電気抵抗法による2成分粒子系のランダムネスの推定[†] (系の拡張効果について)

藤原 幸男* 吉村 慶英**

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

by

Yukio FUJIHARA and Yoshihide YOSHIMURA

(Department of Chemical Engineering, Kogakuin University, Hachioji)

In order to avoid complicated procedures for sampling, it is worthwhile to establish a simple method whereby the degree of mixing is measured immediately, non-destructively. In the previous paper, the method applicable to the system of smaller number of particles, (*i.e.* number of particles: 13~25) was presented. In such a system of small number of particles as 13 particles or 25 particles, it was necessary to consider the edge-effect of the system.

When the number of particles in the system is increased, the edge-effect of the system in the total electric resistance has to be decreased. The decrease of edge-effect should be inversely proportional to the number of particles in the system, that is

$$\text{Edge-effect} \propto 2n/(n^2 + (n-1)^2) \doteq 1/(n-1) \quad (1)$$

where n is the number of particles occupied at one edge (first line).

When n reaches 6 or above, there exists a good correlation between the degree of mixing (σ) and the total electric resistance (R) of the system.

(Received Jan. 13, 1983)

キー・ワード：粉粒体，配列，混合，電気抵抗

1 緒 言

導電体と絶縁体の混合系の電気抵抗に関する研究は Percolation の問題として Ottavi¹⁾らの研究，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 Bernasconi²⁾らの研究がある。しかしこれらの研究はランダム³⁾の状態に限定されており混合過程について取扱ったものではない。

そこで，筆者らは混合（あるいは配列変化）の過程における混合度と電気抵抗の関係について検討することにした。

電気抵抗の異なる2種類の粉体を混合する場合，その混合状態を Fig. 1 に示されているような球の2次元配列をモデル（以後モデルという）の電気抵抗回路網に置き換えられるものと考え，モデルの全電気抵抗

（以後 R で表す）とランダムネス（以後 σ で表す）³⁾の関係について数値計算を行い検討を進めてきた。前報において，この基本的な考え方を示し，球の配列と R との間にある程度³⁾の関係があることを述べた。しかし，系の球総数 (NT) が13個と少いため R の計算において系の外縁におけるB球の個数を数え補正する必要があることを述べた。

この方法，つまり系の R を求め σ を推定する方法を実際に応用する場合， R の計算において縁端の補正を行うことは困難である。

本報では，この問題を解決するために， NT 13 の系を基準とし， NT 25, 41, 61, 85 の拡張系について， R と σ を計算し，両者の相関関係が十分に良い相関性を示す系の大きさ，すなわち，縁端の補正を必要となくなる系の大きさを明らかにすることを目的とした。

2 計 算 方 法

実際の粉体の混合系は一般に3次元である。したがって，モデル計算において取扱う系も3次元モデルが

[†] 原稿受理 昭和58年1月13日

* 正会員 工学院大学 八王子市中野町

** 工学院大学 八王子市中野町

期待値とサンプル数の積を1組の交換に要する球の数(つまり2)で割った値である。この値は次のように表せる。

$$NE^* = \frac{1}{2}(NBS \cdot N)$$

したがって、各拡張系において、初期充てん状態から完全混合状態への変化は交換組数を NE^* まで交換することにより得られる。なおこの値はあくまでも理想的な条件におけるA、B球を交換した場合で、実際には完全混合状態となる交換組数は大きな値となる。

つまり、理想的な交換条件とは C_0 が0.5の場合で、Fig. 2 (a)に示されているようなA球グループとB球グループ内の交換が行われた場合である。

Fig. 2. Two different types of exchanges.

しかし、本研究の場合、 C_0 は0.5より小さいため、Fig. 2 (b)に示されているように同一サンプル区域内(同一 Lot 内)におけるA球とB球の交換も可能であり、このような場合は NE^* の値が $1/2(NBS \cdot N)$ の値より大きくなるものと考えられる。

なお NE の定義は前報と同じである。球の交換は系のすべての球に番号をつけ、AグループとBグループの中の交換すべき球の番号をマイコンにより発生させた乱数より決定し、Fig. 3 (b)のように行った。

2・2 計算方法

(1) 全抵抗 球の抵抗値および球間、球と電極間の接触抵抗については、前報と同様である。つまり、単一A球の電気抵抗は $4(\Omega)$ とし、単一B球のそれは $2(\Omega)$ とし球間、球と電極間の接触抵抗は無視しうる程度に小であるとした。

R の計算方法については $NT 13$ について、前報に述べたので詳細な説明は省略する。拡張系の場合も $NT 13$ の場合とまったく同様な方法によって求められる。その方法を略述すると、まず、各拡張系の球配列構造を決め、それに対応した電気的等価回路網を作る。つぎに所定の交換組数における交換球の位置を前述の方法により決定し、回路の枝路抵抗を求める。

各枝路電流はこの回路に $1(A)$ の電流が流れるものとし、Kirehhooff の法則に基づく多元連立方程式を立て、Gaus-Sidel の消去法による収束値から求められる。

したがって、これらの枝路抵抗と枝路電流の値より全抵抗は Fig. 1 の電極 (P^+ , P^-) 間の各枝路の電圧降下の総和より求められる。

この計算はプログラムを作り、マイコンを用いて行った。なお、 R の値は Fig. 7 (a)(b)におけるb)を除いた他のすべての場合、縁端補正を行わない値を示している。

(2) 標準偏差 系のA球とB球の混合状態の程度を表す標準偏差 (σ) は次の式によって求めた。

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

ここで、 C_0 は Table I に示したB球の仕込み濃度である。 C_i は任意の配列状態における各サンプリング区域のB球濃度である。

サンプリングの区分は Fig. 3 (a)に示した。 N はサンプル数であり本報では8である。

なお Fig. 3 (b)に球の交換例を示した。

Fig. 3. Space of the system and its subspaces (Lots), (a) and a example of exchanging position of spheres, (b).

3 拡張系の数値計算の結果および考察

3・1 全抵抗と交換組数

基本系である $NT 13$ と各拡張系について、 NE に対する R の計算値を Fig. 4 (a)~(e)に示した。計算の対象とした配列は先に述べたように所定の交換組数に対する交換球の位置を乱数により決め、決定した。

また、各交換組数に対する配列の数は系に含まれるA球の数とB球の数そして交換組数により次のよう求められる。

$$\text{配列の数} = N_A C_{NE} \times N_B C_{NE}$$

したがって、拡張系において起りうる配列の数は無数の配列が考えられるわけである。

そこで、計算の対象とした配列の数は配列を乱数により決め、各交換組数に対して5~20通りとした。

この結果、前報と同様 $NT 13$ においては R と NE の関係は判然としていない。そして、拡張系の $NT 25$ においてもこの関係は判然としていない。

しかし、 $NT 41$ 以上においては R と NE の関係は判然とした結果を示している。

このことから、系を拡張することにより、縁端補正

を行わなくても混合過程（配列の変化過程）と R は密接な関係にあり、 R の変化は球の配列変化によるもので、縁端効果はあまり影響を与えないものと考えられる。

また、 NT が 41, 61 の系においては交換組数が NE^* 付近において R の値はほとんどピークに達していることが分る。

これは実際問題として交換組数が NE^* に達した時点ではほとんど完全な混合状態を実現したと見てよいだろう。

Fig. 4. Relationship between number of exchanges (NE) and total electric resistance (R) of the system of 13~85 spheres.

3・2 系の拡張効果

(1) 全抵抗 Fig. 4 (a)~(e) に示されている R と NE の関係において、 R の絶対値は系の拡張とともに相対的に減少している。この原因は系の拡張による効果と考えられる。この効果は式(1)の E の値と密接な関係をもつものと思われる。

そこで、この効果と R の関係を明らかにするため、 R と n の関係について検討した。つまり、各系について同一条件で比較するため、次のような計算条件について検討した。

系のすべての位置に A 球を配列した場合、同様に B 球を配列した場合、そして初期充てん状態（系の B 球濃度が Table I に示した C_0 の場合）とした場合について R を計算し Fig. 5 に示した。

この結果、いずれの場合も、 R と n の関係は逆比例の関係にあり、系を拡張することにより R の値は減少することがわかった。

(2) 標準偏差 前項において R と n の関係を検討

Total electric resistance of the system.

Occupied by A-spheres only: (●)

Occupied by B-spheres only: (○)

Total electric resistance at the initial state (parallel arrangement), (—○—).

Abbreviation value of edge-effect (E^*), (—○—)

Fig. 5. Relationship between total electric resistance of the system (R), abbreviation value of edge-effect (E^*) and number of spheres located in the first line of system (n).

したが同様に σ と n の関係も密接な関係にあるものと考えられる。

そこで、 σ と n の関係についても検討した。一般に、混合前（完全分離状態）における標準偏差 (σ_0) と完全混合後の標準偏差 (σ_i) は C_0 と NS から次の式によって求められる。

$$\sigma_0 = \sqrt{C_0(1-C_0)} \quad (3)$$

$$\sigma_i = \sqrt{C_0(1-C_0)/NS} \quad (4)$$

式(3), (4)から明らかのように σ_0 は C_0 のみによって変化する系の大きさに関係しないが、 σ_i の値は NS の値が系の大きさにより異なるため、(本報のようなサンプリング区分を行った場合) NT の影響を受けることが分る。

そこで、Table I に示されている C_0 と NS を式(3), (4)に代入して求めた σ_0 と σ_i を Fig. 6 に示した。

σ_0 : Calculated with eq. (3)

σ_i : Calculated with eq. (4)

$\sigma_{0.6}$: Calculated with eq. (2)

C_0 is the concentration of sphere-B in the system at initial state.

$\sigma_{0.6}$: Calculated with eq. (2)

C_0 is the concentration of sphere-B in the system at $NE/MB=0.6$

Fig. 6. Relationship between standard deviation (σ), abbreviation value of edge-effect (E^*) and number of spheres located in the first line of system (n).

また、式(2)を用いて、各拡張系の初期充てん状態における σ の値を求め、 σ_i として Fig. 6 に示した。この結果、 σ_i と n の関係は σ_0 と n の関係と同様に n によって変らないことが分る。多少のばらつきがあるがこれは系によって C_0 が異なるためと考えられる。

さらに、各系において最も完全混合状態に近い配列状態として、B 球個数に対する交換組数の比が 0.6 の場合の配列について式(2)より求めた σ を $\sigma_{0.6}$ として Fig. 6 に示した。この $\sigma_{0.6}$ と n の関係は σ_i と n の関係と同一傾向を示すことが分った。

以上から系の拡張の効果は R と σ に関係し、いずれも、 n の値の増加にともなって減少することが分った。

3・3 標準偏差と全抵抗の相関係数

3・1 節で述べた R と NE の関係を検討する際に計

(a) Plots are raw data of R .

(b) Plots are data of R corrected by the number of sphere-B located at the edge of system.

Fig. 7. Relationship between standard deviation (σ) and total electric resistance (R).

算の対象としたすべての配列について、式(2)により σ を求め、 σ と R の関係を Fig. 7 (a)に NT 13, 25, Fig. 7 (b)に NT 41, 61, 85 について示した。

ここで、図中の a) は R の計算において縁端補正を行わない場合で b) は補正を行った場合の値である。

この結果、 NT 13, 25, 41 においては目測でわかるように相関性が良くない。そして、縁端補正を行うことによって NT 25, 41 の場合は相関性が良くなっていることが分る。しかし、 NT 61, 85 においては縁端の補正に関係なく相関性が良いことが分る。

以上から系の小さい場合の R の値は球の配列によらず縁端効果により大幅に変化するため、 R と σ の相関性を悪くしているものと考えられる。

そこで、 n または NT の変化に対する R と σ の相関係数 (r) および E^* の変化を Fig. 8 に示した。

この結果、 n に対する E^* と r の変化パターンはほぼ同じであり、 E^* の値が 0.2 つまり NT 61 になると r の値は 0.85 となり、相関性が良くなることが分る。

したがって、 NT 61 以上においては系の R の値は縁端効果によらず系内部の球の配列状態により変化するため R と σ の相関性が良いことを示している。

Fig. 8. Relationship between coefficient of correlation (r), abbreviation value of edge-effect (E^*) and number of spheres located in the first line of system (n).

r is the coefficient of correlation between σ and R .

4 結 論

- (1) 縁端効果は系が大きくなるに従って, $1/(n-1)$

に比例して小さくなる. 系の球総数が61以上では縁端の影響はほとんど無視してよい.

(2) 系の球総数, 61, 85において R と σ の相関係数は0.85であり, 相関性は良い. したがって, 縁端効果を考慮せずに求めた全抵抗値より, 逆に混合度(σ)を推定することができる.

(3) 一種類で構成された系の全抵抗は系が大きくなるにしたがって小となる. その理由は縁端効果によって説明される.

(昭和57年10月6日 第20回粉体に関する討論会にて講演)

参 考 文 献

- 1) H. Ottavi, J. Clerc, G. Glaund and J. Rousseng, J. Phys. C: Solid State Phys., **11**, 1311 (1978).
- 2) J. Bernasconi, W.R. Schneider and H. J. Wiesmann, Physical Review, **16**, 5250 (1977).
- 3) 吉村慶英, 藤原幸男, 材料, **31**, 868 (1982).