電気抵抗法による2成分粒子系のランダムネスの推定* (縁端効果について)

吉村 慶英** 藤原 幸男***

Electric Resistance as a Measure for Estimating Randomness of Binary Solid Particles System (Edge Effect)

by

Yoshihide YOSHIMURA and Yukio FUJIHARA

(Department of Chemical Engineering, Kogakuin University, Hachioji)

In order to avoid troubles for sampling, it is worthwhile to work out a simple method whereby the degree of mixing is measured immediately, non-destructively. The purpose of the present work is to develop a simple method which enables to measure the degree of mixing of binary systems having particles of different electric resistances.

In this report, the system composed of 13 spheres is treated with a particular emphasis on the edge effect (boundary effect). When the larger numbers of spheres with low electric resistances gather at the terminal position of the system, the apparent total electric resistance of the system will be increased. On the contrary, when the larger numbers of particles (spheres) with high electric resistances gather at the terminal position of the system, the apparent total electric resistance of the system will be decreased.

The amount of increase or decrease in apparent total electric resistance is proportional to the number of spheres located at the edge. An appropriate correction for the edge effect should be made, that is,

$$\text{Correction factor for edge effect} = \frac{\left(\frac{\text{Total electric resistance of system (a) in Fig. 5}}{\text{Number of spheres-B located at the edge of sys. (a) in Fig. 5}} \right) - \left(\frac{\text{Total elec. res. of sys. (b) in Fig. 5}}{\text{Number of spheres-B located at the edge of sys. (b) in Fig. 5}} \right)}{\left(\frac{\text{Total electric resistance of system (a) in Fig. 5}}{\text{Number of spheres-B located at the edge of sys. (a) in Fig. 5}} \right) - \left(\frac{\text{Total elec. res. of sys. (b) in Fig. 5}}{\text{Number of spheres-B located at the edge of sys. (b) in Fig. 5}} \right)}$$

(Received Feb. 12, 1982)

キー・ワード：粉粒体，配列，混合，電気抵抗

1 緒 論

Percolation の問題として導電球と絶縁球の混合系の電気抵抗を検討した研究¹⁾，2次元抵抗回路網の抵抗要素の確率密度が定められているときに，双対性を利用して回路網の全抵抗を求める方法を検討した研究²⁾など電気抵抗回路網に関する研究は多数ある。しかし，これらの研究はすべてランダムの状態に限定されており，オーダーからランダムの状態への変化を取り扱ったものはない。

本報告では，電気抵抗値の異なる2種類の粉体を混合

する過程を電気抵抗回路網に置き換えて検討する。まず，電気抵抗値の異なる2種の素材（A，B）を仮定し，素材Aで作られている単一粒子Aの集まりをAグループ，素材Bで作られている単一粒子Bの集まりをBグループとする。このような，二つのグループの混合（あるいは配列変化）を2次元の問題として取り扱う。

AグループとBグループを測定電極間に並列に配列（Fig. 1）とすれば，その配列状態に相当する一定の全抵抗値が測定されるはずである。また，図示していないが，AグループとBグループを電極間に直列に配列すれば，その配列状態に相当する一定の全抵抗値を示すべきである。並列配列の系の全抵抗値は最小の一定

* 原稿受理 昭和57年2月12日

** 工学院大学 八王子市中野町

*** 正 会 員 工学院大学 八王子市中野町

Fig. 1. Two-dimensional model (Initial state in parallel arrangement).

値であり (Fig. 1), 直列配列の系の全抵抗値は最大の一定値であるから, disorder な中間配列においては, 系の全抵抗は最小と最大の中間値を示すものと予想される。

このような考え方に基づいて, 前報では, 系の中の粒子の配列と全抵抗との関係をモデル計算によって求めた。しかし, そのモデルにおいては, 粒子数が, A グループ 8 個, B グループ 5 個, 合計 13 個と少かったので, 充てん系の外縁の影響が現れ, 正確な関係を得るに至らなかった。また, 系の中における粒子の配列のランダムネスの程度を標準偏差 σ で表すことにより, σ と全抵抗の関係を求めるべきであったが, この点も前報では未検討のままであった。

本報では, 前報で未解決であったこの 2 点を中心に検討を行う。

2 計 算 方 法

3 次元モデルが望ましいが, vulnerability¹⁾ (ヴァルネラビリティ: 系が N 個の導電球で構成されているとき, その系から 1 個の球を除いたとき, どれだけ系の全抵抗が増加するかという無次元数で, ヴァルネラビリティ $= (2z-2)/(z-2)$ の式で表される。ただし, 式中の z は配位数) の考え方から, 2 次元も 3 次元も本質的には変りがないものと仮定して, 計算の簡単な 2 次元モデルを選ぶことにした (もっとも, ヴァルネラビリティが次元に関係なく配位数のみで決定されるということから, 直ちに, 本報で取扱っている系の全抵抗も次元に無関係であると決めることは多少無理があるかもしれない。2 次元と 3 次元では本質的な差があるかどうかということに関しては将来の課題としたい)。

2・1 2 次元モデル (Fig. 1, 2)

(1) Fig. 1 に示されているように, 粒子はすべて等径の球とし, それらが face-centered square の配列構造をとっているものとした。

R_A : Electric resistance of a single sphere $A=4\Omega$.
 R_B : Electric resistance of a single sphere $B=2\Omega$.
 X_A : Substantial resistance of a single sphere A.
 X_B : Substantial resistance of a single sphere B.
 Y_A : Contact resistance of a single sphere A.
 Y_B : Contact resistance of a single sphere B.

Fig. 2. Electric resistance of a single sphere, electric resistance between the centers of two spheres contacting each other and electric resistance between P_+ and the center of sphere A.

(2) Fig. 1 に示されているように, 主として, A 球 8 個, B 球 5 個, 全数 13 個の系について検討を行ったが, 18 個の系 (Fig. 10) と 41 個の系についても検討した (Fig. 12)。

(3) 単一 A 球の電気抵抗は接触抵抗を含めて $4(\Omega)$ とし, 単一 B 球のそれは $2(\Omega)$, 電極板のそれは無視しうる程度に小であるとした (Fig. 2)。また A 対 B の抵抗は $6(\Omega)$ 対 $2(\Omega)$, $8(\Omega)$ 対 $2(\Omega)$ など変化して計算を行った (紙数の都合で省略)。

(4) 初期充てん状態 (仕込みの状態) は Fig. 1 のように電極板間に並列配列で充てんされているものとする。球の位置番号 (Fig. 1) では, No. 1~8 は A 球, No. 9~13 は B 球である。

(5) 交換組数 並列に初期充てんされた球を A, B 両グループ間で相互に交換し合うことで配列を変化させて行くが, この際, 配列変化の程度を表すために交換組数 (Number of exchanges) を定義する。たとえば, No. 2 の A 球と No. 11 の B 球を交換する場合にはそれを “2→11” の記号で表し, 交換組数は 1 である。同様に, 3→13 の交換と 1→10 の交換を同時に行うような場合には, 2 組の交換が並行して行われるのであるから, この場合は, 交換組数は 2 である。

2・2 計算方法

以上のようなモデルは等価な電気抵抗回路網におきかえることができる。たとえば, Fig. 1 に示されている初期充てん系と等価な回路は Fig. 3 となる。Fig. 1 の系の全抵抗 R_0 は Fig. 3 に Kirchhoff の法則を適

Fig. 3. Circuit of electric resistances corresponding to the model shown in Fig. 1.

用すれば求められ,

$$R_0 = 3.808(\Omega)$$

となる. すなわち, $4(\Omega)$ の球 8 個, $2(\Omega)$ の球 5 個の並列初期充電系の全抵抗は $3.808(\Omega)$ となる. またこの初期充電系において, “1→11” の交換を行えば系の全抵抗 $R_{1 \rightarrow 11}$ は,

$$R_{1 \rightarrow 11} = 3.921(\Omega)$$

となる. すなわち, 並列初期充電状態から 1 組の球の位置を交換すること (Number of exchanges=1) により全抵抗は $3.808(\Omega)$ から $3.921(\Omega)$ に増加したことになる.

また, “1→12” と “6→13” の交換を同時に行ったときの全抵抗は,

$$R_{1 \rightarrow 12, 6 \rightarrow 13} = 3.936(\Omega) \quad (\text{交換組数}=2)$$

となる.

このようにして求められた系の全抵抗 R と交換組数 ($N \cdot E$) との関係を図にプロットすれば Fig. 4 のようになるが, 縁端 (充電系の外縁あるいは境界といってもよい) の影響を受けるため, 相関関係は良くない.

Fig. 4. Relationship between the number of exchanges and the total electric resistance of the system.

3 縁端効果

3.1 縁端効果

検討の対象とする充電系の球の数が十分に大であれば縁端効果 (系と外界の境界に位置する球による全抵抗への影響) は無視されるが, 本報告におけるよう

に, 対象とする球の全数が少ない場合には, 系の端, とくに行に関する端, すなわち球の位置番号で示せば No. 1, 2, 3 と No. 11, 12, 13 の端に位置する球が全抵抗に影響をもってくる. もし, 抵抗 $2(\Omega)$ の B 球がより多く縁端に配置される場合には, 見かけの全抵抗値は大き目となり, 抵抗 $4(\Omega)$ の A 球がより多く縁端に集まれば見かけの全抵抗値は小さ目となる. このことは, Fig. 5 において, (a) と (b) の二つの状態を比較することによって説明できる. (a), (b) ともに並列配列であるが, (a) においては B 球が縁端に, (b) においては B 球が内部に配列されている. この配列の違いによって, 縁端効果を無視した通常の計算によって求めた全抵抗値には差が出てくる. すなわち, (a) の場合は $3.808(\Omega)$ であるが, (a) に較べて縁端における B 球個数が 3 個少ない (b) の場合には全抵抗は $3.519(\Omega)$ に減少する. したがって, 特定の球 (ここでは B 球) が縁端に集中することによって生ずる全抵抗値の変化を相殺するためには, 縁端に配置される B 球 1 個につき次の補正を行う必要がある.

$$\begin{aligned} \text{縁端効果の補正} &= \frac{(\text{Fig. 5 (a) の系}) - (\text{Fig. 5 (b) の系})}{(\text{Fig. 5 (a) の系})} \\ &= \frac{3.808 - 3.519}{3 - 0} \div 0.1 \quad (1) \end{aligned}$$

Fig. 5. Two different types, (a) and (b), of the system of particles arranged in parallel.

Fig. 6. Relationship between the number of exchanges and the total resistance (corrected by the number of B-spheres located at the edge of the system).

3.2 交換組数と全抵抗

(1)式で求めた値, すなわち $0.1(\Omega)/(\text{個})$ で補正を行うと, Fig. 4 はより相関性の良い Fig. 6 となる.

4 標準偏差と全抵抗

3章では交換組数と系の全抵抗の関係を求めたが、本章では系の中の球の配列状態あるいは混合の良否を表すと思われる標準偏差 (σ) と系の全抵抗 (R) の関係を求める。

4・1 標準偏差

標準偏差の計算は次式を用いた。

$$\sigma = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (C_i - C_0)^2}$$

ただし、 C_0 : 球Bの仕込み濃度すなわち $5/13 = 0.385$ であるが、本報では $C_0 = 1$ として計算した。 C_i : 任意の配列状態における各サンプリング区域内のB球の濃度に定数 ($1/0.385$) を乗じた数値、 N : サンプリング数すなわちサンプリング区域数=4 (Fig. 7)。

Fig. 7. Space of the system and its subspaces (lots).

サンプリング区域としては Fig. 7 に示されるような分割方法が必ずしも最良とは限らないが、他の分割方法をとると濃度の目測が煩雑となる。

4・2 標準偏差と全抵抗の関係

σ は系の配列がランダムになるにつれて小になる傾向を持つべきである。 σ と全抵抗の関係をプロットすると Fig. 8 のようになり、ランダムネスが増加するにつれて系の全抵抗も増加する傾向がみられる。しかし、その相関はあまり良くない。その原因は、サンプリング区域の分割の仕方、系に含まれる球数が少ないこと、直列配列に近づくときオーダーの状態でも全抵抗値は高くなることなどによるのではないと思われる。

Fig. 8. Standard deviation (σ) vs. total resistance.

5 考 察

5・1 縁端効果と配位数

3・1節において縁端すなわち第1行と第5行を占有するB球の個数の増加によって系の見かけの全抵抗値

は増加すると述べたが、このことは、A球に較べ抵抗値 $1/2$ のB球が系の全抵抗に及ぼす寄与の割合が減少したことを意味する。これは、B球の有効配位数（接点）が減少するということによって説明できる。球が系の中心部にあるときにはその球の有効配位数は4である。しかし、球が系の縁端部に位置すると、有効配位数は3あるいは2に減少する。Fig. 5 の二つの配列についてみれば、まず、Fig. 5 (a) のB球については、No. 9 の接点数は4、No. 10 も4、No. 11, 12, 13 は2、したがって、有効配位数は $4+4+2+2+2=14$ 、(b) の配列では18となる。(1)式を導いたと同様に、配位数による縁端効果補正を行えば、

$$\left(\frac{\text{単位有効配位数}}{\text{当りの補正值}} \right) = \frac{3.808 - 3.519}{18 - 14} = 0.07(\Omega) \quad (2)$$

となる。

この補正値を使って Fig. 4 を補正すれば Fig. 9 のようになる。球数補正によって求められた Fig. 6 と配位数補正された Fig. 9 との間にほとんど差がみられないということは、これら二つの補正法が同等の物理的意味をもつものではないかと思われる。

Fig. 9. Relationship between the number of exchanges and the total resistance corrected by coordination number.

5・2 系の拡張と縁端効果

これまで、総数13個の少数の球から構成された系を対象としてきたので、縁端効果が強く現れたのではないかと思う (Fig. 4)。それでは、系の球数を増加したら、縁端効果が減じ、より確かな $N \cdot E$ 対全抵抗の関

Fig. 10. Initial state of expanded system of particles in parallel arrangement.

Fig. 11. R vs. number of exchanges, in the expanded system.

係が得られるだろうか。それを調べるために、系の球数を18個に拡張して試算を行った (Fig. 10)。この場合、全配列数は ${}_{18}C_7 = 15\,912$ となり、全数プロットなど無理であるので、各 $N \cdot E$ において2ないし3通りの配列を乱数抽出し、計算を行った。その結果をプロットすれば Fig. 11 のように縁端効果の補正を行わなくてもかなり正確な関係を得ることができた。これから、球数増加によって縁端効果は弱まってくるのがわかる。

6 結 論

(1) 系の全抵抗とランダムネスとの間に対応のあることが認められた。それは、オーダー配列のときは並列配列と直列配列があり、並列配列では全抵抗最小、直列配列では最大。またランダム配列のときは全抵抗は前記の最小と最大の中間値となる。

(2) (1)から次の結論を得る。

並列初期充てん状態から、粒子の配列変化 (混合) を行くと、系がランダムな状態になるにつれて系の全抵抗値は増して行き、完全にランダムになったところで、一定の抵抗値に到達する。また直列初期充てん状態の系について混合を行くと、全抵抗は減少して行き、最後に完全ランダム状態で一定の全抵抗値になる。

(3) 系に含まれる粒子の数が小であるときには、系の縁端効果を無視することができない。縁端効果の補正は、1種類の球 (球Aあるいは球B) が末端の行 (No. 1, 2, 3 と 11, 12, 13) を占有する個数、あるいは有効配位数を数えあげることによって可能となる。

(4) 系に含まれる粒子数が充分に多いときには、粒子配列と系の全抵抗値との関係はより判然としたものになる。したがって、系の全抵抗の測定値から系のランダムネスを推定できるであろう (Fig. 12)。 (Fig. 12の1プロットはランダムに採った10個の値の平均値である。)

Fig. 12. R vs. number of exchanges, in 41 particles system.

(5) この方法を利用するに当っては、少なくとも下記の条件を満たしていることが必要であると思われる。

(a)系が2種類の粉体で構成され、かつそれらの間に電気抵抗の差がある場合、(b)2種類の粉体の粒子径にあまり差がなく、しかも全体として粒子径が揃っていること、(c)粒子径が系の全容積に較べて過小でないこと、(d)充てん状態を一定に保ちうること、表面酸化被膜、吸脱着、磨耗などの影響も含めて粒子間の接触状態が不安定でないこと、(e)測定電極を目的の箇所を組み込めること、(f)測定電流で粉体に変質しないこと。

(昭和56年10月29日 粉体に関する討論会にて講演)

参 考 文 献

- 1) Ottavi, H., *et al.*, J. Phys. C: Solid State Phys., **11**, 1311 (1978).
- 2) Bernasconi, J., *et al.*, Physical Review, **16**, 5250 (1977).
- 3) 吉村慶英, 第19回粉体に関する討論会講演要旨集, 97 (1981).
- 4) 応用物理学英文誌に投稿中