体得分 (百分制)
1	论文选题	选题的理论意义、实用价值	10%	90
2	文献综述	反映该学科及相关领域的前人成果和前沿动态	15%	91
3	创新成果	论文成果创新性, 对学科发展、技术进步、经济建设、国家安全等方面产生的影响和贡献	40%	92
4	基础理论和专门知识	基础理论的宽厚度、坚实度, 专门知识的系统性、深入性	10%	92
5	科研能力	论文体现科研潜质与独立科研能力	15%	92
6	论文写作	论文结构、撰写规范性; 文字表达准确、清晰和流畅性; 引文严谨、规范性	10%	90
总体评价			总分	91.45

注: “分数”栏每项均按百分制整数评分, 各项满分均为 100 分。评分分为四档: 大于等于 90 分为优秀; 大于等于 75 分小于 89 分为良好; 大于等于 60 分小于 74 分为一般; 小于 60 分为差。

对学位论文的学术评语：(请对论文的学术水平、创新性做出简要评述，包括选题意义，文献资料的掌握，论文创新之处，写作规范和逻辑性等。还须明确指出论文中存在的问题和不足之处。可另附页)

论文题目：基于SAPO-34催化剂甲醇制烯烃反应的积炭调控研究

作者姓名：周吉彬

甲醇制烯烃(MTO)是一个极为重要的煤制烯烃化工过程，其催化剂积炭调控对于该过程获得高收率烯烃极为关键。该文开展了MTO过程的SAPO-34催化剂积炭调控的系统研究，得到以下主要结果：

① 新鲜催化剂预积炭调控MTO烯烃选择性研究结果表明：正丁烯预积炭过程生成以萘为主的积炭物种，这些均匀分布于分子筛晶粒的积炭物种可作为MTO反应的烃池物种参与芳烃循环生成2烯，有利于增加MTO反应产物2烯和低碳烯烃的选择性。

② 失活SAPO-34催化剂的再生遵循由晶粒外向内部扩散的再生机理。空气不完全再生后的残留积炭可提高MTO过程的烯烃选择性，但加快了MTO反应的失活。

③ 水蒸汽再生后的SAPO-34催化剂可表现出88%的MTO低碳烯烃(丙烯)

是否同意组织学位论文答辩

(请在相应栏内划“√”)

☒ 同意答辩

☐ 修改后答辩

☐ 不同意答辩

(接上页)

选择性,再生后催化剂的残留积炭物种为再生调控MTD反应性能的  
关键因素。通过水蒸汽再生催化剂调控MTD的低碳烯烃选择性具有  
工业可行性。

上述结果具有创新性。

论文选题具有重要意义,工作量大,文献综述全面,结果创新性强,  
撰写规范,上述工作表明周吉彬同学具有较强科研工作能力,较  
为扎实的理论知识 and 较高水平专业知识。

综上所述,该论文已达到博士研究生标准,建议组织单位做  
答辩。

需讨论问题:

SAPO-34催化剂的预积炭物种是否选用丁烯作原料?如选用 $H_2$ 、 $CO_2$ 或其他烯烃气体,效果会如何?



**对学位论文的学术评语：**（请对论文的学术水平、创新性做出简要评述，包括选题意义，文献资料的掌握，论文创新之处，写作规范和逻辑性等。还须明确指出论文中存在的问题和不足之处。可另附页）

论文题目：基于 SAPO-34 催化剂甲醇制烯烃反应的积碳调控研究

作者姓名：周吉彬

甲醇制烯烃是非石油路线制取低碳烯烃的关键技术，论文以甲醇制烯烃过程中的积碳作为研究内容，旨在通过积碳调控低碳烯烃的选择性，选题具有重要意义。

论文开展 SAPO-34 分子筛预积碳的研究，通过正丁烯预积碳修饰催化剂，提升催化剂反应性能。提出了预积碳调控 MTO 反应的作用机理，正丁烯在催化剂上反应形成的预积碳作为烃池物种提升乙烯选择性。此后，论文开展了 SAPO-34 积碳再生的研究，再生介质气体影响残碳性质。空气再生后的残碳不利于烯烃选择性的提高，而水蒸气再生后的残碳性质有利于乙烯的生成。

上述结果具有创新性。论文中实验方案可行、研究手段先进、数据详实可靠，结果分析合理。表明作者具有独立从事科研工作的能力和成果归纳总结能力，达到博士学位要求，建议进行博士学位答辩。

是否同意组织学位论文答辩

（请在相应栏内划“√”）

☒同意答辩

☐修改后答辩

☐不同意答辩

对学位论文的学术评语：（请对论文的学术水平、创新性做出简要评述，包括选题意义，文献资料的掌握，论文创新之处，写作规范和逻辑性等。还须明确指出论文中存在的问题和不足之处。可另附页）

论文题目： 基于 SAPO-34 催化剂甲醇制烯烃反应的积碳调控研究

作者姓名： 周吉彬

甲醇制烯烃是一个重要的反应过程。本博士学位论文开展 MTO 工业催化剂 SAPO-34 的积碳调控研究，有重要理论意义和应用价值。

论文首先在新鲜催化剂上研究了预积碳物种、反应温度和反应时间对 MTO 反应过程行为的影响，发现正丁烯高温环境下催化剂上形成以萘为主的均匀积碳，进而提出正丁烯预积碳调控机理——预积碳后反应区域内移，长链烯烃等中间体在外扩散中转化为低碳烯烃。

研究了空气和水蒸气再生方法对催化剂积碳的调控机制。研究表明残留积碳物种为再生调控 MTO 反应的关键因素，且残留积碳物种依赖于再生气体。空气再生反应失活加速，经水蒸气再生形成多甲基苯和多甲基萘积碳物种，低碳烯烃选择性稳定在最高值 88%。

上述工作具有创新性，可望为 MTO 工业过程预积碳优化操作提供理论依据。

论文综述全面、研究工作系统深入、论述充分、分析合理，反映了周吉彬同学具有扎实的理论基础和独立的科研工作能力，已达到博士论文要求，同意进行答辩，并建议授予工学博士学位。

讨论：

- 1、从 MTO 过程看，以甲醇为预积碳物种更有利于过程操作，可开展相应的综述和讨论。
- 2、从长周期运行看，选择与实际过程相适应的再生预积碳方式更为重要。

是否同意组织学位论文答辩

（请在相应栏内划“√”）

☒ 同意答辩

☐ 修改后答辩

☐ 不同意答辩

**对学位论文的学术评语：**（请对论文的学术水平、创新性做出简要评述，包括选题意义，文献资料的掌握，论文创新之处，写作规范和逻辑性等。还须明确指出论文中存在的问题和不足之处。可另附页）

**论文题目：** \_\_\_\_\_

**作者姓名：** \_\_\_\_\_

是否同意组织学位论文答辩  
（请在相应栏内划“√”）

☒ 同意答辩

☐ 修改后答辩

☐ 不同意答辩

**对周吉彬博士学位论文《基于 SAPO-34 催化剂甲醇制烯烃反应的积碳调控研究》的学术评语：**

甲醇制烯烃（MTO）作为一种非石油路线制备低碳烯烃技术，是基础及应用研究的热点。在 MTO 反应过程中，积碳改变了催化剂的性质，对低碳烯烃的生成起到了促进作用。考察积碳对催化性能的影响及积碳催化剂再生作用机制具有重要意义。该论文针对 SAPO-34 分子筛催化剂，分别从新鲜 SAPO-34 催化剂预积碳和积碳催化剂再生两个方面对催化剂进行积碳调控，并研究了催化剂积碳对低碳烯烃选择性的影响，揭示其调控机理，为 MTO 工业优化提供了理论基础。该论文选题具有重要理论意义和实用价值，对理解 SAPO-34 分子筛催化剂上积碳调控及其对 MTO 催化性能具有重要参考价值，采用的研究路线和方法得当，得到的结果以及数据分析合理，取得了一些有创新性的研究结果：

1. 研究了新鲜 SAPO-34 催化剂预积碳物种、时间及温度对 MTO 烯烃选择性的影响并提出了相应的调控机理。结果发现，正丁烯为最佳的预积碳物种。正丁烯预积碳过程形成均匀分布的萘，促使 MTO 反应区域向晶粒内部扩散，增加了产物的扩散长度和 B 酸位点利用率，促进了芳烃的循环，从而提高了乙烯选择性。
2. 研究了空气再生对催化剂积碳的调控及 MTO 烯烃选择性的影响。结果发现，空气不完全再生行为遵循从晶粒外表面向内部扩散的再生机理。再生温度与空速只影响再生速率，对残碳量及 MTO 烯烃选择性无影响。再生残留的积碳量越大，MTO 初始烯烃选择性越高，但催化剂寿命越短。空气不完全再生后的残碳更容易导致催化剂失活。
3. 研究了水蒸气再生对催化剂积碳的调控及烯烃选择性的影响，揭示了水蒸气再生行为及再生机理。发现在合适条件下水蒸气再生后的催化剂烯烃选择性可稳定在最大值（88%）。对比两种再生气体调控的差异，发现再生气体影响残留积碳物种性质，这决定了 MTO 反应的低碳烯烃选择性和催化剂寿命。相比于含氧化合物，残碳中的多甲基苯和多甲基苯萘更有利于乙烯的生成。在循环流化床运用水蒸气再生增强了乙烯丙烯比和总烯烃选择性，证实了水蒸气再生方式具有一定的工业可行性。

总之，该论文选题新颖，实验设计合理，逻辑结构清晰，文字表达流畅，书写规范，图标清晰，反应本文作者掌握了本专业扎实的基础理论知识和操作技能。综上，论文达到了博士学位论文要求，建议组织答辩。

对学位论文的学术评语：（请对论文的学术水平、创新性做出简要评述，包括选题意义，文献资料的掌握，论文创新之处，写作规范和逻辑性等。还须明确指出论文中存在的问题和不足之处。可另附页）

论文题目：基于SAPO-34催化剂甲醇制烯烃反应的积炭调控研究

作者姓名：周吉彬

是否同意组织学位论文答辩

（请在相应栏内划“√”）

☒ 同意答辩

☐ 修改后答辩

☐ 不同意答辩

## 《基于 SAPO-34 催化剂甲醇制烯烃反应的积碳调控研究》的学术评语

作者姓名 周吉彬

该论文针对采用 SAPO-34 分子筛催化剂的 MTO 工业过程,分别从新鲜催化剂预积碳和积碳催化剂再生两个方面对催化剂进行积碳调控,并就催化剂积碳对低碳烯烃选择性的影响进行了研究;提出了正丁烯预积碳调控 MTO 反应机理,确认了 SAPO-34 分子筛催化剂的失活是由于积碳堵塞催化剂孔道所致。

研究结果表明,通过新鲜催化剂 C4 烯烃预积碳和失活催化剂不完全再生(空气再生和水蒸气再生)两种方法均能有效地提高低碳烯烃,特别是乙烯的选择性,这对现有 MTO 工艺过程的优化具有一定的指导意义。

论文作者查阅了大量文献资料,对所涉及的研究领域进行了广泛深入的调研,掌握了系统的专门知识,具有扎实的理论基础;论文的组织 and 撰写科学严谨,论文结构合理,写作规范,叙述条理清晰,理论分析严密,既有学术价值和创新性,又有实际指导意义,是一篇高质量的博士学位论文。

综上所述,评审者认为该论文达到了国家学位条例对博士学位论文的要求,同意进行学位答辩。

质疑与建议:

- 1、MTO 产物选择性与催化剂积碳量密切相关,一定量的积碳有利于低碳烯烃(特别是乙烯)的生成。因此,提高 MTO 低碳烯烃选择性的关键因素之一在于催化剂积碳的调控。6.1 总结的 4 中(第 126 页),相比于反应过程生成的积碳,空气再生调控后的残碳不利于选择性的提高并加快了反应失活。问题 1: 这里的残碳是指碳量,还是碳的性质? 问题 2: 是加快了反应失活,还是催化剂失活?
- 2、6.1 总结的 5 中(第 126 页),与空气再生调控的 MTO 反应结果对比,证实了相比于残碳量,残碳性质才是再生调控 MTO 反应的关键因素。问题: 空气不完全再生催化剂上的残碳有几种? 都是什么性质的? 哪一种残碳对催化反应不利? 如何消除?
- 3、6.1 总结的 5 中(第 126 页),“相比于空气再生后的含氧化合物能加快反应失活”。问题: 含氧化合物能加快反应失活,还是加快催化剂失活?