

In this research the palladium silver alloy inorganic thin film was experimentally investigated to attest its ability to separate the hydrogen from the steam reformer. Owing to the high hydrogen permeability, the use of Pd-Ag alloy membrane at the exit of the processor can be used to produce 99.9% ultra pure hydrogen for the fuel cell. The membrane of Pd-Ag alloy allows the hydrogen to diffuse through its metallic crystal structure whilst impermeable to the remaining gases produced by the reformation process. Although currently, the technology is expensive due to materials cost and high operating pressure. Research is presently underway to focus on developing much thinner 77% Pd-23%Ag alloy membranes (5-10 microns) supported on porous ceramics or stainless steel by plasma sputtering technology. Reductions in cost and operating pressures are experimentally investigated without compromising the membrane strength. This supported membrane not only will be used to separate or purify the hydrogen but also to get separate hydrogen-rich gas from methanol-steam reforming system without the thermodynamic equilibrium limitation.

Key words: Fuel cells, Palladium silver thin film, Hydrogen permeation, Plasma sputtering

摘要

目前主要的燃料電池技術包括鹼性型 (AFC)，磷酸型 (PAFC)，質子交換膜型 (PEMFC)，熔融碳酸鹽型 (MCFC) 及固態氧化物型等五種，由於車輛及小型攜帶型電池需於較低溫下操作，以及高電流密度再加上無腐蝕性液體溢出等需求。PEMFC 除合乎上述條件且可提供高濃度氫氣燃料故目前較適合國內發展，但此種低溫條件導致電極中的白金觸媒產生嚴重一氧化碳毒害，因一氧化碳傾向附著於觸媒表面而阻止氫氣之吸附，故燃料氣在進入燃料電池前必須有進一步氣體純化以使一氧化碳濃度降低至水蒸氣重組器可接受之範圍。

本文主要以實驗方法來研究鈀銀合金無機薄膜於水蒸氣重組中之氫氣分離，由於鈀銀合金薄膜對氫氣有良好選擇性，故可產生 99.9% 高純度氫氣，此薄膜僅允許氫氣擴散通過其金屬結構而不允許其它氣體滲透。雖然此技術目前面臨較貴的材料成本與高操作滲透壓力，本研究為降低成本與提昇氫氣在鈀銀合金膜的滲透量，以電漿濺鍍技術將鈀銀合金鍍在多孔質陶瓷或不鏽鋼載體上形成支撐式 77%鈀-23%銀合金膜組成，並減少膜之厚度至 5-10 μm ，可在不影響薄膜強度之下來減低成本。

此種支撐式鈀銀合金膜除可應用於分離與純化氫氣，更可應用於甲醇的水蒸汽重組反應，藉由將氫氣至反應系統中直接移除，避免受到熱力學平衡的限制，以達到降低反應溫度的作用。

關鍵字：燃料電池, 鈀銀合金薄膜, 氫氣滲透, 電漿濺鍍

一、前言

氫氣是在許多產業中應用相當廣泛的一種化學物質，在石化工業裏，是重要的化學原料之一；在不銹鋼工業裏與半導體工業裏，則是產品精煉或表面改質的重要工具；而在能源工業方面，氫氣則是未來符合無污染環保要求的重要能源來源。傳統上，氫氣的產製係透過碳氫化合物的水蒸汽重組反應，或煤碳氣化製程進行工業化的大量生產。近年來，利用甲醇水蒸汽重組反應產製氫氣以供應中型用量需求之工廠。^[1-3]

在氫氣產製程序中，不論是氫氣生產或回收製程中，氫氣純化是不可或缺的步驟，不僅是必需的，通常也是整個製程中費用最昂貴的步驟^[4]。依據各種產業的不同應用，純化的程度也有所不同，由於鈀膜對氫氣的分離選擇性越高時，所得到的氫氣純度也越高，但氫氣產量卻越低，因此基於經濟的考量，純度的高低與產量的大小應有一個最適值，並依此選用最合適的鈀膜性質。

爲了提昇氫氣在鈀合金膜中的滲透量，將鈀或鈀合金薄膜鍍在多孔性或不銹鋼載體上，形成支撐式鈀合金膜，以減少膜厚度至 1~20 μm ，已成為廣受研究的課題。此種支撐式鈀膜或鈀合金膜除了可用於分離與純化氫氣外，更可應用於甲烷的水蒸汽重組，藉由將氫氣自反應系統中直接移出，增加轉化率及改進選擇率，避免受到熱力學平衡的限制，以達到降低反應溫度的作用^[5]，及減少能源耗損，提高系統總效率並增加整體的經濟效應。

二、支撐式鈀銀合金薄膜之特性

一般而言，分離膜可簡單的分爲有機高分子薄膜(Organic membrane)及無機薄膜(Inorganic membrane)。但由於無機膜具有相當良好的熱及化學穩定性和優異的機械強度，所以近年來的研究焦點則大部分集中在無機膜方面，無機薄膜主要包括陶瓷