

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 吡咯烷酮衍生物辅助 Beta 分子筛可控合成及其催化性能的研究

作者姓名 赵东璞

学位类别 工学博士

学科（专业） 工业催化

研究所（院系） 中国科学院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%	92
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%	90
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%	88
5	科研能力	论文体现科研潜质与独立科研能力	15%	90
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%	85
总体评价			总分	90.3

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：吡咯烷酮衍生物辅助 Beta 分子筛可控合成及其催化性能的研究

作者姓名：赵东璞

论文研究 Beta 分子筛的可控合成及其催化性能，选题具有学术意义和应用价值。

论文对国内外相关文献进行了介绍和整理。在 Beta 分子筛水热合成体系中加入吡咯烷酮系列衍生物，发现 NMP 可作为晶化促进剂使 Beta 分子筛快速晶化，研究了其晶化加速机制。采用 NMP 与 Beta 晶种联用，在 120℃ 实现了 Beta 分子筛的经济、高效制备。以上结果具有创新性。

论文部分图表跨页，部分页面有大段空白。建议调整版面。

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

## 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%	93
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%	90
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%	90
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%	90
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%	89
总体评价			总分	90.5

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：吡咯烷酮衍生物辅助 Beta 分子筛可控合成及其催化性能的研究

Beta 沸石分子筛是一类具有重要工业应用价值的多孔催化材料。低硅铝比 Beta 沸石分子筛的工业生产面临晶化周期长、晶化温度高、模板剂用量大和模板剂高温分解等技术难题。该论文以吡咯烷酮衍生物为晶化促进剂，系统研究了晶化促进剂种类和添加量对 Beta 分子筛合成及其催化性能的影响，在工业合成条件下联合晶种为共促进剂系统研究并优化了合成条件，以吡咯烷酮衍生物为添加剂一步水热晶化合成了单晶中空 Beta 分子筛，对比考察了其在苯与异丁烯液相烷基化反应中的催化性能。论文选题具有重要应用价值和理论意义。

论文研究发现 N-甲基-2-吡咯烷酮（NMP）作晶化促进剂合成 Beta 沸石分子筛时晶化速率可提高 10 倍，借助系列表征初步揭示了 NMP 加速 Beta 分子筛合成的作用机制：NMP 可以活化四乙基铵根离子，加速其与硅铝物种的结合。所合成 Beta 分子筛在异丁烯胺化反应中表现出更优异催化性能。采用 NMP 和晶种共驱动的方法，不仅可以实现低温快速合成，而且产物收率提高。采用吡咯烷酮衍生物作助剂一步法制备了中空单晶 Beta 分子筛，研究发现吡咯烷酮衍生物的引入可调控硅铝物种进入晶粒的速率，从而诱导空间异质结构的形成。所合成的中空单晶 Beta 分子筛在苯与异丁烯液相烷基化反应中的催化性能优于常规 Beta 分子筛。上述研究结果具有创新性。

论文工作量大、方案合理、数据可信、论述严谨、结论正确。表明作者具有扎实的理论基础和专业知识，具有独立从事科研的能力。论文达到博士学位论文要求。

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

## 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 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%	15
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%	35
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%	12
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%	7
总体评价			总分	87

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：**吡咯烷酮衍生物辅助 Beta 分子筛可控合成及其催化性能的研究

**作者姓名：**赵东璞

该论文发现了吡咯烷酮类化合物对 Beta 分子筛结晶的促进作用，并研究了 N-甲基-2-吡咯烷酮（NMP）对 Beta 分子筛晶化过程的影响机制；开发了通过添加吡咯烷酮衍生物合成新结构中空 Beta 分子筛的方法。

1. a) 有研究表明，某些氨基酸（如 L-赖氨酸）对 Beta 分子筛结晶有促进作用，吡咯烷酮类衍生物在合成过程中会分解为氨基酸类化合物，应考虑其影响；b) 关于吡咯烷酮衍生物对 TEAOH 霍夫曼分解的影响，第三章中（P38-39）的结果显示，吡咯烷酮衍生物抑制了 TEAOH 的分解，而第五章（P84-85）中的结果显示，吡咯烷酮衍生物促进了 TEAOH 的分解，原因何在？c) P27，分子筛的五元环结构与模板剂的五元环结构是完全不同的两个概念，五元环吡咯烷酮类衍生物是否对分子筛五元环次级结构单元的形成有促进作用，应该进行更理性的分析；d) 中空 Beta 是由小的纳米粒子堆积而成，只是每个小的纳米粒子是单晶，而不是说中空结构是单晶，因此“单晶中空 Beta”的提法存在歧义，不合适；e) 图 4.12，为何不同温度下， $^{13}\text{C}$  谱中归结为 TEAOH 的甲基（ $\text{CH}_3$ ）和亚甲基（ $\text{CH}_2$ ）的比例不一致？f) 图 4.15，三个体系中 TEAOH/NMP 的比例恒定，但浓度依次增大，不能简单归结为 TEAOH 量增加导致 NMP 开环增加；g) 关于空心 Beta 的形成过程（P94-95），所谓实心 Beta 是否为单晶？Si 物种从核向外层迁移过程中外层形成的是多个小的 Beta 纳米粒子二次组装成的空心结构，因此其机制可能更加复杂。

2. 作者还应进一步规范论文的写作。a) 排版问题，存在大量页面空白现象，如 P32，P36，P41 等等，应注意尽量减少；b) 某些图（如图 3.25）过于小或分辨率过低，无法辨识是否与文字描述一致。

论文表述清楚，数据可信，分析合理，表明作者具有扎实的理论基础和独立从事科学研究的能力，该学位论文达到了博士学位论文的要求，同意组织学位论文答辩。

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

## 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%	9
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%	14
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%	9
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%	9
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。



**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）

Beta 分子筛是一具有重要应用价值和发展潜力的多孔催化材料，在催化烷基化、异构化、烷基转移和裂化等反应中具有广泛的应用。研究开发不同结构和组成的 Beta 分子筛制备新方法，并应用于异丁烯胺化反应，选题具有重要的科学意义和应用背景。

论文取得如下主要研究结果：

1. 开发出吡咯烷酮衍生物为晶化促进剂高效制备 Beta 分子筛的方法。促进剂辅助可显著缩短晶化时间，降低合成温度，减少模板剂的热分解。研究表明，晶化促进剂通过活化模板剂  $\text{TEA}^+$ ，可使其快速与无机硅铝物种结合，发挥结构导向作用。
2. 采用 N-甲基吡咯烷酮-Beta 晶种组成的有机-无机促进剂共驱动策略，实现了 Beta 分子筛的高效制备。与 N-甲基吡咯烷酮、或 Beta 晶种单一促进剂相比，采用共促进剂时固体的收率最高。
3. 通过调变有机添加剂-吡咯烷酮衍生物的种类和添加量，发现吡咯烷酮衍生物可改变晶体生长阶段硅铝物种进入 Beta 晶体的相对速度，诱导亚稳态中间体的形成；制得单晶中空 Beta 分子筛。

上述研究结果具有创新性。

论文对国内外文献的综述全面，研究目标明确，思路清晰，工作量大，实验数据分析合理，讨论充分，结论可信。达到了博士学位论文的要求。表明作者具有扎实的基础理论与专业知识，具备独立从事科学研究工作的能力。同意答辩，并建议授予博士学位。

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（论文需通过小的修改后答辩）

☐ 修改后评阅（论文需通过大的修改后再评阅）

☐ 不同意答辩

## 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%	9
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%	14
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%	9
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	91

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，所用资料、实验结果和计算数据的可靠性，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：吡咯烷酮衍生物辅助 Beta 分子筛可控合成及催化性能研究

作者姓名：赵东璞

Beta 分子筛广泛应用于石油炼制和诸多精细化工品的生产过程中，针对目前 Beta 分子筛合成中存在的晶化周期长、温度高和模板剂易分解等问题，论文聚焦于高结晶度 Beta 分子筛的低温、快速水热晶化，通过合成体系中吡咯烷酮系列衍生物的引入，同时实现了具有优异传质性能的中空 Beta 分子筛的可控合成，揭示了吡咯烷酮系列衍生物在晶化过程中的作用机制。论文选题具有重要的科学意义和很强的应用背景，上述结果对 Beta 分子筛的工业放大合成具有很好的指导意义。论文主要创新性结果如下：

1) 发现吡咯烷酮衍生物 N-甲基-2-吡咯烷酮可作为“晶化促进剂”驱动 Beta 分子筛的快速晶化，揭示了 NMP 的晶化加速机制：NMP 可以活化 Beta 分子筛合成模板剂四乙基铵根正离子（TEA<sup>+</sup>），加速其与硅铝物种的结合，发挥结构导向功能。

2) 采用 NMP&Beta 晶种共驱动的合成方案，在 120 ° C 低温下实现了 Beta 分子筛的绿色、经济和高收率制备。

3) 以吡咯烷酮衍生物作为“中空诱导剂”实现了系列中空 Beta 分子筛的可控合成。发现吡咯烷酮衍生物的引入改变了无定形硅铝物种进入 Beta 晶体的相对速率，诱导形成表层富铝&核心富硅的亚稳态中间体，从而制备出具有中空结构的 Beta 分子筛。

论文整体内容丰富，思路清晰，表达清楚，推论合理，创新性强，反映作者具备扎实的理论基础和专业知识，以及独立从事科研工作的能力，达到博士毕业论文要求，同意组织论文答辩。

是否同意组织学位论文答辩

（请在相应栏内打“√”）

☒ 同意答辩

☐ 修改后答辩

☐ 不同意答辩

## 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%	39
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	科研能力	论文体现科研潜质与独立科研能力	15%	14
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	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。

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： 吡咯烷酮衍生物辅助 Beta 分子筛可控合成及其催化性能的研究

作者姓名： 赵东璞

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

分子筛是一类重要的催化材料，其可控合成及其在催化中构效关系的研究一直是该领域的挑战，本论文对 Beta 分子筛的合成，特别是中空 Beta 分子筛的合成进行了较为系统的研究，选题具有重要的科学意义和应用背景。论文对 Beta 分子筛的结构和应用及其合成中面临的问题及可能的策略进行了文献调研，对该领域的发展态势进行了分析，并提出了本论文的构想，取得了如下主要研究结果：

研究了吡咯烷酮系列衍生物包括 2-吡咯烷酮、N-甲基-2-吡咯烷酮、N-乙基-2-吡咯烷酮、N-异丙基-2-吡咯烷酮，以及吡咯烷酮衍生物与晶种共存时对 Beta 分子筛合成的影响规律，结果显示 N-甲基-2-吡咯烷酮可作为晶化促进剂，使 Beta 分子筛快速晶化生长。与商业 Beta 分子筛相比，该分子筛在异丁烯胺化反应中具有更为优异的催化性能。更为重要的是，论文发展了一条“中空诱导剂”吡咯烷酮衍生物辅助的高效制备中空单晶 Beta 分子筛的新路径。作者对吡咯烷酮衍生物存在条件下，分子筛的生长机理及其结构进行了分析，发现该分子筛具有空间异质的特点，即表层富铝、核心富硅。该分子筛在苯与异丁烯液相烷基化反应中其稳定性和叔丁基苯的选择性均明显优于常规 Beta 分子筛。

上述结果为特殊结构分子筛的制备提供了重要科学指导。作者在论文中提到，该方法还可以拓展应用于中空单晶 ZSM-5 分子筛，若能进一步拓展应用于其他分子筛合成，形成具有一定普适性的方法，将有更重要的意义。论文写作规范，数据量大，分析合理，已经达到了博士论文的要求，建议组织答辩并申请博士学位。