



## パラジウム膜を介した水素移動における ガス境膜抵抗の影響

Effect of Gas-film Resistance on Hydrogen Permeation Flux through Pd Membrane

岩井 保則 山西 敏彦

Yasunori IWAI and Toshihiko YAMANISHI

核融合研究開発部門  
核融合エネルギー工学研究開発ユニット

Division of Fusion Energy Technology  
Fusion Research and Development Directorate

本レポートは独立行政法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。  
本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。  
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ (<http://www.jaea.go.jp>)  
より発信されています。

独立行政法人日本原子力研究開発機構 研究技術情報部 研究技術情報課  
〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2 番地 4  
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:[ird-support@jaea.go.jp](mailto:ird-support@jaea.go.jp)

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency  
Inquiries about availability and/or copyright of this report should be addressed to  
Intellectual Resources Section, Intellectual Resources Department,  
Japan Atomic Energy Agency  
2-4 Shirakata Shirane, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan  
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:[ird-support@jaea.go.jp](mailto:ird-support@jaea.go.jp)

## パラジウム膜を介した水素移動におけるガス境膜抵抗の影響

日本原子力研究開発機構 核融合研究開発部門

核融合エネルギー工学研究開発ユニット

岩井 保則、山西 敏彦

(2010年9月8日 受理)

核融合燃料循環システムにおいてパラジウム拡散器は水素同位体の高純度精製を担う。パラジウム膜を介した水素移動について素反応に基づく数値計算コードを作成し、水素移動過程におけるガス境膜抵抗の影響を定量的に評価した。パラジウム膜を介した水素移動では操作温度が上昇するにつれ透過側表面脱離律速から拡散律速に律速段階が移行する。律速段階が移行する境界温度はパラジウムの有効膜厚が薄くなるにつれて高温側にシフトした。近年、パラジウム膜は水素フラックス向上のために薄膜化する傾向があるが、膜厚が  $10 \mu\text{m}$  以下になる場合は拡散抵抗の低下に対して相対的にガス境膜抵抗の影響が無視できなくなり、水素フラックスは薄膜化による期待値より大幅に小さくなつた。また核融合燃料循環システムにてありうる供給ガス中に含まれる水素分圧が小さいケースではガス境膜抵抗の影響による水素フラックスの低下が特に顕著となる傾向を明らかとした。

## Effect of Gas-film Resistance on Hydrogen Permeation Flux through Pd Membrane

Yasunori IWAI and Toshihiko YAMANISHI

Division of Fusion Energy Technology,  
Fusion Research and Development Directorate,  
Japan Atomic Energy Agency  
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received September 8, 2010)

In the fuel cycle of a fusion reactor, palladium diffuser purifies hydrogen isotopes. We have developed the numerical code of hydrogen permeation through palladium alloy membrane in consideration of each elementary reaction step and effect of external gas-film resistance of mass transfer on hydrogen permeation through palladium alloy membrane was quantitatively evaluated using the code. In the absence of external mass transfer resistance, the rate-controlling step of mass transfer through palladium alloy membrane is solid state atomic diffusion in the range of operating temperature and recombinative desorption at low partial pressure side at lower temperature. The temperature for shifting the rate-controlling step from solid state atomic diffusion to recombinative desorption at low partial pressure side becomes higher as the membrane thickness is thinner. The thinner membrane thickness is admittedly preferable for increasing in hydrogen permeation flux. However, the effect of external gas-film resistance of mass transfer on hydrogen permeation flux through palladium alloy membrane should be considered when the membrane thickness is less than 10 $\mu\text{m}$ . Especially in case of insufficient hydrogen pressure on high partial pressure side of membrane, hydrogen permeation flux remarkably decreases due to external gas-film resistance.

Keywords : Fuel Cycle, Fusion Reactor, Hydrogen, Tritium, Diffusion, Purification, Gas Separation, Palladium Membrane, Gas-Film Resistance

## 目次

1. 序論 -----	1
2. ガス境膜抵抗を考慮した水素移動過程の数値モデル化 -----	3
2.1 素過程のモデル化 -----	3
2.2 各移動機構における水素フラックスの表現式 -----	7
2.3 定常状態におけるフラックス計算 -----	8
2.4 計算に用いる物性値の評価 -----	10
3. パラジウム膜を介した水素移動におけるガス境膜抵抗の影響 -----	12
3.1 各移動機構の律速を仮定した場合の 水素フラックスの温度依存性評価 -----	12
3.2 ガス境膜抵抗が水素フラックスに及ぼす影響 -----	13
4. 結論 -----	15
参考文献 -----	16
記号表 -----	17

## Contents

1. Introduction-----	1
2. Numerical model of hydrogen permeation behavior in consideration of external gas-film resistance-----	3
2.1 Numerical model of each elementary reaction step -----	3
2.2 Evaluation of hydrogen permeation flux for each elementary reaction step -----	7
2.3 Evaluation of hydrogen permeation flux at steady state-----	8
2.4 Parameter values used in model calculations -----	10
3. Effect of gas-film resistance on hydrogen permeation flux through Pd membrane-----	12
3.1 Hydrogen permeation behavior with temperature to reveal the rate - controlling processes-----	12
3.2 Effect of gas-film resistance on hydrogen permeation flux -----	13
4. Conclusions-----	15
References -----	16
Nomenclature -----	17

This is a blank page.

## 1. 序論

パラジウム拡散器はパラジウム膜の選択的な水素透過性能を利用して水素を含んだ混合ガスから水素成分のみを精製回収する目的で供される装置である。パラジウム拡散器は一般産業界においては水素ガスに含まれる微量不純物を除去し、水素を精製する目的で使用されている。重水素とトリチウムを燃料とする核融合炉の燃料循環システムにおいてもパラジウム膜が有する選択的水素透過性能に着目し、核融合炉から排気される混合ガスから不純物を取り除き、水素同位体ガスを精製・回収するプロセスへの適用を目指した研究開発が進められている<sup>1)</sup>。核融合炉燃料プラントで取り扱う機器は放射性物質取り扱いに対する長期信頼性の確保が必要条件となるが、金属膜であるパラジウム拡散器はこれまでの研究開発を通じて十分な信頼性の実証がなされているといえる<sup>2)</sup>。よってパラジウム拡散器に対する現在の研究開発の焦点は核融合炉燃料循環システムへの適用に際して、核融合炉燃料プラントの特徴から導かれる幾つかの核融合固有の論点を考慮した設計のベースとなる知見を取得・整理し、スケールアップに対する方法論を明確にすることである。

ここで一般産業界における見られない核融合炉燃料プラントの特徴から導かれる幾つかの核融合固有の論点とは次の4項目に分類される。第一に通常一般産業界で考慮されない水素同位体による透過特性の違いを考慮しなければならないことである。その為、物質移動係数、溶解度係数等の同位体効果に関するデータの取得が求められる。第二は放射性物質を取り扱う際の安全性の確保の為、運転条件に一定の制約が生じることである。具体的には一般産業界では通常、供給ガスを高圧にして水素精製運転を行うのに対して、核融合炉ではトリチウムを取り扱うため、リーク事象発生時のトリチウムの大量漏洩を回避する観点から拡散器は微加圧一減圧下での運転となる。このため供給側を微減圧とし透過側を高真空とすることで駆動力である水素分圧差を確保するのが一般的な方法となる。第三は核融合炉における多様な運転モードから、処理対象となるガス中の水素分圧が多様となることである。水素同位体成分に微量不純物が含まれる場合から不純物に低分圧の水素同位体を含むガスまでを想定する必要がある。第四に核融合炉から排気される混合ガスの複雑な挙動により、拡散器の運転においては供給される混合ガスの流量や水素分圧について経時変化することを前提に設計することが必要である。論点の第一については研究が進展しており、いくつかの報告がなされている<sup>3)</sup>。しかし第二～四の論点を考察し、一般産業界で用いられる定常・高分率水素同位体からの不純物除去を目的としたパラジウム拡散器の設計手法の見直し・変更が必要となる。第二～四

の論点に関する研究と、これら知見を踏まえた設計法はいまだ確立されていないと言える。

ここで第二～四の論点をパラジウム膜を介した水素移動の観点から整理する。水素移動の駆動力である圧力差が一般産業界で使用されているパラジウム拡散器より大幅に小さく、最大でも0.1MPaまでに限定される。それに加えてパラジウム拡散器に供給されるガス流量や水素濃度が変動することから、一般産業界で使用されているパラジウム拡散器の使用条件では相対的に無視小であったガス境膜抵抗の影響が顕在化すると思われる。パラジウム膜を介した水素透過モデルは水素分圧の0.5乗差を勾配力とするSievert則モデルでよく記述される。これは広範囲な温度条件にてパラジウム膜内拡散が律速であるためにSievert則モデルは広く適用できることを示している。しかし、核融合炉燃料プラントへの適用を目的としたパラジウム拡散器による水素透過性能測定試験においてガス境膜抵抗の影響が示唆されるいくつかの報告がなされている。鈴木氏はその著書「パラジウム合金膜を用いた水素同位体分離に関する研究」の中で透過速度については、Sievert則に基づく供給側圧力の0.5乗ではなく、供給側圧力の0.62乗に比例し、拡散係数の圧力依存性があるとしている<sup>4)</sup>。またパラジウム膜の薄膜化による水素フラックス向上の試みに対してSievert則による予測を大きく下回る水素フラックスしか観測されない多くのケースが報告されている。例えばXomeritakisらの報告「CVD synthesis and gas permeation properties of thin palladium/alumina membranes」ではSievert則の評価よりも水素フラックスが桁で小さくなる現象が報告されている<sup>5)</sup>。また特に比較的低温での操作時にパラジウム膜内拡散律速以外への律速段階のシフトが示唆される結果が得られている。Jayaramanらの報告「Synthesis and hydrogen permeation properties of ultrathin palladium-silver alloy membranes」では低温操作時に表面反応に律速段階がシフトするとの実験報告がなされている<sup>6)</sup>。これら現象は一般的なSievert則モデルのみでは説明できない現象であり、素過程に立脚した厳密モデルに基づいた現象理解が不可欠であることを示している。

本報告はガス境膜抵抗を考慮したパラジウム膜を介した水素移動の数値モデルを提案し、水素移動過程におけるガス境膜抵抗の影響を定量的に評価することを目的とする。本報告の構成として、第2章ではガス境膜抵抗を考慮したパラジウム膜を介した水素移動の数値モデルを論じる。第3章ではパラジウム膜を介した水素移動におけるガス境膜抵抗の影響について議論する。第4章では総括として本研究にて明らかしたこと及び今後の課題を示す。

## 2. ガス境膜抵抗を考慮した水素移動過程の数値モデル化

パラジウム拡散器を介した水素同位体の物質移動の模式図を図1に示す。400°C程度に保持されたパラジウム拡散器に水素同位体ガスが供給されると、水素同位体は透過管表面と流体が接触するときに形成されるガス境膜内を分子拡散により移動し、透過管表面で2つの原子に解離する。この解離した水素原子は1つの電子しか持っていないため不安定で、安定になるためにもう一つの電子を求め彷徨するが、安定化のためにパラジウム金属格子の電子を使うことにより、パラジウム膜を横切るような濃度勾配があると水素原子は濃度の高い方から低い方へとパラジウム膜内を拡散する。このようにしてパラジウム膜を透過した水素同位体原子は再び水素同位体原子同士で再結合し安定した分子の状態となり、透過側のガス境膜を分子拡散で移動後、流体として排出される。そのためパラジウム膜による水素同位体の透過現象を素過程に分解した場合、ガス境膜下での物質移動過程・解離溶解過程・再結合過程・表面→バルク移動過程・バルク→表面移動過程・バルク内拡散過程となり、それぞれの過程を数値モデル化しなければならない。本章ではこれら素過程の数値モデル化を考える。

### 2.1 素過程のモデル化

水素と金属に関し、吸着と脱離の平衡論と速度論についてはすでに多くの成書がある。しかしパラジウム膜を介した水素透過のモデル化についてはバルク内拡散律速を仮定した Sievert 則モデルが簡易で広く適用できることから素反応に立脚した数値モデルの構築については遅れていた。素反応レベルからのモデル構築についてはWardらの報告などに限られている<sup>7)</sup>。本報告ではWardらの報告を基に化学工学的見地からガス境膜物質移動抵抗の影響や同位体差の考慮を加えたパラジウム膜を介した水素透過モデルを示す。

#### 2.1.1 ガス境膜下での物質移動フラックス

ガス境膜下での物質移動過程は雰囲気水素濃度とパラジウム表面水素濃度の濃度差を駆動力とする。

$$J = 2 h_g [C - C_s] \quad (1)$$

ここで  $h_g$  はガス境膜物質移動係数である。ガス境膜物質移動係数の逆数はガス

境膜物質移動抵抗である。ガス境膜物質移動係数は理論式や多数の実験式から推算できる。例えば容器内に 1 本の円管状膜を収納した単管型モジュールの層流域では Leveque の式がよく用いられる。

$$Sh = 1.077 \left[ Re \ Sc \left( \frac{d_e}{L} \right) \right]^{\frac{1}{3}} \quad (2)$$

ここで  $Sh$  はシャーウッド数 ( $h_g d_e / D$ )、 $Re$  はレイノルズ数 ( $= d_e u \rho / \mu$ )、 $Sc$  はシュミット数 ( $= \mu / \rho D$ ) であり、 $d_e$  はガス流路の相当直径、 $L$  は膜の長さ方向の距離である。

### 2. 1. 2 解離溶解速度

水素原子基準の解離溶解速度は被覆率に依存する水素の捕獲係数と材料表面への水素分子の打ち込み速度の積として以下で表される。

$$Rate = 2 S(\theta) C_s \sqrt{\frac{R T}{2 \pi M_{H_2}}} \quad (3)$$

ここで  $S(\theta)$  は被覆率  $\theta$  (表面 H/Pd 比) における捕獲係数である。被覆率が 0 に近い場合は一般に Langmuir 則の成立を仮定できる。Langmuir 則では水素分子の解離吸着において 2 つの空サイトを必要として捕獲係数は以下の関係となる。

$$S(\theta) = S_0 (1 - \theta)^2 \quad (4)$$

$S_0$  は被覆率 0 における係数で、清浄な Pd 表面では  $S_0$  は 1.0 である。しかし、この式では 2 つの空サイトの位置について厳密な考慮がなされていない。実際の水素分子の解離吸着では隣り合う 2 つの空サイトを必要とするのが合理的である<sup>8,9)</sup>。隣り合う二つのサイトにつき、両サイトとも空サイトの割合を  $\theta_{00}$ 、両サイトとも吸着済サイトの割合を  $\theta_{AA}$ 、両サイトが空サイトと吸着済サイトの割合を  $\theta_{0A}$  とする。この場合、 $\theta_{00}$ 、 $\theta_{AA}$  と被覆率  $\theta$  (表面 H/Pd 比) の関係は以下の式となる。

$$\theta_{OO} = 1 - \theta - \frac{\theta_{OA}}{2} \quad (5)$$

$$\theta_{AA} = \theta - \frac{\theta_{OA}}{2} \quad (6)$$

また  $\theta_{OO}$ 、 $\theta_{AA}$  と  $\theta_{OA}$  間に平衡が成立すると仮定する。



$$\frac{4\theta_{OO}\theta_{AA}}{{\theta_{OA}}^2} = \exp\left(-\frac{w}{RT}\right) \quad (8)$$

この場合、両サイトとも空サイトの割合  $\theta_{OO}$  は Quasi-chemical 則より以下の式となる。

$$\theta_{OO} = 1 - \theta - \frac{2\theta(1-\theta)}{\sqrt{1 - 4\theta(1-\theta)\left(1 - \exp\left(\frac{-w}{RT}\right)\right)} + 1} \quad (9)$$

また物理吸着した分子が化学吸着するために近接する 2 つの空サイトを目指して表面をホッピングすることを考慮した場合、捕獲係数は以下の関係となる。

$$S(\theta) = \frac{S_0}{1 + K\left(\frac{1}{\theta_{OO}} - 1\right)} \quad (10)$$

ここで  $K$  は吸脱着に依存する定数である。  $K=1$ かつ  $w=0$  の場合、Langmuir 則を仮定した捕獲係数と一致する。

### 2.1.3 再結合速度

再結合速度は近接した 2 つのサイトが両方とも既吸着サイトであるサイトペアの数と速度定数の積で表される。単位表面あたりの Pd サイト数を  $N_s$  とし、あるサイトを基準とした場合の最近接サイトの数を  $z$  (=4) 、水素原子の表面からの脱着におけるエネルギーを  $E_d$  とすると再結合速度は以下の式で表される。

$$\text{Rate} = 2 \frac{k_0 \exp\left(-\frac{2E_d}{RT}\right) N_s}{2} \frac{z N_s \theta}{2} F(\theta) \quad (11)$$

$$F(\theta) = 1 - \frac{2(1-\theta)}{\sqrt{1 - 4\theta(1-\theta)\left(1 - \exp\left(\frac{-W}{RT}\right)\right)}} + 1 \quad (12)$$

### 2.1.4 表面→バルク移動速度

表面→バルク移動速度は Pd 表面における水素原子濃度  $N_s \theta$  と表面に近接するバルクの H/Pd 比を  $X_s$  とした場合の単位表面あたりの空サイト濃度  $N_b(1-X_s)$  の積に比例する。比例定数の温度依存性を考慮した場合、以下の式で表される。

$$\text{Rate} = v_0 \exp\left(-\frac{E_A}{RT}\right) N_s \theta N_b (1-X_s) \quad (13)$$

### 2.1.5 バルク→表面移動速度

バルク→表面移動速度は Pd 表面における単位表面あたりの空サイト濃度  $N_s(1-\theta)$  と表面に近接するバルクの H/Pd 比を  $X_s$  とした場合の水素原子濃度  $N_b X_s$  の積に比例する。比例定数の温度依存性を考慮した場合、以下の式で表される。

$$\text{Rate} = \beta_0 \exp\left(-\frac{E_B}{RT}\right) N_s (1-\theta) N_b X_s \quad (14)$$

### 2.1.6 バルク内拡散フラックス

バルク内拡散フラックスはバルク両表面の水素濃度差を駆動力とするフィック

の法則に従うとし、以下の式で表される。

$$J = D_0 \exp\left(-\frac{E_{\text{diff}}}{RT}\right) \frac{N_b(X_{s1} - X_{s2})}{\Delta z} \quad (15)$$

## 2.2 各移動機構における水素フラックスの表現式

以上の素過程のモデル化に基づき、パラジウム膜を介した水素透過における移動機構は図2に示すとおり以下の7つの移動機構の直列系に展開することができる。

### 2.2.1 供給側ガス境膜物質移動フラックス

$$J_1 = 2 h_{g1} (C_1 - C_{S1}) \quad (16)$$

### 2.2.2 供給側Pd表面における物質移動フラックス

供給側Pd表面における物質移動フラックスは解離吸着と再結合脱着の差として以下の式で表される。

$$J_2 = 2 S(\theta_1) C_{S1} \sqrt{\frac{RT}{2\pi M_{H_2}}} - \frac{k_0 \exp\left(-\frac{2E_d}{RT}\right)}{2} \frac{N_s z N_s \theta_1}{2} F(\theta_1) \quad (17)$$

### 2.2.3 供給側Pd表面・バルク界面における物質移動フラックス

供給側Pd表面における物質移動フラックスは表面→バルク移動速度とバルク→表面移動速度の差として以下の式で表される。

$$J_3 = v_0 \exp\left(-\frac{E_A}{RT}\right) N_s \theta_1 N_b (1 - X_{s1}) - \beta_0 \exp\left(-\frac{E_B}{RT}\right) N_s (1 - \theta_1) N_b X_{s1} \quad (18)$$

### 2.2.4 バルク内拡散フラックス

$$J_4 = D_0 \exp\left(-\frac{E_{\text{diff}}}{RT}\right) \frac{N_b(X_{s1} - X_{s2})}{\Delta z} \quad (19)$$

### 2.2.5 透過側 Pd 表面・バルク界面における物質移動フラックス

透過側 Pd 表面における物質移動フラックスはバルク→表面移動速度と表面→バルク移動速度の差として以下の式で表される。

$$J_5 = \beta_0 \exp\left(-\frac{E_B}{RT}\right) N_s (1 - \theta_2) N_b X_{s2} - \nu_0 \exp\left(-\frac{E_A}{RT}\right) N_s \theta_2 N_b (1 - X_{s2}) \quad (20)$$

### 2.2.6 透過側 Pd 表面における物質移動フラックス

透過側 Pd 表面における物質移動フラックスは再結合脱着と解離吸着の差として以下の式で表される。

$$J_6 = \frac{k_0 \exp\left(-\frac{2E_d}{RT}\right) N_s z N_s \theta_2}{2} F(\theta_2) - 2 S(\theta_2) C_{s2} \sqrt{\frac{RT}{2\pi M_{H_2}}} \quad (21)$$

### 2.2.7 透過側ガス境膜物質移動フラックス

$$J_7 = 2 h_{g2} (C_{s2} - C_2) \quad (22)$$

## 2.3 定常状態におけるフラックス計算

定常状態においては  $J_1 \sim J_7$  の各フラックスは等しくなるので以下の式が成立する。

$$J_1 = J_2 = J_3 = J_4 = J_5 = J_6 = J_7 \quad (23)$$

定常状態におけるモデル計算では先ず水素フラックス  $J$  の値を仮定する。供給

側圧力（水素濃度） $P_1$  ( $C_1$ ) は設定値で既知であるので式(16)から  $C_{s1}$  が求まる。以降式(17)により  $J_2$  から  $\theta_1$ 、式(18)により  $J_3$  から  $X_{s1}$ 、式(19)により  $J_4$  から  $X_{s2}$ 、式(20)により  $J_5$  から  $\theta_2$ 、式(21)により  $J_6$  から  $C_{s2}$ 、式(22)により  $J_7$  から  $C_2$  と順番に求まる。最後に求まった  $C_2$  が設定値と異なる場合、新たな水素フラックス  $J$  の値を仮定し直し、 $C_2$  が設定値と一致するまで計算を続けることで最終的に解を得ることができる。平衡状態においては、解離溶解速度と再結合速度が等しく、また表面→バルク移動速度とバルク→表面移動速度が等しいので理想ガスを仮定した場合、以下の式が成立する。

$$\frac{1-X}{X}P^{0.5} = \frac{\beta_0 k_0^{0.5} N_s (2\pi MRT)^{0.25}}{v_0 S_0^{0.5}} \left( \frac{S_0 F(\theta) (1-\theta)^2}{S(\theta) \theta} \right)^{0.5} \exp \left( \frac{E_A - E_B - E_d}{RT} \right) \quad (24)$$

また熱力学の観点から水素分子解離におけるギブスの自由エネルギーとして以下の式が成立する。



$$\Delta \bar{G}_H = RT \ln P_{H2}^{0.5} = \Delta \bar{H}_H^0 - T \Delta \bar{S}_H^0 + RT \ln \frac{X}{1-X} + 2XW_{HH} \quad (26)$$

よって以下の式が導かれる。

$$RT \ln \left( P_{H2}^{0.5} \frac{1-X}{X} \right) = \Delta \bar{H}_H^0 - T \Delta \bar{S}_H^0 + 2XW_{HH} \quad (27)$$

一般にパラジウム膜を介した水素透過では  $X \ll 1$  が成立し、固層における H/H 相互作用項である  $W_{HH}$  は無視小となる。また Sievert 定数  $K_s$  は  $X \ll 1$  が成立する場合、以下の式で定義される。

$$K_s = \frac{P_{H2}^{0.5}}{X} \quad (28)$$

よって Sievert 定数  $K_s$  は以下の関係となることが導かれる。

$$K_s = \exp \left( \frac{\Delta \bar{H}_H^0}{RT} - \frac{\Delta \bar{S}_H^0}{R} \right) \quad (29)$$

Holleck が導出した  $\Delta \bar{H}_H^0 = 2000 \text{ cal/mol}$ , 及び  $\Delta \bar{S}_H^0 = 11.65 \text{ cal/mol/K}$ <sup>10)</sup> から  $K_s$  [atm<sup>0.5</sup>] は

$$K_s = 351.6 \exp(-1007/T) \quad (30)$$

となる。この関係を式(24)に戻すことにより  $\beta_0 / \nu_0$  値につき以下の関係式が導出できる。

$$\frac{\beta_0}{\nu_0} = \frac{10.154}{T^{0.25}} \left( \frac{S_0 F(\theta) (1-\theta)^2}{S(\theta) \theta} \right)^{0.5} \quad (31)$$

よって  $\nu_0$  は  $\beta_0$  と  $\theta$  から式(31)により求めることができる。

## 2.4 計算に用いる物性値の評価

表1に計算に必要な水素同位体関連の物性値とその出典を示す。出典を明示していないデータは参考文献 7)による。各活性化エネルギーの意味については図3を参照されたい。本報では物性値が整っているHのデータに基づき計算を実施した。パラジウム膜のNb、Nsは参考文献 7)により  $0.113 \text{ molPd/cm}^3$ 、 $2.8 \times 10^{-9} \text{ molPd/cm}^2$  を用いた。また式(8)–(10)の被覆率及び捕獲係数に係るwとKの値については実験による評価データが極めて限られているのが実情である。本報では Behmらの報告に基づく  $w=0.5 \text{ kcal/mol}$ 、 $K=0.05$  を計算に使用した<sup>8)</sup>。なお、 $w=0$ 、 $K=1$  と設定することで Langmuir 則を仮定した捕獲係数を与えることができる。次の3章にて報告する評価結果は Quasi-chemical 則を仮定した捕獲係数と Langmuir 則を仮定した捕獲係数間で有意な差を生じないことを確認している。出典値に幅がある数値については  $E_d : 10 \text{ kcal/molH}$ 、 $E_a : 13.3 \text{ kcal/molH}$ 、 $\Delta E_{ad} : 24.0 \text{ kcal/molH}$  を用いた。

表1 計算に用いた物性値とその出典

記号	単位	H	D	T
$E_d$	kcal/molH	10~12	11.4	no data
$E_A$	kcal/molH	13.3~15.3		
$E_B$	kcal/molH	5.21	4.75	6.36
$E_{diff}$	kcal/molH	5.21 <sup>3)</sup>	4.75 <sup>3)</sup>	6.36 <sup>3)</sup>
			5.37 <sup>11)</sup>	5.56 <sup>11)</sup>
$\Delta E_{ad}$	kcal/molH <sub>2</sub>	21.0~24.4 <sup>12)</sup> 24.4 (Pd110), 20.8 (111) <sup>3)</sup>	22.8 (Pd110) <sup>13)</sup>	no data
$E_{sol}$	kcal/molH	2.3 (Pd100) <sup>14)</sup>	no data	no data
$k_0$	cm <sup>2</sup> /molH/s	4.8 × 10 <sup>21</sup>	no data	no data
$\beta_0$	cm <sup>2</sup> /molH/s	6.8 × 10 <sup>13</sup>	no data	no data
$D_0$	cm <sup>2</sup> /s	2.9 × 10 <sup>-3</sup> <sup>3)</sup> (230~760K)	1.7 × 10 <sup>-3</sup> <sup>3)</sup> (218~333K)	10.5 × 10 <sup>-3</sup> <sup>3)</sup> (290~323K)
$\nu_0$	cm <sup>2</sup> /molH/s	$\beta_0$ との相関式(31)より計算	→	→

### 3. パラジウム膜を介した水素移動におけるガス境膜抵抗の影響

#### 3.1 各移動機構の律速を仮定した場合の水素フラックスの温度依存性評価

本節では各移動機構の律速を仮定した場合の水素フラックスの温度依存性を評価し、律速となる移動機構の同定を行う。本節では供給側・透過側両ガス境膜抵抗の影響がない条件で評価を実施する。先の2.2節に示した各移動機構の律速を仮定した場合の水素フラックスの温度依存性を $P_1=1\text{ atm}$ 、 $P_2=0\text{ atm}$ 、 $\Delta z=1\mu\text{ m}$ 、 $E_d=10\text{ kcal/mol}$ の条件で計算した結果を図4に示す。表面吸着律速を仮定した場合の水素フラックスの計算式は $P_1=1$  ( $C_1=C_{s1}$ )、 $\theta_1=0$ とした式(17)にて計算できる。同様に表面→バルク移動律速では $\theta_1=1$ 、 $X_{s1}=0$ とした式(18)、拡散律速では $X_{s1}=1$ 、 $X_{s2}=0$ とした式(19)、バルク→表面移動律速では $X_{s2}=1$ 、 $\theta_2=0$ とした式(20)、表面脱離律速では $\theta_2=1$ 、 $P_2=0$  ( $C_{s2}=C_2=0$ )とした式(21)を用いた。水素フラックスが最も小さくなるのが律速となる移動機構であり、530K以上では拡散律速、530K以下では透過側表面脱離律速となることが示唆された。この結果はパラジウム膜を扱う高温領域では水素フラックスがSievert則モデルに従うのに対して、「低温では表面反応律速」に移行するという実験報告とも整合する。

次に各移動機構をそれぞれ律速と仮定した場合の水素フラックスの供給側水素分圧( $P_1$ )依存性を運転温度673K、 $P_2=0\text{ atm}$ 、 $\Delta z=1\mu\text{ m}$ 、 $E_d=10\text{ kcal/mol}$ の条件で計算した結果を図5に示す。供給側水素分圧の変化により、拡散律速及び透過側表面脱離律速の水素フラックスに変化が生じるが、運転温度673Kでは実用範囲の供給側水素分圧に対しては拡散律速となることが示唆された。この結果は幅広い供給側水素分圧範囲で水素フラックスはSievert則モデルで評価できるという経験的知見と整合する。

膜厚( $\Delta z$ )を変化させた場合の温度と水素フラックスの関係を、 $P_1=1\text{ atm}$ 、 $P_2=0\text{ atm}$ 、 $E_d=10\text{ kcal/mol}$ の条件で計算した結果を図6に示す。膜厚 $\Delta z=1\mu\text{ m}$ 、 $10\mu\text{ m}$ 、 $100\mu\text{ m}$ の3ケースの計算結果を示した。拡散律速の範囲では膜厚と水素フラックスの大きさは反比例し、膜厚を薄くすることで水素フラックスの増大が見込めることが示唆された。先に示したとおり、通常操作温度領域では拡散律速であるが、温度が低下すると律速段階が透過側表面脱離律速に変化する。透過側表面脱離には膜厚は影響しないのに対して、バルク内拡散は膜厚に影響されるため、膜厚が薄くなると拡散律速→透過側表面脱離律速に変化する温度は高温にシフトすることが示唆された。

次に拡散律速の場合の水素フラックスの透過側水素分圧( $P_2$ )依存性を運

転温度673K、 $P_1=1\text{atm}$ 、 $E_d=10\text{kcal/mol}$ の条件で計算した結果を図7に示す。膜厚の違いを明らかにするため、 $\Delta z=1\mu\text{m}$ 、 $\Delta z=10\mu\text{m}$ の2ケースの計算結果を示した。一般産業界では通常、供給ガスを高圧にしてパラジウム拡散器による水素精製運転を行うのに対し、核融合炉プラントでのパラジウム拡散器の使用では放射性物質トリチウムの漏洩回避の観点から拡散器は供給側微減圧下、透過側高真空下での運転が基本である。供給側水素分圧( $P_1$ )が1atmの場合、膜厚にかかわらず透過側真空度を $1 \times 10^{-3}\text{atm}$ 以下に保つことで最大の水素フラックスが得られることが示唆された。透過側真空度 $1 \times 10^{-3}\text{atm}$ で得られる水素フラックスを1とすると透過側真空度0.01atmで得られる水素フラックスは0.91に、0.1atmでは0.69まで低下する。透過側真空度は水素フラックスに極めて大きく影響することが示唆された。図7に示した結果から、ある一定の水素フラックスを得る方法として厚い膜厚のパラジウム膜を用いて透過側圧力を高真空にする選択肢以外に、薄い膜厚のパラジウム膜を用いて透過側圧力の真空度を下げるという方法があることが示唆される。透過側の高真空度の必要性の回避は真空排気設備の簡素化に繋がりシステムのコスト評価上有利となりうることは留意すべきである。なお、後に議論するとおり膜厚を薄くした場合にはガス境膜抵抗が水素フラックスに与える影響が相対的に大きくなる点には十分な配慮が必要である。

### 3.2 ガス境膜抵抗が水素フラックスに及ぼす影響

本節ではガス境膜抵抗が水素フラックスに及ぼす影響につき精査する。まず、供給側ガス境膜抵抗値が水素フラックスに及ぼす影響について、運転温度673K、 $P_1=1\text{atm}$ 、 $P_2=0\text{atm}$ 、 $E_d=10\text{kcal/mol}$ で計算した結果を図8に示す。本節に示す計算では透過側ガス境膜抵抗は零と設定した。膜厚が薄い程、供給側ガス境膜抵抗の影響を受けやすく、顕著に水素フラックスが低下することが示唆された。現在、日本原子力研究開発機構が核融合燃料循環システム関連研究用途に使用しているパラジウム膜の膜厚は $80\mu\text{m}$ であり、計算結果が示すとおり、実験結果においてガス境膜抵抗の影響は顕在化していない。今後、実規模燃料循環システム設計におけるパラジウム拡散器の小型化等を目的に水素フラックスの増大が見込めるパラジウム膜の薄膜化を検討する場合はガス境膜抵抗による水素フラックスの低下を十分に考慮する必要があることを図8は示唆している。

ガス境膜抵抗が水素フラックスに及ぼす影響について、供給側ガス境膜抵抗を $20\text{s/m}$ に設定した場合の温度と水素フラックスの関係を図9に示す。計算条件は $P_1=1\text{atm}$ 、 $P_2=0\text{atm}$ 、 $E_d=10\text{kcal/mol}$ とした。膜厚 $\Delta z=1\mu\text{m}$ 、 $10\mu\text{m}$ 、 $100\mu\text{m}$ の3ケースの計算結果を示した。ガス境膜物質移動係数は実際に使用するパ

ラジウム管の径や長さ、内部を流れる水素の流速に合わせて式（2）のLevequeの式で導出できる。一例としてSievert則に基づく供給側圧力の0.5乗ではなく、供給側圧力の0.62乗に比例するとした鈴木らの実験装置では供給側外径8mm、有効長さ120mmであり、水素流速は0.3m/sとしている<sup>5)</sup>。パラジウム膜運転領域における水素の拡散係数を $4 \times 10^{-4} \text{m}^2/\text{s}$ と見積もるとレイノルズ数から評価する流れは層流であり、供給側ガス境膜物質移動係数はおよそ0.04m/sとなる。Sievert則に基づく供給側圧力の0.5乗以外の依存性を報告する論文内のデータから計算されるガス境膜物質移動係数の中央値は0.05m/s程度と評価できるので、本計算では供給側ガス境膜抵抗としてガス境膜物質移動係数の代表値0.05m/sの逆数である20s/mを使用した<sup>7)</sup>。図9において線表示はガス境膜抵抗を考慮しない場合の拡散律速、表面脱離律速の評価線、ポイント表示はガス境膜抵抗を考慮した場合の水素フラックスの評価値である。図から供給側ガス境膜抵抗は拡散律速時の水素フラックスを大幅に低下させる。特に膜厚が薄い場合は供給側ガス境膜抵抗を考慮しない場合の評価線から大きく解離し、特に高温部で顕著に水素フラックスが低下することが示唆された。

次に供給側ガス境膜抵抗を考慮した場合の水素フラックスの供給側水素分圧依存性を運転温度673K、供給側ガス境膜抵抗を20s/m、 $P_2=0\text{atm}$ 、 $E_d=10\text{kcal/mol}$ の条件で計算した結果を図10に示す。膜厚 $\Delta z=1\mu\text{m}$ 、 $10\mu\text{m}$ 、 $100\mu\text{m}$ の3ケースの計算結果を示した。ガス境膜の影響は供給側水素分圧が小さい場合に特に顕著に水素フラックスを低下させることが示唆された。特に膜厚が薄い場合は供給側ガス境膜抵抗を考慮しない場合の評価線から大きく解離する。供給側ガス境膜抵抗を考慮した場合の水素フラックスはSievert則に基づく供給側圧力の0.5乗ではなく、供給側圧力の0.5-1.0乗に比例する。膜厚 $\Delta z=100\mu\text{m}$ では水素フラックスの供給側水素分圧依存性は0.59乗、膜厚 $\Delta z=10\mu\text{m}$ では0.85乗、膜厚 $\Delta z=1\mu\text{m}$ では0.99乗と薄膜となるに従い1.0乗に近づくように供給側水素分圧依存性は変化した。Sievert則に基づく供給側圧力の0.5乗以外の圧力依存性の報告例は本結果から推測するにガス境膜の影響が主因であると思われる。本結果から水素フラックス向上のために薄いパラジウム膜を採用する場合は、特に供給側水素分圧が小さい条件においてガス境膜の影響による水素フラックスの低下に留意しなければならない。

#### 4. 結論

核融合燃料循環システムにおいて水素同位体の高純度精製を担うパラジウム拡散器において、パラジウム膜を介した水素移動について素反応に基づく数値計算コードを作成し、水素移動過程におけるガス境膜抵抗の影響の定量的評価から以下の結果を得た。

- 1) パラジウム膜を介した水素透過では主に拡散律速であるが、操作温度を低下させると透過側表面脱離律速に律速段階は移行する。
- 2) 核融合炉プラントでのパラジウム拡散器の使用では放射性物質トリチウムの漏洩回避の観点から拡散器は供給側微減圧下、透過側高真空下での運転が基本である。この場合透過側真空度は水素フラックスに極めて大きく影響する。
- 3) ガス境膜の存在は拡散律速時の水素フラックスを大幅に低下させる。特に膜厚が $10 \mu\text{m}$ 以下になる場合は拡散抵抗の低下に対して相対的にガス境膜抵抗の影響が無視できなくなり、顕著に水素フラックスが低下する。 $10 \mu\text{m}$ 以下の膜圧を使用する場合は境膜抵抗の影響を考慮した設計が必要である。
- 4) 供給側の水素分圧が小さいほどガス境膜の影響を受けて水素フラックスは顕著に低下する。ガス境膜の影響下では水素フラックスの圧力依存性は0.5～1.0乗を示し、膜厚が薄いほど水素フラックスの圧力依存性は1.0乗に近い値を示す。水素フラックス向上のために薄いパラジウム膜を採用する場合は、特に供給側水素分圧が小さい条件においてガス境膜の影響による水素フラックスの低下に留意しなければならない。

今後、実規模燃料循環システム設計におけるパラジウム拡散器の小型化等を目的に水素フラックスの増大が見込めるパラジウム膜の薄膜化を検討する場合は、本計算プログラムを援用して水素フラックスに対するガス境膜抵抗の影響を十分に考慮する必要がある。

## 参考文献

- 1) M. Nishikawa, T. Shiraishi, Y. Kawamura, T. Takeishi: “Permeation rate of hydrogen isotopes through palladium-silver alloy”, *J. Nucl. Sci. Technol.*, 33, p.774 (1996).
- 2) S. Konishi, H. Yoshida, H. Ohno, Y. Naruse, D.O. Coffin, C.R. Walther, K.E. Binning: “Experiments on a ceramic electrolysis cell and a palladium diffuser at the Tritium Systems Test Assembly”, *Fusion Technol.*, 8, p.2042 (1985).
- 3) 深井有, 田中一英, 内田裕久: “水素と金属 次世代への材料学”, 内田老鶴圃, 東京, p.115 (1998).
- 4) 鈴木康夫: “パラジウム合金膜を用いた水素同位体分離に関する研究”, 東京大学博士論文, 東京 (1994).
- 5) G. Xomeritakis, Y. S. Lin: “CVD synthesis and gas permeation properties of thin palladium/alumina membranes”, *AICHE Journal*, 44, p.174 (1998).
- 6) V. Jayaraman, Y. S. Lin: “Synthesis and hydrogen permeation properties of ultrathin palladium-silver alloy membranes”, *J. Memb. Sci.*, 104, p.251 (1995).
- 7) T. L. Ward, T. Dao: “Model of hydrogen permeation behavior in palladium membranes”, *J. Memb. Sci.*, 153, p.211 (1999).
- 8) R.J. Behm, K. Christmann, G. Ertl: “ Adsorption of hydrogen on Pd (1 0 0)”, *Surf. Sci.* 99, p.320 (1980).
- 9) D.A. King, M.G. Wells: “ Reaction mechanism in chemisorption kinetics: nitrogen on the {1 0 0} plane of tungsten”, *Proc. R. Soc. London, Ser. A* 339, p.245 (1974).
- 10) G.L. Holleck: “Diffusion and solubility of hydrogen in palladium and palladium±silver alloys”, *J. Phys. Chem.* 74, p.503 (1970).
- 11) 深井有, 田中一英, 内田裕久: “水素と金属 次世代への材料学”, 内田老鶴圃, 東京, p.121 (1998).
- 12) K.Christmann: “Interaction of hydrogen with solid surfaces”, *Surf. Sci. Rep.*, 9, p.1 (1988).
- 13) H. Conrad, G. Ertl, E.E. Latta: “Adsorption of hydrogen on palladium single crystal surfaces”, *Surface Science*, 41, p.435, (1974).
- 14) G. Alefeld, J. Volkl(Eds.):” Hydrogen in metal, vols I and II”, Springer, Berlin (1987).

## 記号表

C	ガス相における水素濃度 [mol/cm <sup>3</sup> ]
C <sub>1</sub>	供給側（高圧側）ガス相における水素濃度 [mol/cm <sup>3</sup> ]
C <sub>2</sub>	透過側（低圧側）ガス相における水素濃度 [mol/cm <sup>3</sup> ]
C <sub>s</sub>	表面近傍におけるガス相の水素濃度 [mol/cm <sup>3</sup> ]
C <sub>s1</sub>	供給側（高圧側）表面近傍におけるガス相の水素濃度 [mol/cm <sup>3</sup> ]
C <sub>s2</sub>	透過側（低圧側）表面近傍におけるガス相の水素濃度 [mol/cm <sup>3</sup> ]
d <sub>e</sub>	ガス流路の相当直径
D	Pd 内を拡散する水素原子の拡散係数 [cm <sup>2</sup> /s]
D <sub>0</sub>	拡散係数 D の頻度因子 [cm <sup>2</sup> /s]
E <sub>d</sub>	水素原子脱離の活性化エネルギー [kcal/molH]
E <sub>A</sub>	Pd 表面→バルク界面移動における水素原子の活性化エネルギー [kcal/molH]
E <sub>B</sub>	バルク界面→Pd 表面移動における水素原子の活性化エネルギー [kcal/molH]
E <sub>diff</sub>	Pd 内を拡散する水素原子の活性化エネルギー [kcal/molH]
ΔE <sub>ad</sub>	吸着熱 [kcal/molH <sub>2</sub> ]
ΔE <sub>ab</sub>	解離熱 [kcal/molH <sub>2</sub> ]
F(θ)	被覆ファクター
ΔG <sub>H</sub>	水素分子解離におけるギブスの相対部分モル自由エネルギー [kcal/molH]
h <sub>g</sub>	ガス境膜物質移動係数 [cm/s] [m/s] (逆数がガス境膜抵抗)
h <sub>g1</sub>	供給側（高圧側）ガス境膜物質移動係数 [cm/s] [m/s]
h <sub>g2</sub>	透過側（低圧側）ガス境膜物質移動係数 [cm/s] [m/s]
ΔH <sub>H</sub>	水素分子解離における相対部分モルエンタルピー [kcal/molH]
J	水素原子フラックス [molH/cm <sup>2</sup> /s]
k <sub>0</sub>	水素原子脱離における頻度因子 [cm <sup>2</sup> /molH/s]
K <sub>s</sub>	Sievert 定数 [atm <sup>0.5</sup> ]
L	膜の長さ方向距離
M <sub>H2</sub>	水素分子のモル重量
N <sub>b</sub>	バルク部分におけるパラジウム原子密度 [mol Pd/cm <sup>3</sup> ]
N <sub>s</sub>	表面部分におけるパラジウム原子密度 [mol Pd/cm <sup>2</sup> ]
P <sub>1</sub>	供給側（高圧側）水素分子分压 [atm]
P <sub>2</sub>	透過側（低圧側）水素分子分压 [atm]
R	ガス定数
Re	レイノルズ数
S	捕獲係数
S <sub>0</sub>	被覆率 0 における捕獲係数 (清浄な Pd 表面では S <sub>0</sub> は 1.0)
Sh	シャーウッド数
ΔS <sub>H</sub>	水素分子解離における相対部分モルエントロピー [kcal/molH]

T	温度 [K]
u	ガス流速
$W_{\text{HH}}^{\text{Pd}}$	Pd 内における水素原子-水素原子間引力相互作用エネルギーの 1/2 値 [kcal/molH]
w	表面における水素原子間の相互作用エネルギー [kcal/molH]
X	バルク部分の H/Pd 比
Xs	表面近傍バルク部分の H/Pd 比
$Xs_1$	供給側（高圧側）表面近傍バルク部分の H/Pd 比
$Xs_2$	透過側（低圧側）表面近傍バルク部分の H/Pd 比
z	あるサイトを基準とした場合の最近接サイトの数
$\Delta z$	膜厚
$\beta_d$	バルク界面→Pd 表面移動における水素原子の移動速度 [cm <sup>3</sup> /molH/s]
$\beta_0$	$\beta_d$ の頻度因子 [cm <sup>3</sup> /molH/s]
$\rho$	流体密度
$\mu$	流体粘度
$v_d$	Pd 表面移動→バルク界面における水素原子の移動速度 [cm <sup>3</sup> /molH/s]
$v_0$	$v_d$ の頻度因子 [cm <sup>3</sup> /molH/s]
$\theta$	被覆率（表面 H/Pd 比）
$\theta_1$	供給側（高圧側）被覆率（表面 H/Pd 比）
$\theta_2$	透過側（低圧側）被覆率（表面 H/Pd 比）
$\theta_{00}$	両サイトとも空サイトの割合
$\theta_{AA}$	両サイトとも吸着済サイトの割合
$\theta_{OA}$	両サイトが空サイトと吸着済サイトの割合

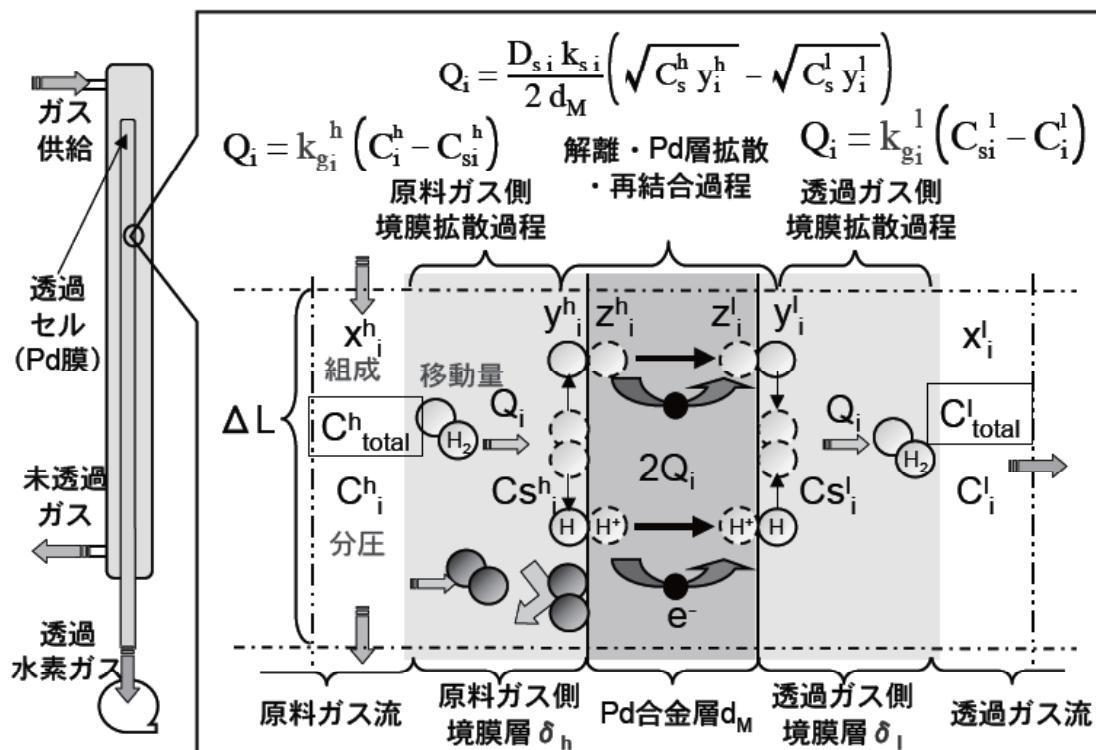


図1 パラジウム拡散器を介した水素同位体の物質移動の模式図

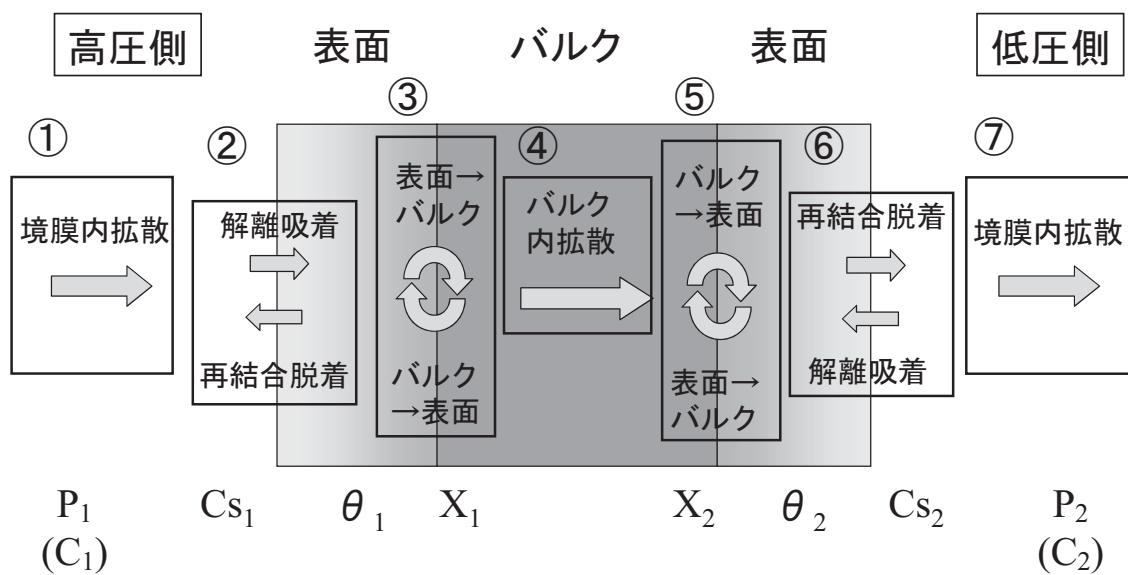


図2 パラジウム膜を介した水素透過における移動機構の整理

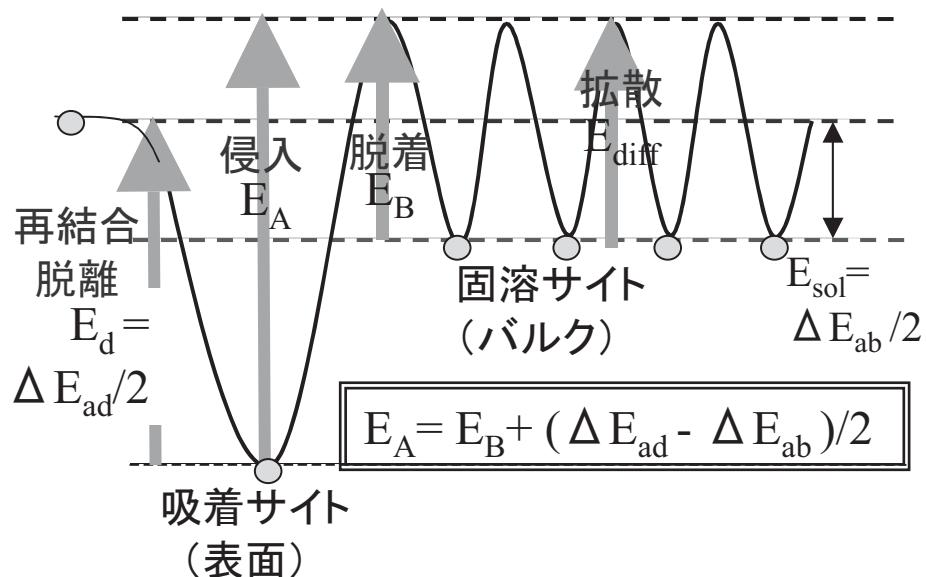


図3 活性化エネルギー

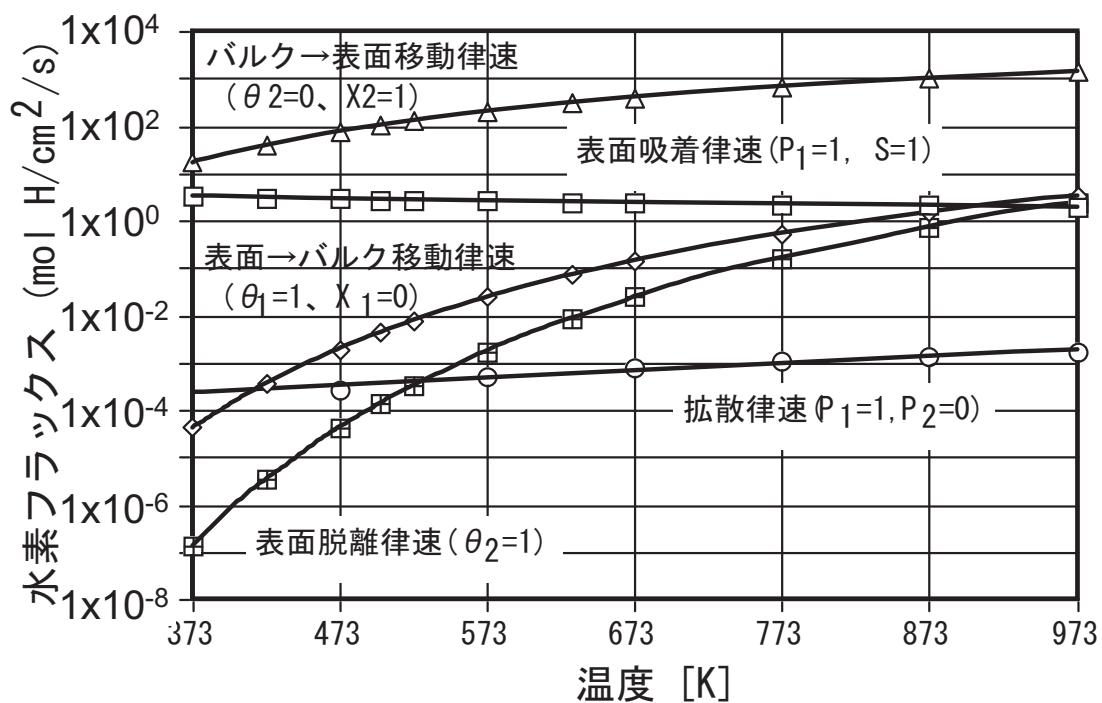


図4 各移動機構の律速を仮定した場合の水素フラックスの温度依存性

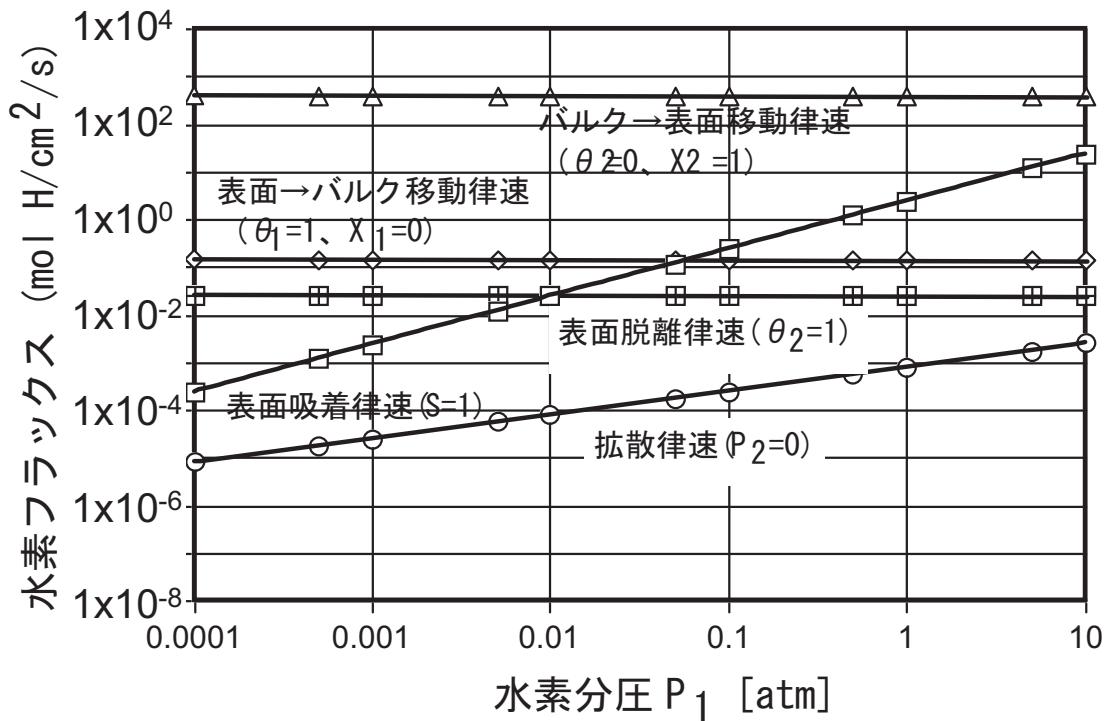


図 5 各移動機構の律速を仮定した場合の水素フラックス供給側水素分圧依存性

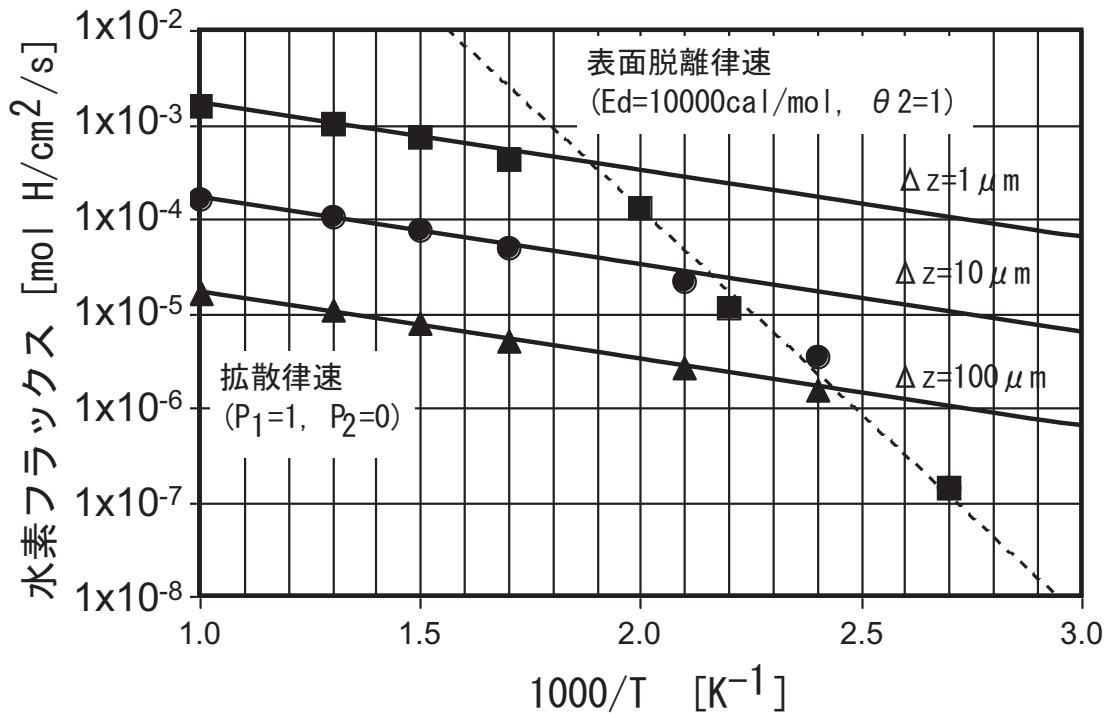


図 6 膜厚と水素フラックスの関係（境膜抵抗を考慮しない場合）

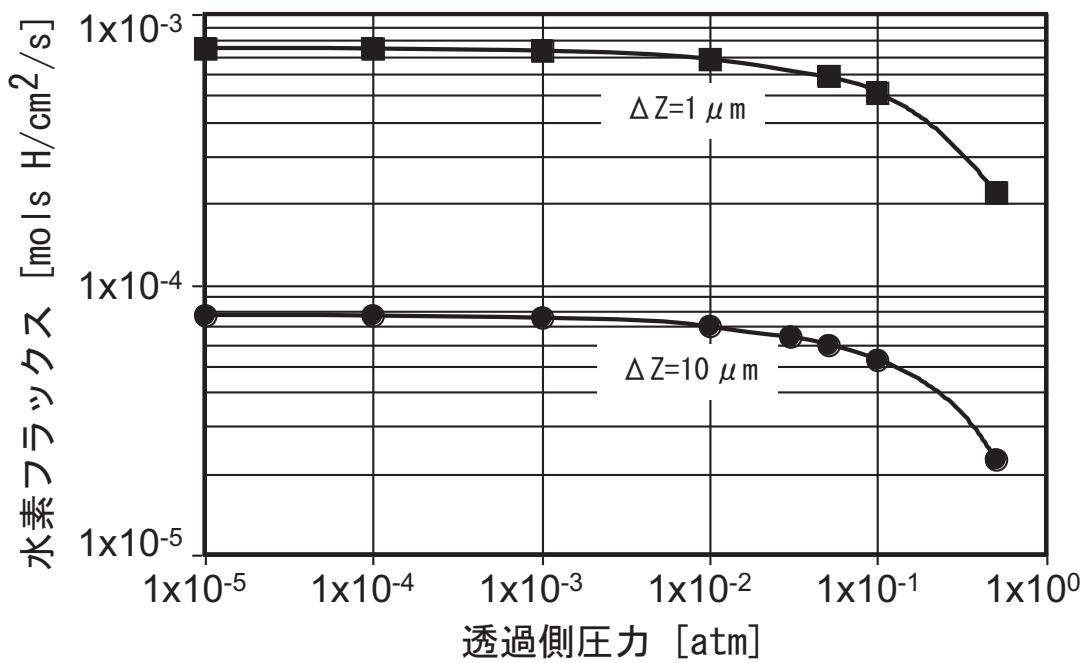


図 7 拡散律速の場合の水素フラックスの透過側水素分圧依存性  
(境膜抵抗を考慮しない場合)

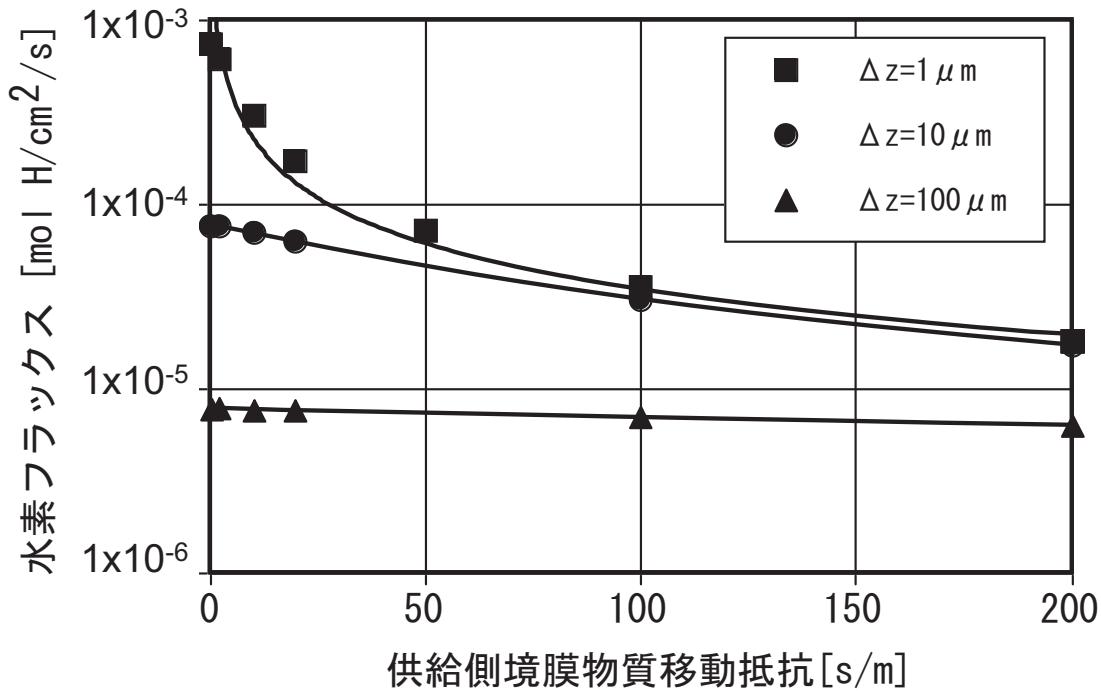


図 8 ガス境膜抵抗が水素フラックスに及ぼす影響

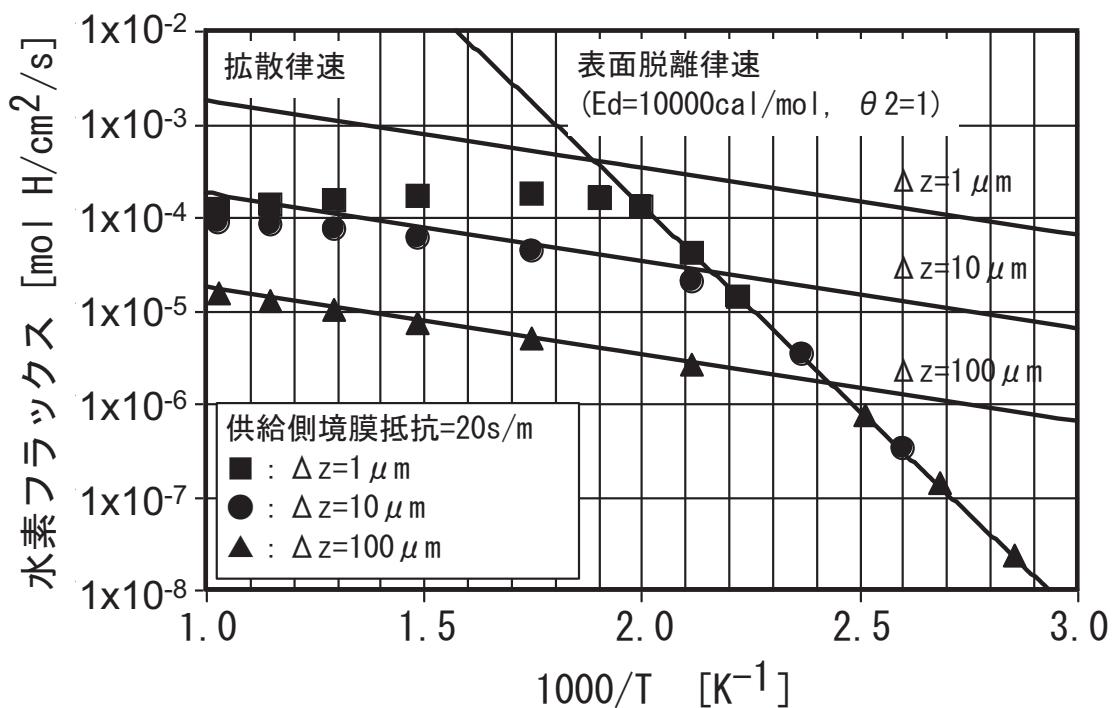


図 9 膜厚と水素フラックスの関係（境膜抵抗を考慮した場合）

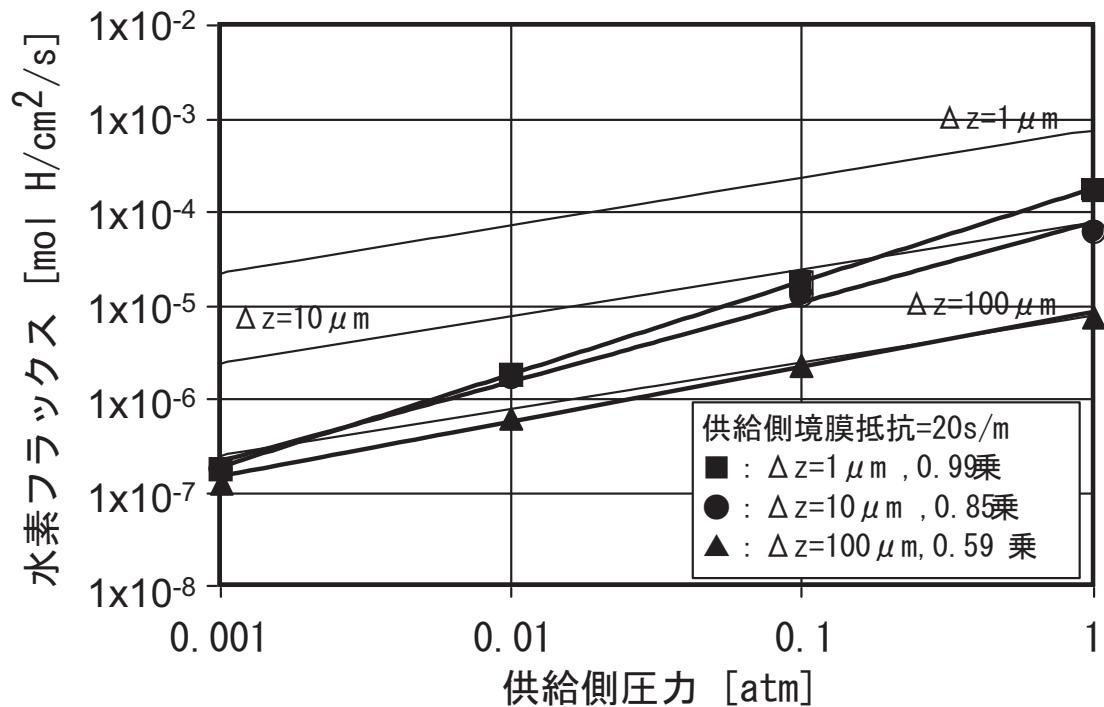


図 10 供給側水素圧と水素フラックスの関係（境膜抵抗を考慮した場合）

This is a blank page.

# 国際単位系 (SI)

表1. SI 基本単位

基本量	SI 基本単位	
	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd

表2. 基本単位を用いて表されるSI組立単位の例

組立量	SI 基本単位	
	名称	記号
面積	平方メートル	m <sup>2</sup>
体積	立方メートル	m <sup>3</sup>
速度	メートル毎秒	m/s
加速度	メートル毎秒毎秒	m/s <sup>2</sup>
波数	毎メートル	m <sup>-1</sup>
密度、質量密度	キログラム毎立方メートル	kg/m <sup>3</sup>
面積密度	キログラム毎平方メートル	kg/m <sup>2</sup>
比體積	立方メートル毎キログラム	m <sup>3</sup> /kg
電流密度	アンペア毎平方メートル	A/m <sup>2</sup>
磁界の強さ	アンペア毎メートル	A/m
量濃度 <sup>(a)</sup> 、濃度	モル毎立方メートル	mol/m <sup>3</sup>
質量濃度	キログラム毎立方メートル	kg/m <sup>3</sup>
輝度	カンデラ毎平方メートル	cd/m <sup>2</sup>
屈折率 <sup>(b)</sup>	(数字の) 1	1
比透磁率 <sup>(b)</sup>	(数字の) 1	1

(a) 量濃度(amount concentration)は臨床化学の分野では物質濃度(substance concentration)ともよばれる。

(b) これらは無次元あるいは次元1をもつ量であるが、そのことを表す単位記号である数字の1は通常は表記しない。

表3. 固有の名称と記号で表されるSI組立単位

組立量	SI 組立単位		
	名称	記号	他のSI単位による表し方
平面角	ラジアン <sup>(b)</sup>	rad	1 <sup>(b)</sup> m/m m <sup>2</sup> m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup>
立体角	ステラジアン <sup>(b)</sup>	sr <sup>(c)</sup>	1 <sup>(b)</sup> Hz
周波数	ヘルツ <sup>(d)</sup>	N	m kg s <sup>-2</sup>
力	ニュートン	Pa	N/m <sup>2</sup> m <sup>-1</sup> kg s <sup>-2</sup>
圧力、応力	パスカル	J	N m m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup>
エネルギー、仕事、熱量	ジュール	W	J/s m <sup>2</sup> kg s <sup>-3</sup>
仕事率、工率、放射束	ワット	C	s A
電荷、電気量	クーロン	V	W/A m <sup>2</sup> kg s <sup>-3</sup> A <sup>-1</sup>
電位差(電圧)、起電力	ボルト	F	C/V m <sup>2</sup> kg <sup>-1</sup> s <sup>4</sup> A <sup>2</sup>
静電容量	ファラード	Ω	V/A m <sup>2</sup> kg s <sup>-3</sup> A <sup>-2</sup>
電気抵抗	オーム	S	A/V m <sup>2</sup> kg <sup>-1</sup> s <sup>4</sup> A <sup>2</sup>
コンダクタンス	ジーメンス	Wb	Vs m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> A <sup>-1</sup>
磁束密度	エーベル	T	Wb/m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> A <sup>-1</sup>
インダクタンス	テスラ	H	Wb/A m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> A <sup>-2</sup>
セルシウス温度	度	℃	K
光度	ルーメン	lm	cd sr <sup>(e)</sup> lm/m <sup>2</sup> m <sup>2</sup> cd s <sup>-1</sup>
放射性核種の放射能 <sup>(f)</sup>	ルクス	Ix	lm
吸収線量、比エネルギー分与、カーマ	ベクレル <sup>(d)</sup>	Bq	J/kg m <sup>2</sup> s <sup>-2</sup>
線量当量、周辺線量当量、方向性線量当量、個人線量当量	グレイ	Sv	J/kg m <sup>2</sup> s <sup>-2</sup>
酸素活性	シーベルト <sup>(g)</sup>	kat	s <sup>-1</sup> mol

(a) SI接頭語は固有の名称と記号を持つ組立単位と組み合わせても使用できる。しかし接頭語を付した単位はもはやコヒーレントではない。

(b) ラジアンとステラジアンは数字の1に対する単位の特別な名称で、量についての情報をつたえるために使われる。実際には、使用する時には記号rad及びsrが用いられるが、習慣として組立単位としての記号である数字の1は明示されない。

(c) 測光学ではステラジアンという名称と記号srを表し方の中に、そのまま維持している。

(d) ヘルツは周期現象についてのみ、ベクレルは放射性核種の統計的過程についてのみ使用される。

(e) セルシウス度はケルビンの特別な名称で、セルシウス温度を表すために使用される。セルシウス度とケルビンの単位の大きさは同じである。したがって、温度差や温度間隔を表す數値はどちらの単位で表しても同じである。

(f) 放射性核種の放射能(activity referred to a radionuclide)は、しばしば誤った用語で“radioactivity”と記される。

(g) 単位シーベルト(PV,2002,70,205)についてはCIPM勧告2(CI-2002)を参照。

表4. 単位の中に固有の名称と記号を含むSI組立単位の例

組立量	SI 組立単位		
	名称	記号	SI 基本単位による表し方
粘度	パスカル秒	Pa s	m <sup>1</sup> kg s <sup>-1</sup>
力のモーメント	ニュートンメートル	N m	m <sup>2</sup> kg s <sup>2</sup>
表面張力	ニュートン毎メートル	N/m	kg s <sup>-2</sup>
角速度	ラジアン毎秒	rad/s	m <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup> =s <sup>-1</sup>
角加速度	ラジアン毎秒毎秒	rad/s <sup>2</sup>	m <sup>-1</sup> s <sup>-2</sup> =s <sup>-2</sup>
熱流密度、放射照度	ワット毎平方メートル	W/m <sup>2</sup>	kg s <sup>-3</sup>
熱容量、エンタルピー	ジュール毎ケルビン	J/K	m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> K <sup>-1</sup>
比熱容量、比エンタルピー	ジュール毎キログラム毎ケルビン	J/(kg K)	m <sup>2</sup> s <sup>-2</sup> K <sup>-1</sup>
比エネルギー	ジュール毎キログラム	J/kg	m <sup>2</sup> s <sup>-2</sup>
熱伝導率	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m K)	m kg s <sup>-3</sup> K <sup>-1</sup>
体積エネルギー	ジュール毎立方メートル	J/m <sup>3</sup>	m <sup>1</sup> kg s <sup>-2</sup>
電界の強さ	ボルト毎メートル	V/m	m kg s <sup>-3</sup> A <sup>-1</sup>
電荷密度	クーロン毎立方メートル	C/m <sup>3</sup>	m <sup>3</sup> sA
表面電荷密度	クーロン毎平方メートル	C/m <sup>2</sup>	m <sup>2</sup> sA
電束密度、電気変位	クーロン毎平方メートル	C/m <sup>2</sup>	m <sup>2</sup> sA
誘電率	ファラード毎メートル	F/m	m <sup>3</sup> kg s <sup>-4</sup> A <sup>2</sup>
透過率	ヘンリー毎メートル	H/m	m kg s <sup>-2</sup> A <sup>2</sup>
モルエネルギー	ジュール毎モル	J/mol	m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> mol <sup>1</sup>
モルエンタルピー、モル熱容量	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol K)	m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> K <sup>-1</sup> mol <sup>1</sup>
照射線量(X線及びγ線)	クーロン毎キログラム	C/kg	kg <sup>-1</sup> sA
吸収線量	グレイ毎秒	Gy/s	m <sup>-3</sup> s <sup>-2</sup>
放射強度	ワット毎メートル	W/sr	m <sup>1</sup> m <sup>2</sup> kg s <sup>-3</sup> =m <sup>2</sup> kg s <sup>-3</sup>
放射輝度	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	W/(m <sup>2</sup> sr)	m <sup>2</sup> m <sup>2</sup> kg s <sup>-3</sup> =kg s <sup>-3</sup>
酵素活性濃度	カタール毎立方メートル	kat/m <sup>3</sup>	m <sup>-3</sup> s <sup>-1</sup> mol

表5. SI接頭語

乗数	接頭語	記号	乗数	接頭語	記号
10 <sup>24</sup>	ヨ	タ	Y	10 <sup>-1</sup>	デシ
10 <sup>21</sup>	ゼ	タ	Z	10 <sup>-2</sup>	センチ
10 <sup>18</sup>	エ	ク	E	10 <sup>-3</sup>	ミリ
10 <sup>15</sup>	ペ	タ	P	10 <sup>-6</sup>	マイクロ
10 <sup>12</sup>	テ	ラ	T	10 <sup>-9</sup>	ナノ
10 <sup>9</sup>	ギ	ガ	G	10 <sup>-12</sup>	ピコ
10 <sup>6</sup>	メ	ガ	M	10 <sup>-15</sup>	フェムト
10 <sup>3</sup>	キ	ロ	k	10 <sup>-18</sup>	アト
10 <sup>2</sup>	ヘ	ク	h	10 <sup>-21</sup>	ゼット
10 <sup>1</sup>	デ	カ	da	10 <sup>-24</sup>	ヨクト

表6. SIに属さないが、SIと併用される単位

名称	記号	SI 単位による値
分	min	1 min=60s
時	h	1h=60 min=3600 s
日	d	1 d=24 h=86 400 s
度	°	1°=(π/180) rad
分	'	1'=1(60)'=(π/10800) rad
秒	"	1"=(1/60)"=(π/648000) rad
ヘクタール	ha	1ha=1hm <sup>2</sup> =10 <sup>4</sup> m <sup>2</sup>
リットル	L	1L=1dm <sup>3</sup> =10 <sup>3</sup> cm <sup>3</sup> =10 <sup>-3</sup> m <sup>3</sup>
トン	t	1t=10 <sup>3</sup> kg

表7. SIに属さないが、SIと併用される単位で、SI単位で表される数値が実験的に得られるもの

名称	記号	SI 単位で表される数値
電子ボルト	eV	1eV=1.602 176 53(14)×10 <sup>-19</sup> J
ダルトン	Da	1Da=1.660 538 86(28)×10 <sup>-27</sup> kg
統一原子質量単位	u	1u=1 Da
天文単位	ua	1ua=1.495 978 706 91(6)×10 <sup>11</sup> m

表8. SIに属さないが、SIと併用されるその他の単位

名称	記号	SI 単位で表される数値
バール	bar	1 bar=0.1MPa=100kPa=10 <sup>5</sup> Pa
水銀柱ミリメートル	mmHg	1mmHg=133.322Pa
オングストローム	Å	1 Å=0.1nm=100pm=10 <sup>-10</sup> m
海里	M	1 M=1852m
ノット	b	1 b=100fm <sup>2</sup> =(10 <sup>-12</sup> cm) <sup>2</sup> =10 <sup>-28</sup> m <sup>2</sup>
ノット	kn	1 kn=(1852/3600)m/s
ネバール	Np	SI単位との数値的な関係は、対数量の定義に依存。
デジベル	dB	

表9. 固有の名称をもつCGS組立単位

名称	記号	SI 単位で表される数値
エルグ	erg	1 erg=10 <sup>-7</sup> J
ダイーン	dyn	1 dyn=10 <sup>-5</sup> N
ボアズ	P	1 P=1 dyn s cm <sup>-2</sup> =0.1Pa s
ストークス	St	1 St=1cm <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> =10 <sup>-4</sup> m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup>
スチルブ	sb	1 sb=1cd cm <sup>-2</sup> =10 <sup>4</sup> cd m <sup>-2</sup>
フォート	ph	1 ph=1cd sr cm <sup>-2</sup> 10 <sup>4</sup> x
ガル	Gal	1 Gal=1cm s <sup>-2</sup> =10 <sup>-2</sup> ms <sup>-2</sup>
マクスウェル	Mx	1 Mx=1G cm <sup>2</sup> =10 <sup>8</sup> Wb
ガウス	G	1 G=1Mx cm <sup>-2</sup> =10 <sup>-4</sup> T
エルステッド	Oe	1 Oe△(10 <sup>3</sup> /4n)A m <sup>-1</sup>

(c) 3元系のCGS単位系とSIでは直接比較できないため、等号「△」は対応関係を示すものである。

表10. SIに属さないその他の単位の例

名称	記号	SI 単位で表される数値
キュリ	Ci	1 Ci=3.7×10 <sup>10</sup> Bq
レントゲン	R	1 R=2.58×10 <sup>4</sup> C/kg
ラド	rad	1 rad=1cGy=10 <sup>-2</sup> Gy
レム	rem	1 rem=1 cSv=10 <sup>-2</sup> Sv
ガンマ	γ	1 γ=1 nT=10 <sup>-9</sup> T
フェルミ	f	1フェルミ=1 fm=10 <sup>-15</sup> m
メートル系カラット	Torr	1 Torr=(101 325/760) Pa
標準大気圧	atm	1 atm=101 325 Pa
カロリ	cal	1cal=4.1858J (15°Cカロリー), 4.1868J (ITカロリー) 4.184J (熱化学カロリー)
ミクロシン	μ	1 μ=1μm=10 <sup>-6</sup> m

