## ФЕДЕРАЛЬНАЯ СЛУЖБА ПО ИНТЕЛЛЕКТУАЛЬНОЙ СОБСТВЕННОСТИ

### (12) ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К ПАТЕНТУ

(52) CПK

B82B 3/00 (2020.02); B82Y 40/00 (2020.02); B01J 29/068 (2020.02); B01J 29/035 (2020.02); C07C 51/265 (2020.02)

(21)(22) Заявка: 2019136911, 18.11.2019

(24) Дата начала отсчета срока действия патента: 18.11.2019

Дата регистрации: **28.05.2020** 

Приоритет(ы):

(22) Дата подачи заявки: 18.11.2019

(45) Опубликовано: 28.05.2020 Бюл. № 16

Адрес для переписки:

119991, Москва, Ленинский пр-кт, 65, корп. 1, РГУ нефти и газа (НИУ) имени И.М. Губкина, отдел защиты интеллектуальной собственности

(72) Автор(ы):

Глотов Александр Павлович (RU), Винокуров Владимир Арнольдович (RU), Гущин Павел Александрович (RU), Иванов Евгений Владимирович (RU), Ставицкая Анна Вячеславовна (RU), Мазурова Кристина Михайловна (RU), Мельников Вячеслав Борисович (RU), Сосна Михаил Хаймович (RU), Караханов Эдуард Аветисович (RU), Максимов Антон Львович (RU), Золотухина Анна Владимировна (RU), Вутолкина Анна Викторовна (RU), Егазарьянц Сергей Владимирович (RU)

N

(73) Патентообладатель(и):

Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования "Российский государственный университет нефти и газа (национальный исследовательский университет) имени И.М. Губкина" (RU)

(56) Список документов, цитированных в отчете о поиске: RU 2676704 C1, 10.01.2019. Ying Li et al. "One-step synthesis of 2,5-dihydroxyterephthalic acid by the oxidation of pxylene over M-MCM-41 (M=Fe, Fe/Cu, Cu) catalysts" Chemical Engineering Journal, 2016, p. 1-37.

# (54) ГЕТЕРОГЕННЫЙ КАТАЛИЗАТОР ОКИСЛЕНИЯ ПАРА-КСИЛОЛА ДО ТЕРЕФТАЛЕВОЙ КИСЛОТЫ

(57) Реферат:

Изобретение относится к гетерогенному катализатору окисления пара-ксилола до терефталевой кислоты, состоящий из носителя, содержащего, % масс.: упорядоченный мезопористый оксид кремния типа МСМ-41 20,0-70,0; алюмосиликатные нанотрубки 30,0-80,0, и оксида металла, выбранного из ряда,

включающего Mn, Co, Fe, Cu, Pd или их смесь, нанесенного на носитель в количестве 0,5-15,0% от массы катализатора, причем указанный носитель представляет собой единый структурированный композитный материал. Использование: нефтеперерабатывающая и нефтехимическая отрасли промышленности.

ပ

**S** 

2

ပ

Достигаемый технический результат заключается в повышении селективности по целевой терефталевой кислоте за счет сформированной системы пор и каналов наноструктурированного композитного носителя, обеспечивающего при окислении молекулярно-ситовой эффект благодаря бимодальному распределению пор по

размерам. Высокая удельная площадь поверхности описываемого катализатора и, как следствие, увеличение площади контакта молекул сырья с каталитически-активными центрами, позволяет увеличить конверсию пара-ксилола и выход целевой терефталевой кислоты. 1 табл., 11 пр.

Стр.: 2

(51) Int. Cl. **B82B 3/00** (2006.01) **B82Y 40/00** (2011.01) **B01J 29/068** (2006.01) **B01J 29/035** (2006.01) C07C 51/265 (2006.01)

# (12) ABSTRACT OF INVENTION

(52) CPC

B82B 3/00 (2020.02); B82Y 40/00 (2020.02); B01J 29/068 (2020.02); B01J 29/035 (2020.02); C07C 51/265 (2020.02)

(21)(22) Application: 2019136911, 18.11.2019

(24) Effective date for property rights: 18.11.2019

> Registration date: 28.05.2020

Priority:

(22) Date of filing: 18.11.2019

(45) Date of publication: 28.05.2020 Bull. № 16

Mail address:

119991, Moskva, Leninskij pr-kt, 65, korp. 1, RGU nefti i gaza (NIU) imeni I.M. Gubkina, otdel zashchity intellektualnoj sobstvennosti

(72) Inventor(s):

Glotov Aleksandr Pavlovich (RU), Vinokurov Vladimir Arnoldovich (RU), Gushchin Pavel Aleksandrovich (RU), Ivanov Evgenij Vladimirovich (RU), Stavitskaya Anna Vyacheslavovna (RU), Mazurova Kristina Mikhajlovna (RU), Melnikov Vyacheslav Borisovich (RU), Sosna Mikhail Khajmovich (RU), Karakhanov Eduard Avetisovich (RU), Maksimov Anton Lvovich (RU). Zolotukhina Anna Vladimirovna (RU), Vutolkina Anna Viktorovna (RU), Egazaryants Sergej Vladimirovich (RU)

(73) Proprietor(s):

Federalnoe gosudarstvennoe avtonomnoe obrazovatelnoe uchrezhdenie vysshego obrazovaniya "Rossijskij gosudarstvennyj universitet nefti i gaza (natsionalnyj issledovatelskij universitet) imeni I.M. Gubkina" N

## (54) HETEROGENEOUS CATALYST FOR OXIDATION OF PARA-XYLENE TO TEREPHTHALIC ACID

(57) Abstract:

0

2

2

2

FIELD: chemistry.

SUBSTANCE: invention relates to a heterogeneous catalyst for oxidation of para-xylene to terephthalic acid, consisting of a carrier containing, wt%: ordered mesoporous silicon oxide of type MSM-41 20.0–70.0; aluminosilicate nanotubes 30.0-80.0, and a metal oxide selected from a series comprising Mn, Co, Fe, Cu, Pd or a mixture thereof, supported on the support in amount of 0.5-15.0 % of the weight of the catalyst, wherein said carrier is a single structured composite material. Use: oil refining and petrochemical industries.

EFFECT: achieved technical result consists in

improvement of selectivity for target terephthalic acid due to formed system of pores and channels of nanostructured composite support, which provides molecular sieve effect during oxidation due to bimodal pore size distribution; high specific surface area of the described catalyst and, as a result, an increase in the area of contact of molecules of the raw material with catalytically active centers, enables to increase conversion of para-xylene and output of target terephthalic acid.

1 cl, 1 tbl, 11 ex

Стр.: 3

Данное изобретение относится к гетерогенным катализаторам окисления ксилолов и может быть использовано в таких отраслях промышленности, как нефтехимия и нефтепереработка.

Процесс окисления ароматических соединений С-8 традиционно используют в получении терефталевой кислоты, которая является мономером для производства полиэтилентерефталата и полиэфирных волокон.

В качестве катализаторов окисления ксилолов и ароматического сырья используют, в основном, гомогенные каталитические системы. Процесс проводят при повышенных температурах и давлении в среде уксусной кислоты в присутствии солей марганца или кобальта, активированных бромом или его солями. Окислителями являются такие соединения, как пероксид водорода, кислород, воздух. Впервые жидкофазное окисление алкилароматических углеводородов было описано в патенте US 2245528 (A). В патентах US 2833816 (A), RU 2128641 (CI), RU 2171798 (C2), US 656299 (A) описаны различные способы использования метода жидкофазного окисления алкилароматических углеводородов. Исследования в этой области продолжаются и в настоящее время (CN 106187750 (B), US 7348452 (B2), RU 2362762 (C2) RU 2524947 (C2)).

Перспективным способом получения ароматических кислот является процесс гетерогенного каталитического окисления, характеризующийся легкостью отделения катализатора от продуктов реакции и возможностью его повторного использования, что особенно важно в промышленности.

При этом в патентной литературе практически отсутствуют сведения об использовании гетерогенных катализаторов в окислении ароматических углеводородов С-8 до терефталевой кислоты.

В патенте CN 109096090 (А) окисление п-ксилола проводят на гетерогенных каталитических системах, представляющих собой неметаллический углеродный материал. Сырье, растворитель и катализатор равномерно смешивают и пропускают через окислитель, содержащий молекулярный кислород, массовое соотношение катализатора и п-ксилола составляет (0,001-0,12):1. В патенте SU 789505 (А1) каталитической системой является оксид ванадия в количестве 0,4-1,6%. Процесс проводят при атмосферном давлении в реакторе, в который загружается необходимое соотношение алкилароматического углеводорода, катализатора и воздуха. В данных работах окислению подвергается лишь одна из двух метальных групп в молекуле п-ксилола, а образование терефталевой кислоты является побочной реакцией.

В научной литературе есть сведения о возможности использования некоторых твердых носителей в процессе получения терефталевой кислоты окислением п-ксилола. Среди них  $Al_2O_3$ , бентонит, цеолиты различной серии, в том числе ZSM-5, и упорядоченный мезопористый оксид кремния типа MCM-41.

Так, предложено иммобилизировать соли Mn и Co на бентоните, модифицированном полиамидоаминными дендримерами (Ghiaci M., Mostajeran M., Gil A. // Ind. Eng. Chem. Res. 2012, 51, 15821-15831). Синтезированный таким образом катализатор при соотношении Co:Mn~10:1 показывает хороший выход целевого продукта в присутствии ледяной уксусной кислоты и KBr (в качестве промотора).

Возможность селективного получения терефталевой кислоты с выходом 99% в присутствии гетерогенных каталитических систем была продемонстрирована на примере мостиковых  $\mu_3$ -оксосвязанных полиядерных комплексов Со и Мп, инкапсулированных в полости цеолита Y (Chavan S. A., Srinivas D., Ratnasamy P. // J. Catal. 2001, 204, 409-419). Однако для достижения высоких скоростей реакции и количественных выходов целевого продукта требуется давление воздуха более 6 МПа.

На данный момент перспективными считаются системы на основе цеолита ZSM-5 (Khan N.A., Kennedy E.M., Dlugogorski B.Z., Adesina A.A., Stockenhuber M. // Catal. Commun. 2014, 53, 42-46) и упорядоченного мезопористого оксида кремния типа МСМ-41 (Li Yi., Duan D., Wu M., Li J., Yan Zh., Wang W., Zi G., Wang J. // Chem. Eng. J. 2016, 306, 777-783). В сравнении с ZSM-5 упорядоченный мезопористый оксид кремния типа МСМ-41 обладает мезопористой структурой, облегчающей диффузию углеводородного сырья к активным центрам катализатора и приводящей к увеличению конверсии ксилолов.

Наиболее близким аналогом к настоящему изобретению является работа по окислению п-ксилола на катализаторах М-МСМ-41, где М=Fe (Li Yi., Duan D., Wu M., Li J., Yan Zh., Wang W., Zi G., Wang J. // Chem. Eng. J. 2016, 306, 777-783). Каталитическую систему получают пропиткой носителя раствором соли металла с последующей сушкой и прокалкой на воздухе при 550°C в течение 24 часов. В качестве предшественника каталитически активного металла используют нитрат железа (II). Готовый катализатор содержит от 1 до 2% масс. переходного металла в пересчете на общую массу каталитической системы. Окисление проводят в реакторе периодического действия, в который последовательно загружают п-ксилол, катализатор, смешанный растворитель, содержащий уксусную кислоту, ацетонитрил в соотношении 2:8 и воду, при температуре 80°C, атмосферном давлении, времени реакции 5 ч. В указанных условиях конверсия субстрата составляет 10,1%, а селективность по терефталевой кислоте достигает 3,1%. Известный катализатор обладает низкой эффективностью, связанной с морфологическими особенностями, в том числе с мономодальным распределением пор по размерам, а также недостаточно высокой площадью поверхности катализатора.

Проблема, на решение которой направлено настоящее изобретение, заключается в создании гетерогенного катализатора окисления пара-ксилола до терефталевой кислоты, обладающего повышенной эффективностью, в частности, более высокой активностью, приводящей к увеличению конверсии сырья и выхода целевой терефталевой кислоты.

Указанная проблема решается созданием гетерогенного катализатора окисления пара-ксилола до терефталевой кислоты, состоящего из носителя, содержащего, % масс.:

- упорядоченный мезопористый оксид кремния типа MCM-41 - алюмосиликатные нанотрубки

30

20,0-70,0 30,0-80,0

и оксида металла, выбранного из ряда, включающего Mn, Co, Fe, Cu, Pd или их смесь, нанесенного на носитель в количестве 0.5-15.0% от массы катализатора, причем указанный носитель представляет собой единый структурированный композитный материал.

Достигаемый технический результат заключается в повышении селективности по целевой терефталевой кислоте, минимизации выходов побочных продуктов (4-карбоксибензальдегид, терефталевый альдегид, пара-толуиловая кислота, паратолуиловый альдегид) за счет сформированной системы пор и каналов структурированного композитного носителя, обеспечивающего при окислении молекулярно-ситовой эффект благодаря бимодальному распределению пор по размерам. Высокая удельная площадь поверхности описываемого катализатора и, как следствие, увеличение площади контакта молекул сырья с каталитически-активными центрами, позволяет увеличить конверсию пара-ксилола и выход целевой терефталевой кислоты.

Описываемый катализатор получают следующим образом.

К водной дисперсии природных или синтетических алюмосиликатных нанотрубок с общей формулой  $Al_2Si_2(OH)_4*nH_2O$ , где n равно 0-2, добавляют галогенид

цетилтриметиламмония и кремниевый прекурсор, в качестве которого используют, например, пирогенный оксид кремния, силикат натрия или тетраэтилортосиликат. Полученную смесь доводят до щелочной среды в присутствии неорганического основания, водного аммиака. Образовавшийся гель выдерживают при температуре 80-140°C в течение 12-72 часов в закрытой емкости, после чего осадок отфильтровывают, промывают до отсутствия галогенид-ионов в маточном растворе, сушат при 60-120°C в течение 6-48 часов и прокаливают на воздухе при температуре 450-650°C. В результате получают носитель представляющий собой единый структурированный композитный материал - композит, состоящий из упорядоченного мезопористого оксида кремния, армированного алюмосиликатными нанотрубками. На полученный носитель наносят оксиды металлов Мп, Со, Fe, Cu, Pd или их смесь в количестве 0,5-15,0% от массы катализатора, более предпочтительны оксиды Со и Мп.

Окисление пара-ксилола проводят в среде уксусной кислоты в реакторе периодического действия в диапазоне температур 150-250°С, диапазоне давлений окислителя (кислород или воздух) 0,5-10,0 МПа, массовом соотношении субстрат/ катализатор, равном 1-10:1, мольном соотношении пара-ксилол/бромид калия, равном 50-150:1, объемном соотношении окислитель/пара-ксилол, равном 50-250:1 (н.у.), в течение 1-5 часов.

Ниже представлены примеры, иллюстрирующие изобретение, но не ограничивающие *20* его.

# Пример 1

Используют катализатор, содержащий, % масс.: носитель, состоящий из упорядоченного мезопористого оксида кремния типа MCM-41 - 70,0, алюмосиликатных нанотрубок - 30,0 и оксид кобальта, нанесенный на носитель в количестве 15,0% от массы катализатора. При этом указанный носитель представляет собой единый структурированный композитный материал.

Окисление проводят при температуре 200°C, давлении воздуха 1,0 МПа, массовом соотношении субстрат/катализатор 1:1, мольном соотношении пара-ксилол/бромид калия 50:1, объемном соотношении окислитель/пара-ксилол 250:1 (н.у.). Время реакции 3 часа. При этом получают следующие результаты: конверсия пара-ксилола составляет 78,5%, селективность по терефталевой кислоте - 5,6%. Результаты приведенного опыта и опытов, описанных в последующих примерах, приведены в таблице.

## Пример 2

Используют катализатор, содержащий, % масс.: носитель, состоящий из упорядоченного мезопористого оксида кремния типа MCM-41 - 60,0, алюмосиликатных нанотрубок - 40,0 и оксид марганца, нанесенный на носитель в количестве 0,5% от массы катализатора. При этом указанный носитель представляет собой единый структурированный композитный материал.

Окисление проводят при температуре 150°С, давлении воздуха 5,0 МПа, массовом соотношении субстрат/катализатор 6:1, мольном соотношении пара-ксилол/бромид калия 120:1, объемном соотношении окислитель/пара-ксилол 180:1 (н.у.). Время реакции 4 часа. При этом получают следующие результаты: конверсия пара-ксилола составляет 61,3%, селективность по терефталевой кислоте - 4,6%.

## Пример 3

45

Используют катализатор, содержащий, % масс.: носитель, состоящий из упорядоченного мезопористого оксида кремния типа MCM-41 - 30,0, алюмосиликатных нанотрубок - 70,0 и оксиды железа и марганца, нанесенные на носитель в количестве 2,6 и 1,3%, соответственно, от массы катализатора. При этом указанный носитель

представляет собой единый структурированный композитный материал.

Окисление проводят при температуре 150°C, давлении кислорода 0,5 МПа, массовом соотношении субстрат/катализатор 10:1, мольном соотношении пара-ксилол/бромид калия 150:1, объемном соотношении окислитель/пара-ксилол 50:1 (н.у.). Время реакции 1 час. При этом получают следующие результаты: конверсия пара-ксилола составляет 81,4%, селективность по терефталевой кислоте - 15,8%.

Пример 4

Используют катализатор, содержащий, % масс.: носитель, состоящий из упорядоченного мезопористого оксида кремния типа MCM-41 - 60,0, алюмосиликатных нанотрубок - 40,0 и оксиды меди и палладия, нанесенные на носитель в количестве 8,7 и 6,1%, соответственно, от массы катализатора. При этом указанный носитель представляет собой единый структурированный композитный материал.

Окисление проводят при температуре 180°С, давлении кислорода 1,0 МПа, массовом соотношении субстрат/катализатор 2:1, мольном соотношении пара-ксилол/бромид калия 60:1, объемном соотношении окислитель/пара-ксилол 70:1 (н.у.). Время реакции 2 часа. При этом получают следующие результаты: конверсия пара-ксилола составляет 54,2%, селективность по терефталевой кислоте - 19,1%.

Пример 5

Используют катализатор, содержащий, % масс.: носитель, состоящий из упорядоченного мезопористого оксида кремния типа МСМ-41 - 20,0, алюмосиликатных нанотрубок - 80,0 и оксиды кобальта и марганца, нанесенные на носитель в количестве 14,5 и 0,5%, соответственно, от массы катализатора. При этом указанный носитель представляет собой единый структурированный композитный материал.

Окисление проводят при температуре 180°С, давлении кислорода 2,0 МПа, массовом соотношении субстрат/катализатор 4:1, мольном соотношении пара-ксилол/бромид калия 130:1, объемном соотношении окислитель/пара-ксилол 190:1 (н.у.). Время реакции 3 часа. При этом получают следующие результаты: конверсия пара-ксилола составляет 87,2%, селективность по терефталевой кислоте - 82,9%.

Пример 6

30

35

40

Используют катализатор, содержащий, % масс.: носитель, состоящий из упорядоченного мезопористого оксида кремния типа MCM-41 - 60,0, алюмосиликатных нанотрубок - 40,0 и оксиды кобальта и марганца, нанесенные на носитель в количестве 8,8 и 0,8%, соответственно, от массы катализатора. При этом указанный носитель представляет собой единый структурированный композитный материал.

Окисление проводят при температуре 200°С, давлении кислорода 2,0 МПа, массовом соотношении субстрат/катализатор 3:1, мольном соотношении пара-ксилол/бромид калия 100:1, объемном соотношении окислитель/пара-ксилол 200:1 (н.у.). Время реакции 3 часа. При этом получают следующие результаты: конверсия пара-ксилола составляет 98,7%, селективность по терефталевой кислоте - 86,2%.

Пример 7

Используют катализатор, содержащий, % масс.: носитель, состоящий из упорядоченного мезопористого оксида кремния типа МСМ-41 - 60,0, алюмосиликатных нанотрубок - 40,0 и оксиды кобальта и марганца, нанесенные на носитель в количестве 6,9 и 0,8%, соответственно, от массы катализатора. При этом указанный носитель представляет собой единый структурированный композитный материал.

Окисление проводят при температуре 250°C, давлении воздуха 10,0 МПа, массовом соотношении субстрат/катализатор 3:1, мольном соотношении пара-ксилол/бромид калия 100:1, объемном соотношении окислитель/пара-ксилол 200:1 (н.у.). Время реакции

3 часа. При этом получают следующие результаты: конверсия пара-ксилола составляет 100%, селективность по терефталевой кислоте - 97,6%.

Пример 8

Используют катализатор, содержащий, % масс.: носитель, состоящий из упорядоченного мезопористого оксида кремния типа MCM-41 - 60,0, алюмосиликатных нанотрубок - 40,0 и оксиды кобальта и марганца, нанесенные на носитель в количестве 8,4 и 1,5%, соответственно, от массы катализатора. При этом указанный носитель представляет собой единый структурированный композитный материал.

Окисление проводят при температуре 200°С, давлении кислорода 2,0 МПа, массовом соотношении субстрат/катализатор 3:1, мольном соотношении пара-ксилол/бромид калия 100:1, объемном соотношении окислитель/пара-ксилол 200:1 (н.у.). Время реакции 5 часов. При этом получают следующие результаты: конверсия пара-ксилола составляет 99,9%, селективность по терефталевой кислоте - 88,2%.

Пример 9

15

20

25

Используют катализатор, содержащий, % масс.: носитель, состоящий из упорядоченного мезопористого оксида кремния типа MCM-41 - 60,0, алюмосиликатных нанотрубок - 40,0 и оксиды кобальта и марганца, нанесенные на носитель в количестве 8,0 и 1,8%, соответственно, от массы катализатора. При этом указанный носитель представляет собой единый структурированный композитный материал.

Окисление проводят при температуре 200°С, давлении воздуха 8,0 МПа, массовом соотношении субстрат/катализатор 3:1, мольном соотношении пара-ксилол/бромид калия 100:1, объемном соотношении окислитель/пара-ксилол 200:1 (н.у.). Время реакции 1 час. При этом получают следующие результаты: конверсия пара-ксилола составляет 99,0%, селективность по терефталевой кислоте - 94,7%.

Пример 10

Используют катализатор, содержащий, % масс.: носитель, состоящий из упорядоченного мезопористого оксида кремния типа МСМ-41 - 50,0, алюмосиликатных нанотрубок - 50,0 и оксиды кобальта и марганца, нанесенные на носитель в количестве 10,3 и 0,6%, соответственно, от массы катализатора. При этом указанный носитель представляет собой единый структурированный композитный материал.

Окисление проводят при температуре 230°C, давлении воздух 9,0 МПа, массовом соотношении субстрат/катализатор 4:1, мольном соотношении пара-ксилол/бромид калия 110:1, объемном соотношении окислитель/пара-ксилол 210:1 (н.у.). Время реакции 5 часов. При этом получают следующие результаты: конверсия пара-ксилола составляет 98,6%, селективность по терефталевой кислоте - 82,3%.

Пример 11

Используют катализатор, содержащий, % масс.: носитель, состоящий из упорядоченного мезопористого оксида кремния типа МСМ-41 - 30,0, алюмосиликатных нанотрубок - 70,0 и оксиды кобальта и марганца, нанесенные на носитель в количестве 11,4 и 0,5%, соответственно, от массы катализатора. При этом указанный носитель представляет собой единый структурированный композитный материал.

Окисление проводят при температуре 250°C, давлении кислорода 3,0 МПа, массовом соотношении субстрат/катализатор 3:1, мольном соотношении пара-ксилол/бромид калия 90:1, объемном соотношении окислитель/пара-ксилол 220:1 (н.у.). Время реакции 3 часа. При этом получают следующие результаты: конверсия пара-ксилола составляет 99,8%, селективность по терефталевой кислоте - 87,4%.

Таблица

Пример №	Параметры процесса окисления параксилола			Соотношение			Конверсия пара- ксилола, %	Селективность по терефталевой
	Темпе ратура, °C	Тип и давление окислителя, МПа	Время реакции, ч	пара- ксилол/бромид калия (мольное)	окислитель/па ра-ксилол (объемное)	Субстрат/ката лизатор (массовое)		кислоте, %
1	200	воздух, 1,0	3	50	250	1	78,5	5,6
2	150	воздух, 5,0	4	120	180	6	61,3	4,6
3	150	кислород, 0,5	1	150	50	10	81,4	15,8
4	180	кислород, 1,0	2	60	70	2	54,2	19,1
5	180	кислород, 2,0	3	130	190	4	87,2	82,9
6	200	кислород, 2,0	3	100	200	3	98,7	86,2
7	250	Воздух, 10,0	3	100	200	3	100	97,6
8	200	кислород, 2,0	5	100	200	3	99,9	88,2
9	200	воздух, 8,0	1	100	200	3	99,0	94,7
10	230	воздух, 9,0	5	110	210	4	98,6	82,3
11	250	кислород, 3,0	3	90	220	3	99,8	87,4
12 (известный катализатор)	80	Пероксид водорода, 0,1	5	-	1	43	10,1	3,1

Из представленных данных следует, что используемый в приведенных примерах катализатор проявляет высокую активность в реакции окисления пара-ксилола до терефталевой кислоты.

Так, конверсия пара-ксилола составляет 54,2-100%, что примерно на 44-90% выше, чем при использовании известного катализатора; содержание в продукте окисления терефталевой кислоты - 4,6-97,6%, что на 1,5-94,5% выше, чем при использовании известного катализатора.

Использование описываемого катализатора, содержащего компоненты в иных концентрациях, входящих в заявленный интервал, приводит к аналогичным результатам. Использование компонентов в количествах, выходящих за данный интервал, не приводит к желаемым результатам.

#### (57) Формула изобретения

Гетерогенный катализатор окисления пара-ксилола до терефталевой кислоты, состоящий из носителя, содержащего, % масс.:

упорядоченный мезопористый оксид кремния типа MCM-41 алюмосиликатные нанотрубки

20,0-70,0 30.0-80.0

и оксида металла, выбранного из ряда, включающего Mn, Co, Fe, Cu, Pd или их смесь, нанесенного на носитель в количестве 0,5-15,0% от массы катализатора, причем указанный носитель представляет собой единый структурированный композитный материал.

45

5

10

15

30

35

40