

[19] 中华人民共和国国家知识产权局

[51] Int. Cl⁷



[12] 发明专利申请公开说明书

[21] 申请号 03823257. X

B01J 37/02

B01J 23/40

B01J 23/46

C01B 3/38

C01B 3/40

H01M 8/06

[43] 公开日 2005 年 10 月 19 日

[11] 公开号 CN 1684771A

[22] 申请日 2003.8.26 [21] 申请号 03823257. X

[30] 优先权

[32] 2002. 8. 26 [33] EP [31] 02019014. 6

[86] 国际申请 PCT/EP2003/009449 2003. 8. 26

[87] 国际公布 WO2004/024324 德 2004. 3. 25

[85] 进入国家阶段日期 2005. 3. 29

[71] 申请人 尤米科尔股份公司及两合公司

地址 德国哈瑙

[72] 发明人 S·维兰德 F·保曼

M·杜斯比尔格

[74] 专利代理机构 中国国际贸易促进委员会专利商
标事务所

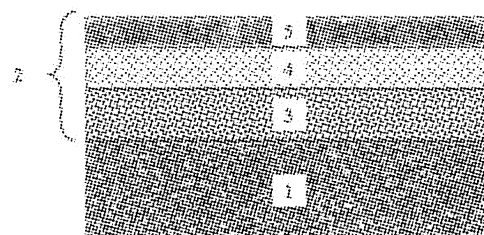
代理人 吴亦华

权利要求书 2 页 说明书 10 页 附图 1 页

[54] 发明名称 用于烃自热水蒸气转化的多层催化
剂和使用所述催化剂的方法

[57] 摘要

本发明涉及一种催化剂和一种使用该催化剂进行烃的自热催化水蒸气转化反应的方法。所述催化剂具有多层结构,并包含一个直接设置在载体上的下层催化剂层和一个设置在该下层催化剂层上的上层催化剂层,其中该下层催化剂层优选催化部分氧化反应,该上层催化剂层优选催化水蒸气转化。在另一种实施方式中,公开了一种三层催化剂,它具有另外一层用于一氧化碳转化的催化剂层。每个催化剂层在氧化载体材料上含有至少一种铂族金属。水蒸气转化方法是在绝热条件下通过使一种已被加热到预热温度的烃、氧和水或水蒸气的原料混合物通过该多层催化剂来实施的。所述催化剂和方法可用于在烃水蒸气转化装置系统中制备含氢的燃料气体,优选是用于燃料电池。



ISSN 1008-4274

1. 用于烃的自热催化转化的催化剂，其包含载体和涂覆在载体上的多层催化剂物料，其中，这种催化剂物料包含直接设置在该载体上的下层催化剂层和设置在该下层催化剂层上的上层催化剂层，其中该下层催化剂层优选催化部分氧化，和该上层催化剂层优选催化水蒸气转化。

2. 权利要求1所述的催化剂，其中，所述下层催化剂层含有占其总重量的0.1-5重量%的铂，所述上层催化剂层含有占其总重量的0.1-5重量%的铈。

3. 权利要求1或2所述的催化剂，其中，所述催化剂层含有贵金属、稀土金属和副族非贵金属作为另外的催化活性成分。

4. 权利要求3所述的催化剂，其中，所述催化剂层各自在氧化载体材料上包含至少一种第8副族的金属，该氧化载体材料选自氧化铝、二氧化硅、二氧化钛、氧化硼、氧化铋、氧化镓、碱金属氧化物、碱土金属氧化物、副族元素氧化物、稀土金属氧化物或其混合氧化物或者沸石。

5. 权利要求4所述的催化剂，其中，所述催化剂物料涂覆到一整块载体上，该载体长度为L并且从物流管道的进口端面起一直贯穿至物流管道的出口端面，该催化剂物料含有一个直接设置在该载体上的下层催化剂层和一个设置在该下层催化剂层上的上层催化剂层，其中该下层涂覆在该载体的整个长度上，该上层仅涂覆在该载体的一部分上。

6. 权利要求1-4中任一项所述的催化剂，其中该催化剂含有另外一个用于一氧化碳转化的催化剂层，该催化剂层作为第三层涂覆在第二催化剂层上。

7. 权利要求6所述的催化剂，其中，所述第三催化剂层仅涂覆在第二催化剂层的一部分上。

8. 权利要求6或7所述的催化剂，其中，所述用于一氧化碳转

化的催化剂层在氧化载体材料上包含至少一种贵金属 Pt、Pd、Rh、Ru、Ir、Os 和 Au 作为催化活性成分，该氧化载体材料选自氧化铝、二氧化硅、二氧化钛、稀土金属氧化物或其混合氧化物或者沸石。

9. 权利要求 8 所述的催化剂，其中，所述用于一氧化碳转化的催化剂层含有至少一种稀土金属和至少一种副族非贵金属作为另外的催化活性成分。

10. 权利要求 9 所述的催化剂，其中，所述用于一氧化碳转化的催化剂层在载体材料上包含含量各为其总重量的 0.1-5 重量%的铂和钯，该载体材料选自氧化铝、二氧化硅、二氧化钛、稀土金属氧化物或其混合氧化物或者沸石。

11. 权利要求 10 所述的催化剂，其中，所述各个催化剂层还含有至少一种选自氧化硼、氧化铋、氧化镓、碱金属氧化物、碱土金属氧化物、副族元素氧化物和稀土金属氧化物的氧化物，其含量为至多所述催化剂物料总重量的 70 重量%。

12. 用于烃的自热催化水蒸气转化的方法，其通过使一种已经被加热到预热温度的烃、氧和水或水蒸气的原料混合物通过权利要求 1-11 中任一项所述的多层催化剂来进行。

13. 权利要求 12 所述的方法，其中，所述方法是在绝热条件下进行的。

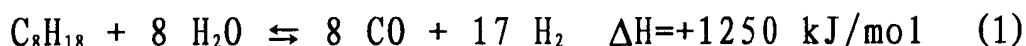
14. 权利要求 1-11 中任一项所述的催化剂的用途，用于在燃料电池系统的烃水蒸气转化装置中进行的烃的自热水蒸气转化。

15. 用于烃的催化水蒸气转化以制备氢的烃水蒸气转化装置，其含有权利要求 1-11 中任一项所述的催化剂物料。

用于烃自热水蒸气转化的 多层催化剂和使用所述催化剂的方法

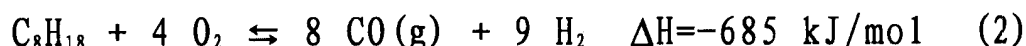
本发明涉及用于通过自热水蒸气转化制氢的多层催化剂。本发明还涉及一种使用这种催化剂对烃进行自热水蒸气转化的方法。在此方法中，一种已经被加热到预热温度的烃、氧和水或水蒸气的原料混合物流过多层催化剂，该催化剂能够催化烃的部分氧化和水蒸气转化。该方法用于在烃水蒸气转化装置（reformer）系统中制备氢或含氢燃料气体，优选是用于燃料电池。

众所周知，氢可通过在高温于水蒸气存在下使烃在一种合适的催化剂上进行反应以形成氢、一氧化碳和二氧化碳而制得。这种反应（也称作“水蒸气转化”）是强烈吸热的，其例如按照下述反应方程式进行：

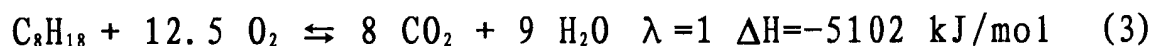


水蒸气转化反应（1）的特性参数是所谓的水蒸气/碳的比值 S/C。在反应方程式（1）中，S/C 等于 1。

另一种可用于制备氢的已知方法是催化部分氧化（CPO）。在此方法中，烃在氧存在下于一种催化剂上按照部分氧化反应（2）的反应方程式进行反应，从而形成一氧化碳和氢：



此部分氧化反应的一个重要参数是空气指数 λ ，它定义为所用氧摩尔数与完全氧化需要的氧摩尔数的比值（参见反应方程式（3））：



为了将烃全部转化为一氧化碳和氢，按照方程式（3）需要空气指数 $\lambda < 1$ ，理想地 $\lambda = 4/12.5 = 0.32$ 。

本发明关注另一种可能获得氢的方法，即所谓的自热水蒸气转化。这种方法结合了水蒸气转化（方程式（1））与催化部分氧化（方程式

(2))，其中放热的部分氧化为吸热的水蒸气转化提供所需要的反应热。在此情形中，将原料混合物预热到预热温度。产物混合物在反应器出口处的温度下处于热力学平衡。自热水蒸气转化法结合了催化部分氧化的优点(良好的起始性能)和水蒸气转化的优点(高的氢收率)。因此，这种方法非常适合于用于移动燃料电池系统氢的车载产生，也适合于在用于固定燃料电池装置的小型烃水蒸气转化装置之中使用。

用于烃的自热转化的催化剂体系是已知的。现有技术如下所述：

US-A-4415484 公开了一种用于自热转化反应器中的催化剂。该催化剂在氧化铝载体上含有 0.01-6%的铈和 10-35%的氧化钙，它还含有约 3-15%的氧化镁。该催化剂以粒状形式使用，其特征为在低的氧/碳比时具有特别低的焦化倾向。按照此文献，一种通常的用于实施自热转化的催化剂体系包含占其长度约 1/3 的用于部分氧化反应的氧化铁催化剂，和占其长度 2/3 的所述铈催化剂。但没有公开多层催化剂结构。

W098/55227 公开了一种用于烃的部分氧化的双功能催化剂，它不仅对于烃的脱氢反应具有活性，而且能够选择性地氧化烃链。脱氢活性是由元素周期系统的第 8 族金属提供的，而选择性氧化是通过离子氧来进行的。离子氧源是以氟石结构或钙钛矿结构进行结晶的氧化物，例如氧化铈、氧化铈、氧化铈等。例如，一种优选的催化剂是 Pt/CeGdO。它是以直径为 1.125-1.5 英寸 (2.8-3.8 cm) 的粒状形式进行使用的。

W099/48805 公开了一种通过烃的自维持部分氧化和水蒸气转化来催化制备氢的方法，其中烃和含氧气体以及任选的水蒸气组成的混合物在一种催化剂上进行反应，该催化剂含有分散在含铈和铈阳离子的载体材料上的铈。该催化剂以颗粒状形式进行使用。但没有公开催化剂的多层结构。

DE19727841A1 公开了一种烃的自热转化方法和装置，其中燃料经供给装置输入到一个两级转化反应器中。将得到的转化产物以与自外向内输送的转化起始物料进行热交换的方式逆流地引导入一个换热器中。将经该供给装置输入的燃料与起始物料一起直接引入到含催化剂

的反应区中，在其中进行燃烧和转化或催化。该转化反应器在其上部含有一个涂有催化剂的蜂窝体，和在其下部含有一个催化剂涂覆的床。也可使用蜂窝体替代该床。在此发明中，也没有公开催化剂的多层结构。

EP0112613B1 公开了一种烃自热转化的方法，其中部分氧化发生在区域 1 中，水蒸气转化发生在空间上分开的区域 2 中。含 Pt 和 Pd 的催化剂用于部分氧化，含贵金属的催化剂用于该水蒸气转化。但是，没有公开催化剂的多层结构。

W099/33567 公开了用于烃部分氧化的催化剂，其整块式载体拥有带有不同孔隙率的多层结构。在此文献中，多层结构不涉及催化剂自身，而仅涉及载体基质。

DE10062662A1 公开了一种用于甲醇转化的多层催化剂体系。该催化剂体系包含基于氧化铜和氧化锌的第一催化成分，其作为底层而主要催化水蒸气转化，和第二上催化层，其含有贵金属（铂或钯）和金属氧化物，并主要活化甲醇的部分氧化。但是，此处所述催化剂体系不可用于烃的自热转化，因为由于高温而造成非贵金属氧化物（CuO、ZnO）的分解或还原，和随后与贵金属成分形成合金，因此无法得到长期稳定性。

EP1157968A1 给出了一种用于烃的自热水蒸气转化的方法，它是在绝热条件下进行操作的，并在载体上需要一种贵金属催化剂。

此外，W002/18269A2 公开了一种用于氢制备的催化剂单元，它具有层状结构。这种催化剂单元由一个整块物件构成，它具有一个含水蒸气转化催化剂（SR 催化剂）的层。这个层再与一个含有部分氧化催化剂（CPO 催化剂）的层相接触。在一种优选实施方式中，该含部分氧化（CPO）催化剂的层位于该含有水蒸气转化催化剂的层之上。换言之，下层催化剂层含有水蒸气转化催化剂，而上层含有部分氧化催化剂。该申请详细地说明了烃自热转化的问题，并证实在 W002/18269A2 中所述的层顺序具有低的氢收率，从而导致低的烃水蒸气转化装置效率。

这种低的烃水蒸气转化装置效率反过来导致整个燃料电池驱动系统（由燃料电池组、烃水蒸气转化装置单元和控制单元组成）具有低的总体效率，它仅稍好于当前最佳的用于客车的柴油机单元的效率。对于用于固定燃料电池系统中的烃水蒸气转化装置的情况，这种低效率会导致更低的电和热的总收率，其结果是降低了对常规的电-热偶联的加热系统）（“KWK 系统”）的竞争力

因此，仍然需要这样的烃的自热水蒸气转化的方法，即该方法具有非常高的氢收率，并因此非常适合用于移动和固定燃料电池系统。此外，也需要适合于这种方法的催化剂。

本发明提供了一种催化剂和一种在使用这种催化剂的情况下烃的自热催化水蒸气转化的方法。

本发明催化剂在载体上具有多层涂层，此涂层包括两个不同的催化剂层，该催化剂层各自在氧化载体材料上含有至少一种铂族金属。该多层涂层具有第一下层催化剂层，其优选催化部分氧化（按照方程式（2）的“CPO”）；和第二上层催化剂层，其主要显示水蒸气转化（按照方程式（1））活性。这些层的顺序与 W002/18269A2 的顺序正好相反。

在三层催化剂布置的情况下，该催化剂物料可具有另外一层催化剂层，例如用于一氧化碳转化（“水煤气轮换反应”，WGS 反应）的催化剂层，它作为第三层涂覆在该第二涂层的全部或部分之上。用于一氧化碳转化的催化剂层可含有至少一种贵金属作为催化活性成分。具有多于三层的结构，例如四层布置也是可行的。

在本发明方法中，将一种已被加热到预热温度的烃、氧和水或水蒸气的原料混合物通过该催化剂，其中绝热地进行该反应。整个工艺是一个单级工艺，即原料混合物通过一个单一的多层催化剂，该催化剂能够通过原料混合物的催化部分氧化而提供吸热的水蒸气转化所需要的能量。在此方法中，原料混合物的温度从预热温度提高到所需要的 600-900°C 的反应温度。部分氧化和水蒸气转化在该催化剂上平稳地相互转变。放热的催化部分氧化和吸热的水蒸气转化以及随后的一

氧化碳转化的顺序给出催化剂中的一致温度曲线，没有任何大的温度波动和峰值。

本发明催化剂包含载体和催化剂物料，该催化剂物料以多次涂布的形式涂覆到该载体的几何表面上。优选的载体是整块蜂窝体，其由陶瓷或金属组成、开孔的陶瓷或金属泡沫体、金属片或不规则成形的构件。该催化涂层的总厚度一般在 20-200 μm 的范围内。

在两层涂层的情况下，该催化剂物料包含第一下层催化剂层，其优选催化部分氧化；和第二上层催化剂层，其具有水蒸气转化活性。本发明催化剂的一种可能结构的示意图如图 1 所示。该催化剂包含载体 (1)，其上已经涂覆有两层的催化剂物料 (2)，该催化剂物料包含一个下层 (3) 和一个上层 (4)。该下层催化剂层能催化部分氧化，该上层催化剂层能催化水蒸气转化。

这两个不同催化剂层各自在细分的氧化载体材料上含有至少一种铂族金属。因此这涉及所谓的负载的催化剂或载体催化剂，在这些催化剂之中，贵金属充分分散在该氧化载体材料之上。在本发明的范围内，术语载体催化剂仅涉及催化剂物料，必须与包含具有涂覆到其上的催化剂物料 (2) 的载体 (1) 的催化剂相区别。

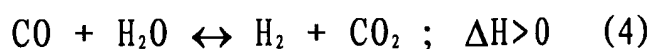
催化部分氧化的下层催化剂层 (3) 优选含有占其总重量 0.1-5 重量%的铂作为贵金属。铂对于烃的氧化具有高活性。为了使其氧化活性符合于该工艺的需要，催化剂物料还可含有其它贵金属，例如钯或铑。优选使用含有在氧化铝和稀土金属氧化物上的铂的催化剂物料。

用于水蒸气转化的上层催化剂层 (4) 优选含有占其总重量 0.1-5 重量%的铑作为贵金属。铑对于水蒸气转化具有高活性，同时，与铂的氧化活性相比，其氧化活性是低的。优选使用含有在活性氧化铝上的铑的催化剂物料。此催化剂层还可含有氧化铈以减少炭黑沉积和提高耐硫性。

在三层涂层的情况下，催化剂物料不仅包含第一下层催化剂层(它优选催化部分氧化)和中间催化剂层(它对于水蒸气转化是有活性的)，

还包括第三层,其能催化一氧化碳(CO)转化(所谓的水煤气轮换(WGS)反应)。本发明催化剂的一种可能结构的示意图如图2所示。该催化剂包含载体(1),其上已经涂覆有三层催化剂物料(2),该催化剂物料包含一个下层(3)、一个中间层(4)和一个上层(5)。该下层催化剂层能催化部分氧化,该中间催化剂层能催化水蒸气转化,该上层催化剂层能催化一氧化碳转化。

一氧化碳与水在催化剂存在下进行反应而形成二氧化碳和氢,这是制备富氢的气体混合物的已知方法,它是基于下述放热反应进行的:



按照反应方程式(4)进行的反应在下文中称作一氧化碳转化或CO转化。在英语中,对此也经常使用术语“水煤气轮换反应”(WGS)。

在此三层催化剂体系的情况下,优选使用含贵金属的轮换催化剂(shift catalyst),以用于工作温度为280-550°C的高温CO转化。这类转换催化剂是从本申请人的EP1136441A2中已知的。它们在氧化载体材料上包含至少一种贵金属铂、钯、铑、钌、铱、铱和金,该氧化载体材料选自氧化铝、二氧化硅、氧化钛、稀土金属氧化物或其混合氧化物或者沸石。优选使用基于铂、钯和铁的CO转化催化剂。

在高温CO转化中,转化产物气体通常含有2-40体积%的一氧化碳,并具有源自转化工艺的300-600°C的进口温度。

例如氧化物可用作铂族金属的氧化载体材料,例如氧化铝、二氧化硅、二氧化钛或其混合氧化物和沸石。优选使用比表面大于10 m²/g的材料,从而使得催化活性成分能够尽可能高度分散地分布在此大的表面之上。用于制备这类载体催化剂和用其涂覆惰性载体的技术对本领域熟练技术人员来说是已知的。

为了提高催化剂物料的热稳定性,它还可含有至少一种选自下列的氧化物:氧化硼、氧化铍、氧化镓、碱金属氧化物、碱土金属氧化物、副族元素氧化物和稀土金属氧化物,这些氧化物的含量至多为催化剂物料总重量的70重量%。

本发明的多层催化剂较之常规催化剂具有明显的优点。就此本发

明人证实,通过在下层氧化活性层上涂覆上层催化剂层(用于水蒸气转化),令人惊奇地,减弱了进入催化剂时原料混合物的部分氧化。其结果是,避免了可能会破坏催化剂的高的温度峰值。通过涂覆用于一氧化碳转化(WGS)的第三催化活性层,附加地提高了氢的收率,并降低了剩余烃的含量。

本发明方法可通过使用脂族烃和/或芳烃(甲烷、丙烷、甲苯等)或烃混合物(例如天然气、汽油、燃料油或柴油)而进行操作的。根据所用的烃,可以水蒸气/烃比S/C为0.7-5进行操作。原料混合物的空气指数 λ 和其预热温度应当如此选择,即使得在该催化剂的出口处调节到600-900°C的温度。

所提出的方法仅表示获得用于移动和固定燃料电池装置的氢的全部方法的一部分。全部方法不仅包括该自热转化,还包括用于从该转化产物中除去一氧化碳的工艺步骤,例如,通过CO(PrO_x)的优先氧化、甲烷化或外部低温CO转化。

为了实现该烃水蒸气转化装置系统的快速启动,原料混合物也可用电进行短时间的预加热。催化剂的低热质有利地导致在数秒后开始完全的氢生产。

本发明的其它实施方式涉及梯度式催化剂布置。

在梯度式催化剂布置的情况下,催化剂物料可涂覆到一整块载体上,该载体的长度为L并且从物流管道的进口端面起一直贯穿至物流管道的出口端面,该催化剂物料含有一个直接设置在该载体上的下层催化剂层和一个设置在该下层催化剂层上的上层催化剂层。在此下层涂覆在载体的整个长度L上,上层仅涂覆在特定区段,例如载体的出口一侧的部分。层顺序的确切安排在此取决于烃水蒸气转化装置系统的构造、几何形状和操作方式。

下述实施例和对比例将对本发明的实质进行更详细的说明。但是,本发明不局限于这些实施方式。

实施例

实施例 1:

两层催化剂（本发明）

通过使用两层催化剂，采用本发明方法对甲烷进行转化。该催化剂是催化涂覆的陶瓷蜂窝体，其蜂窝密度为 62 蜂窝/cm²，容积为 30 ml。

该两层催化剂的下层由铂/氧化铝/氧化铈/氧化锆载体催化剂组成（用于 CPO）。该催化剂的上层由铈/氧化铝载体催化剂组成（用于 SR）。催化涂层的总浓度为 150 g/l；贵金属的涂覆浓度为 0.5 g/l 的铂和 0.5 g/l 的铈。

为了实施自热转化，将原料加热到 600°C，然后一起通过该催化剂。使用下述物流：

甲烷：152 g/h

水：454 g/h

空气：319 Nl/h

该混合物的入口温度为 610°C，出口温度为 645°C。该两层催化剂的干燥转化产物含有 45.9 体积%的氢，而对比例 1（VB1）的两层催化剂的干燥转化产物中含有 44.5 体积%的氢。CO 含量仅为 4.1 体积%。所得结果如表 1 中所示。

对比例 1（VB1）：

两层催化剂（按照 W002/18269A2，不是按照本发明的催化剂）

通过使用两层催化剂，采用实施例 1 所述的本发明方法对甲烷进行转化。该催化剂是催化涂覆的陶瓷蜂窝体，其蜂窝密度为 62 蜂窝/cm²，容积为 30 ml。

按照 W002/18269A2，将实施例 1 所述的层顺序颠倒过来。该两层催化剂的上层由铂/氧化铝/氧化铈/氧化锆载体催化剂组成（用于 CPO）。该催化剂的下层由铈/氧化铝载体催化剂组成（用于 SR）。催化涂层的总浓度为 150 g/l；贵金属的涂覆浓度为 0.5 g/l 的铂和 0.5

g/l 的铈。

为了实施自热转化，将原料加热到 600°C，然后一起通过该催化剂。使用下述物流：

甲烷：152 g/h

水：454 g/h

空气：319 Nl/h

该混合物的入口温度为 610°C，出口温度为 645°C。该非本发明的两层催化剂的干燥转化产物含有 44.5 体积%的氢，而实施例 1 的本发明两层催化剂的干燥转化产物中含有 45.9 体积%的氢。所得结果如表 1 中所示。由此可以清楚地看出本发明的两层催化剂体系的层顺序的优越性。

对比例 2 (VB2)：

单层催化剂 (不是本发明的催化剂)

作为另外一个对比例，同样使用催化涂覆的陶瓷蜂窝体，其蜂窝密度为 62 蜂窝/cm²，容积为 30 ml。该单层体系中的催化涂层由铈/氧化铝载体催化剂组成，并以 150 g/l 的浓度涂覆到蜂窝体上。铈的涂覆浓度为 1 g/l。采用实施例 1 所述方法对甲烷进行转化。

为了实施自热转化，再次将原料加热到 600°C，然后一起通过该催化剂。甲烷、水和空气的流量与实施例 1 中相同。

入口温度为 605°C，出口温度为 640°C。该单层催化剂的干燥转化产物含有 43.4 体积%的氢，而在实施例 1 的本发明两层催化剂的情形下则为 45.9 体积%的氢。不希望的 CO 的浓度 (4.8 体积%) 和残留的甲烷 (1.7 体积%) 明显较高。所得结果也如表 1 中所示。由此可以看出本发明的多层催化剂体系的优越性。

实施例 2：

三层催化剂 (本发明)

通过使用三层催化剂，采用本发明方法对甲烷进行转化。该催化剂是催化涂覆的陶瓷蜂窝体，其蜂窝密度为 62 蜂窝/cm²，容积为 30 ml。

下层由铂/氧化铝/氧化铈/氧化锆载体催化剂组成（用于 CP0）。该催化剂的中间层由铈/氧化铝载体催化剂组成（用于 SR）。上层由 CO 转化催化剂组成，并涂覆在体积部分的后 1/3 处（沿着流动方向）。该 CO 转化催化剂的催化活性涂层由涂覆在氧化铝/氧化铈上的 1.5 重量% Pt、1.0 重量% Pd 和 2.4 重量% Fe 组成。

催化涂层的总浓度为 180 g/l；贵金属的涂覆浓度为 0.8 g/l 的铂、0.2 g/l 的钯和 0.5 g/l 的铈。

为了实施自热转化，将原料加热到 600°C，然后一起通过该催化剂。使用下述物流：

甲烷：152 g/h

水：454 g/h

空气：319 Nl/h

该混合物的入口温度为 605°C，出口温度为 630°C。该三层催化剂的干燥转化产物含有 46.3 体积%的氢。CO 含量仅为 3.7 体积%。所得结果如表 1 中所示。由此可以看出本发明的三层催化剂体系的优越性。

表 1：在甲烷自热转化中，将本发明的多层催化剂与具有不同的层顺序的多层催化剂（VB1）进行比较以及常规单层催化剂（VB2）进行比较得到的结果

	H ₂ (体积%)	CO ₂ (体积%)	CO (体积%)	残留甲烷 (体积%)
实施例 1	45.9	13.8	4.1	1.0
对比例 1 (VB1, W002/18269)	44.5	13.1	4.5	1.3
对比例 2 (VB2)	43.4	12.7	4.8	1.7
实施例 2	46.3	14.1	3.7	1.1

图 1

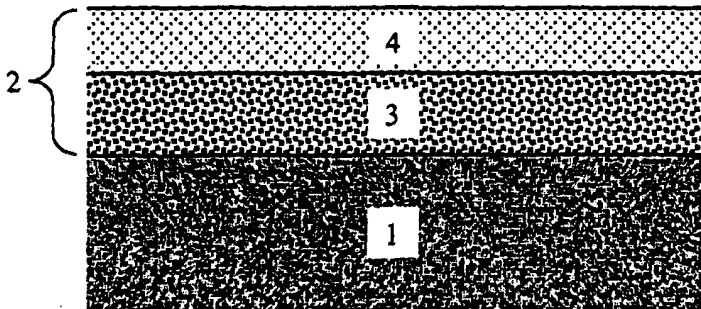


图 2

