



粒状体の配置に関する幾何学的考察:混合粒径のパ ー コレーション

阪口, 秀
五十嵐, 徹
畑中, 隆行

(Citation)

神戸大学農学部研究報告, 21(2):179-187

(Issue Date)

1995-01-30

(Resource Type)

departmental bulletin paper

(Version)

Version of Record

(JaLCD0I)

<https://doi.org/10.24546/00178058>

(URL)

<https://hdl.handle.net/20.500.14094/00178058>



粒状体の配置に関する幾何学的考察： 混合粒径のパーコレーション

阪口 秀*・五十嵐徹*・畑中隆行*・平山由紀子*

(平成6年8月10日受理)

Some Geometrical Properties of Granular Media : Binary Mixture Percolation

Hide SAKAGUCHI, Tohru IGARASHI, Takayuki HATANAKA and Yukiko HIRAYAMA

Abstract

Percolation of binary mixture of granular media is investigated. 4 lattices are pre-clustered in square to represent a larger particle. For a given concentration cite percolation threshold is computed. It is clearly shown that there are maximum point and minimum point in a curve of percolation threshold as a function of mixing ratio. Thus, in addition to scaling effect size distribution effect of particles has to be concerned in the behavior of granular media.

1. 序 論

多くの感染症の原因となるウイルスは、身近な生物の中でも最小の部類に属し、その大きさは20~300nmである。ウイルスはウイルス遺伝子となる核酸を含み、その核酸のまわりを蛋白殻（カプシッド）がとりまいているが、電子顕微鏡観察によって、このウイルス・カプシッドに規則的構造があることがつきとめられている。また、個々のウイルス粒子の蛋白殻（カプシッド）を構成する蛋白質分子は、正二十面体か、らせん形のいずれかの配列であることが明らかにされている⁸⁾。CRICKとWATSON⁹⁾の推論によると、1つの小型球形ウイルスの核酸量は微量で、これに含まれる情報だけでは非常に小さな蛋白質分子しかコードできないので、蛋白殻のように大きな分子を形成するためには、同一種の蛋白質分子が多数集合する必要性が生じる。その結果、同一種の粒子で構成される幾何構造のうち、対称性を持つ閉空間の最大のものとして正二十面体選ばれたのではないかと考えることができる。

ところで、正二十面体を密に積み重ねても、その空間的配列には長距離秩序(long-range order-LRO)を持て

ないことがわかる。同一種の粒子からなる最密充填構造がLROを持つためには、おのおのの粒子が12個の最近接粒子と接しなければならず、これは結果的に面心立方(face-centered cubic-FCC)あるいは六方最密(close-packed hexagonal-CPH)と呼ばれる配置となる。粒子が球の場合、このときのフラクションは74.05%を占める。しかし、FCCやCPHは、その配置の性質上、1つの粒子に接触する12個の近接粒子は一樣に分布していないため、同一種の粒子が対称性を保ちながら作る閉空間上にこれを生じることができないのである⁴⁾。

このように3次元の空間では、同一種の粒子が完全に一樣な分布を保ちながら空間を埋め尽くすことができない。このため、粒子はある有限な大きさのクラスターを形成するが、クラスター間の境界においては本質的に不安定な幾何学配列である。言い返せば、この幾何学的不安定性が、単純な繰り返しによる安定な巨大構造を空間上に作ることを妨げているために、より大きな構造は複雑化が進み、生物の進化などに影響を与えているものと考えられる。

このように個体を構成する基本物質の配置に関する幾何学的制約が、生物や非生物を問わずその個体全体の性質に大きく影響している。

ところで、筆者らは従前から、粒状体の流動について、その流体的な振る舞いから固体的な振る舞いへの遷移状態についての研究を進めている¹⁰⁾。そして、個

* 生産環境学研究室

々に大きさと形を持つ粒子の配列が、この粒状体の遷移的な挙動を特徴付ける大きなファクターであることを示してきた。

本報告では粒子の配列に関連することの中で、とくに粒子間接触の空間的連続性についての考察を進める。粒状体が固体的な性質を示すためには少なくとも粒子間の接触は連続している必要がある。接触が空間的に連続していれば、固体と呼べる状態に至らなくとも、連続体的な性質として捉えることができる。逆に言うと、見るべき時間スケールの中で、扱うシステム内での粒子間接触の連続性が非常に小さい場合、連続体的な扱いは困難となる。なぜなら、粒状体は他の粒子性物質と異なり、接触していない粒子間には、相互作用が全く働かないからである。

ここでは、上述の粒子間接触の空間的連続性を調べるために、情報や物質その他力学的諸量等の伝達特性を、伝達媒体の空間的な存在確立とその配置バリエーションから調べる、いわゆるパーコレーション理論を用いる。パーコレーション理論は、ある条件下で、考えるべき状態量が、パーコレート（浸透）する確率を与えるための理論であるが、確率論的手法に基づいた解析的な厳密解が得られることは、問題が非常に単純な条件の場合を除くと極めて稀である。そこで、一般的にはコンピュータを用いた大規模なモンテカルロシミュレーションが行なわれ、解析解に取って代わる数値解を求められるので、ここでもこれに従う。また、本研究では、2次元の平面上に、大きさの異なる粒子を所定のフラクションになるようにランダム配置させるときのパーコレーションを扱う。過去に個々の粒子の大きさを意識したパーコレーションの研究は殆ど見当たらない。しかし、粒状体の場合、本質的に粒度分布を有するため、粒子の大きさを考慮することは必要不可欠である。

以下、2節にパーコレーション理論の概略を説明し、3節では、粒径の異なる粒子が不規則に配置された場合の接触パーコレーションについて手法とその結果を述べ、最後に4節に本研究で得られた結果から、粒子配置の幾何学的制約が粒状体の挙動に与える影響についての考察を与える。

2. パーコレーション理論についての概要

この節では、情報や物質の空間的連続性を示すパー

コレーションについて説明し、種々の研究分野での適用例を紹介する。また、最後に本研究におけるパーコレーション理論の位置づけについて述べる。

2.1 パーコレーションとは

図-1に示すように、粒子が多数集まってできた物質を考える。この場合、物質全体は、個々の粒子と比較して十分に大きいものとする。

まず、図-2のように、この物質を多孔体質と見立て、その透水性を調べることにしよう。(1)式で表される

$$k = \frac{1}{k_{\infty}} \frac{\gamma}{S^2} \frac{e^3}{(1+e)} \quad (1)$$

k : 透水係数

k_{∞} : 形状係数

S : 比表面積

γ : 単位体積重量

μ : 粘性係数

e : 間隙比

Kozeny-Cramanの式のように、一般に透水性 k は間隙比 e の関数になることが知られている¹²⁾。しかし同一の e でも、図-3に示すように個々の間隙が連結している場合と独立している場合が考えられる。(1)式の上では、比表面積の項 S がこのことを表している。すると、同一の e に対しては、明らかに間隙が連結している方が透水性は良くなることがわかる。

ところで、1つの独立した間隙の直径 D_p が一定のときに、 e をどんどん大きくすると(図-4.1のように D_p の独立間隙をランダムにたくさん配置してゆく)、ある間隙比 $e=e_0$ を境に個々の間隙がもはや独立して存在できなくなる(図-4.2)。そして、間隙は互いに連結して間隙クラスターを形成する(図-4.3)。そして、さらに間隙比を大きくすると、ある間隙比 $e=e_p$ で図-5のように間隙クラスターは系全体に連結して一本の水みちができる。このとき間隙クラスターはパーコレート(浸透)したという。このときの e の値($e=e_p$)を浸透閾値(percolation threshold)と呼ぶ。さらに間隙比を大きくすると($e>e_p$)、水みちが沢山できるので、透水性がどんどん良くなることになる。かくして、透水性 k は、間隙比 e の関数となるのであるが、パーコレーション理論では、この $e>e_p$ の状態ではなく、 $e=e_p$ 付

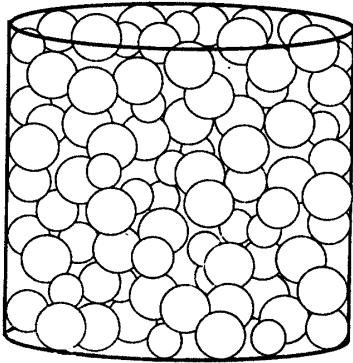


図-1 粒子が多数集まってできた物質

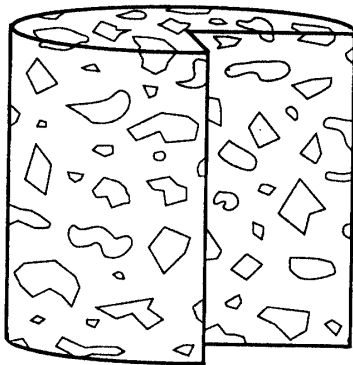


図-2 多項質体

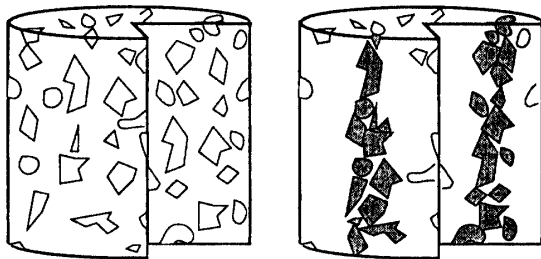


図-3 間隙の独立と連結

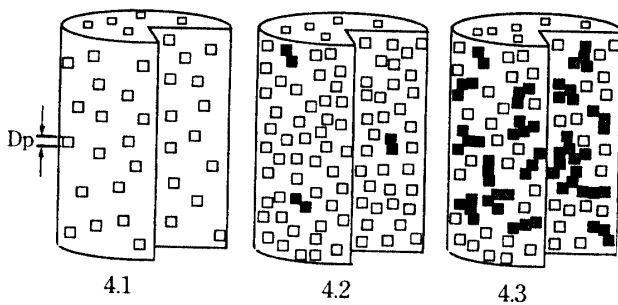


図-4 間隙のランダムな配置

近でそれまで透水性が全く無かった物質内に浸透が突然始まることが議論の中心となる。

パーコレーションという呼び名は、このように間隙クラスターの連結によって水が浸透することに由来しているのであるが、クラスターの連結による物質特性の急変現象は浸透以外にも多くの場面で見られる。

例えば、図-1の物質を、図-6のように圧縮試験器にかけることを考える。すると、今度は間隙の連結ではなく、粒子自身の連結が問題となる。まず、図-7.1に示すように図-6の圧縮試験機の上方の載荷板を徐々に降下させてゆくと、間隙が少しずつ減少し粒子群のパ

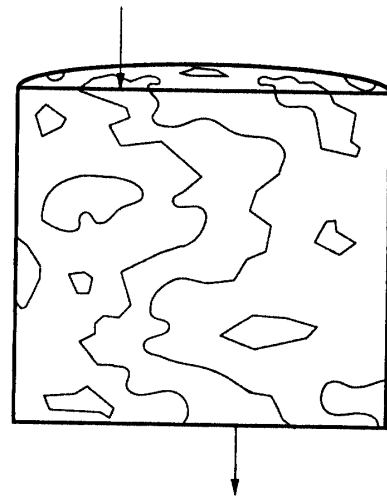


図-5 クラスターの連結

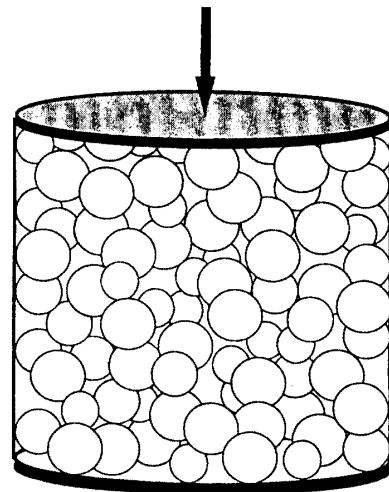


図-6 の物質を圧縮試験器にかける

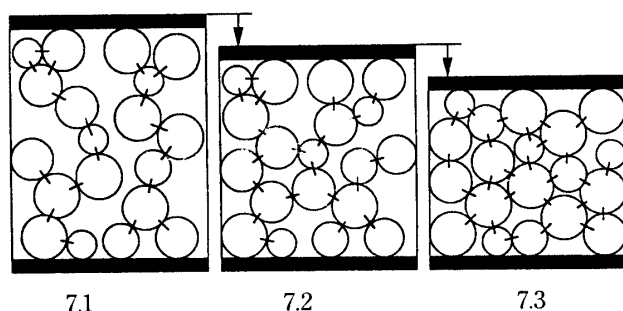


図-7 連結クラスターの増加

ッキングが進行する。すると各々の粒子の接触点数が多くなり、力を伝達する粒子の連結クラスターが大きくなる(図-7.2)。そして、載荷板の変位が進み、図7-3のようにクラスターが上下の載荷板に連結すると、力の伝達のパーコレーションが発生し、物質内部に突然大きな応力が生じ、載荷板の変位と板を押し下げるために必要な力の関係が急激に変化する¹⁹⁾。

このように、パーコレーション理論とは、ある物質や状態量の多数の不規則な分布の中につながりが生じることによって、クラスターを形成するときに、クラスター自身の特徴や生じたクラスターが系の性質に与える影響などを調べる学問である。とくに、クラスターが、対象とする大きさの系全体に広がっているか否かということが、系の特性を決める鍵となっているような問題(相転移に見られるような臨界現象など¹⁷⁾)を対象とする。

2.2 適用例

パーコレーション理論の研究は、その名のように浸透問題から始まったわけではなく、小さな分子の化学結合による巨大分子の形成を説明することにその起源を発する⁶⁾。そして現在では、つながりに関する多種多様な現象に対して、その臨界点の存在や臨界点における状態量の定量的な評価を行うために、幾何学と確率論を中心としたパーコレーション理論が非常に多くの分野で展開されている。以下に、幾つかの適用例を掲げる。

パーコレーション理論は、上述のように分子の重合によるゲル化を起こすための分子濃度を予測したり²⁾、ある目的に応じた化合物を生成する際に、個々の物質の混合比を決定する¹⁰⁾など、化学的な役割のほか、強

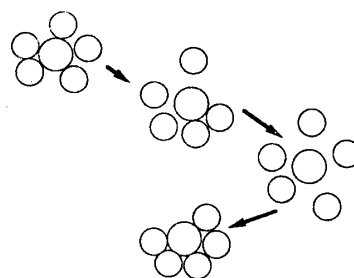


図-8 ラグランジュ的追跡

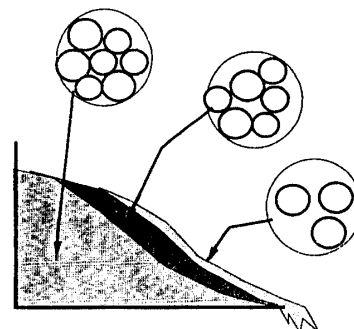


図-9 オイラー的分布

磁性体や超伝導体を生じるための条件を考える⁵⁾など物性物理的な役割も果たす。また、伝染病の蔓延¹⁴⁾や、生態系の変化²⁰⁾、生物の増殖⁷⁾など生物の分野でも、現象の説明や予測に用いられている。さらに、火災の広がり⁹⁾や、緊急時の群衆行動の予測¹⁸⁾、経済効果の波及の問題等¹⁾、社会科学の領域にも適用されている。

このようにパーコレーション理論の応用範囲はかなり広く、ランダム構造の中につながりと臨界現象の関係の奥深くにある法則を示すための重要な考え方と言えよう。

2.3 本研究における位置付け

1節で紹介したように、筆者らはここ数年来、粒状体の流動に関する基礎的な研究に携わっている。ところが、粒状体に関する研究の歴史はそう浅くないにもかかわらず、粒状体には未知なことが多い。未知というより、未整理と呼ぶべきことが多く残されている。その最も大きな理由は、現象を包括的に記述できる道具が未だに見当たらないためである。具体的に述べると、理数系の人に馴染みの、線形微分方程式で表される支配方程式や連続の式では記述ができないことが多すぎるのである。特に、流動などの運動量を伴う粒状体の流動問題では全くお手上げの状態である。

粒状体は、個々の粒子が周辺の粒子と接触した状態と、接触していない状態では挙動が激変するといった

極めて離散的な性質をもっている。一つの粒子の接触状況をラグランジュ的に追跡すると、状況によって、粒子は単独に運動したり、他の粒子と多数の接触点を共有して固体結晶のような構造を作ったりしながら流動している（図-8）。また、オイラー的にシステム全体を見渡すと、接触点が多く固体的な振る舞いを示す領域と、単独運動の多い流体的な挙動を示す領域が複雑に混在している（図-9）。このことが、現象の記述を困難にしている根本的な原因ではないかと考えられる。

そこで、粒状体の挙動を把握するためには、まず、所与の条件下（できるだけマクロな条件）でランダムに分布する粒子の接触とその連結特性を正確に知っておく必要がある。そのために、パーコレーション理論は持ってこいの道具である。なぜなら、粒状体について実際にコントロールしたり測定できる量は、フラクシオンぐらいで、個々の粒子の位置をすべて正確に把握できるわけではないので、本質的に統計的な扱いが必要であるからである。

3. 混合粒径粒子のパーコレーション

3.1 混合粒径の持つ特性

粒状体は、フラクシオンや全体の体積、密度また、個々の粒子の物性が等しくても、粒度分布によって流

動に関する性質が異なることがある。例えば、同一の材質で平均粒径の異なる2つの粒状体を混合し、ホッパーから排出流動させると、図-10に示すように流量を最大にする混合比があることが知られている¹¹⁾。また、筆者の一人はこれまでに、局所的なフラクシオンの分布やシステムの中が持つ特性長さを調べた結果、やはり粒径の異なる粒子の混合によって粒状体の持つ運動学的特性が異なることを確認している¹⁵⁾。

ところで粒状体を構成している粒子は、本質的にその粒径が揃っていないと考える方が自然である。なぜなら、どんなに精度よく粒径を調整した材料でも、粒子毎に多少のキズや凹凸などimperfectionが含まれているからである。また、土質工学の分野で扱われているいわゆる粒状体と呼ばれる砂や礫などには、明らかに粒度分布がある。しかし、既存のパーコレーション理論ではこのような個々の粒子の大きさを考慮した例が無い。

ここでは、特に、大きさの異なる2種類の粒子をランダムに格子の上に配置させ、ある領域の範囲でパーコレートするときの閾値について調べる。

3.2 数値解析手法

本研究では、図-11に示すように、縦80、横80の正

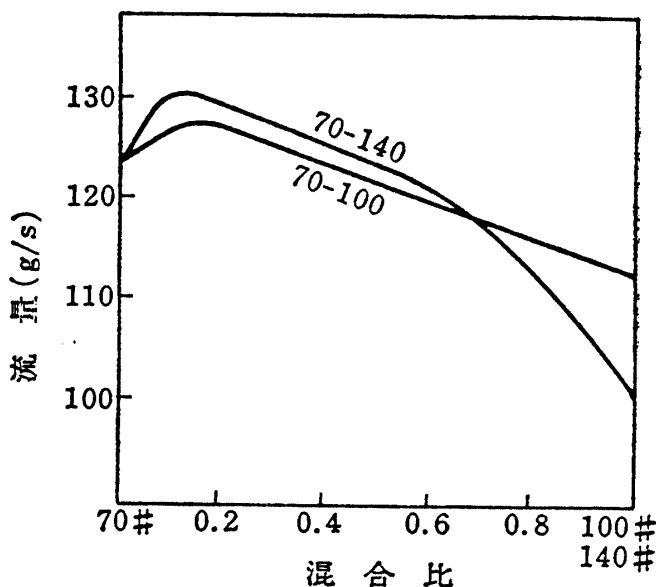


図-10 混合粉体の流量¹¹⁾

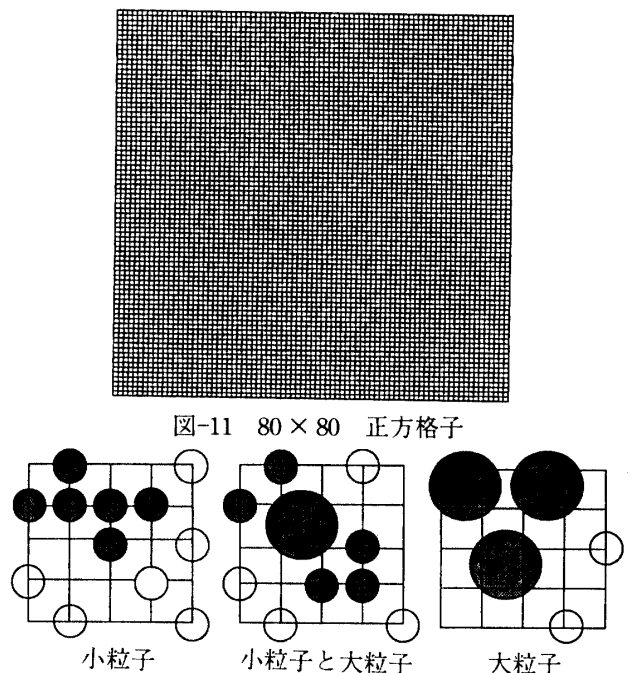


図-11 80×80 正方格子

図-12 粒子配列の例

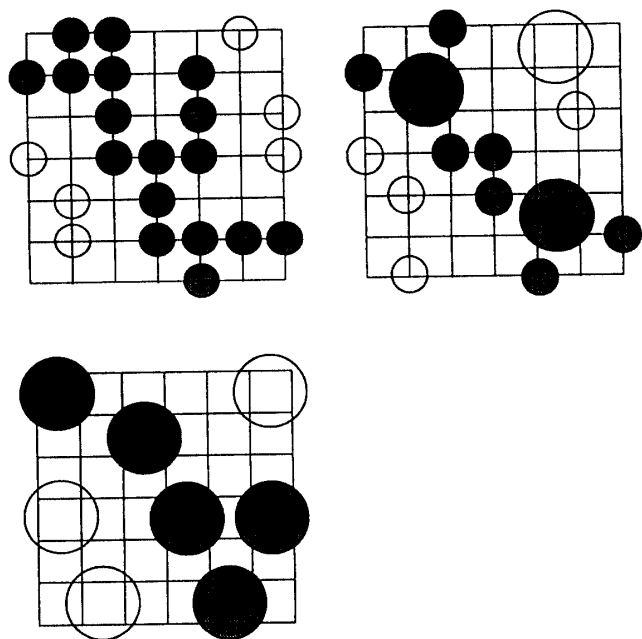


図-13 パーコレートのパターン

る。粒子の大きさの違いは、図-12にあるように、1格子を占める要素（以下、小粒子と呼ぶ）と、正方形に並ぶ4つの最近接格子点を束ねて4格子を占める要素（以下、大粒子と呼ぶ）で表現する。パーコレーションの閾値は、以下の手順で求めた。まず、大粒子と小粒子の混合比は占有格子数比（例 大：小 = $A : B$ ）で与える。また格子占有率 p を与え、

$$4N_L : N_s = A : B \quad (2)$$

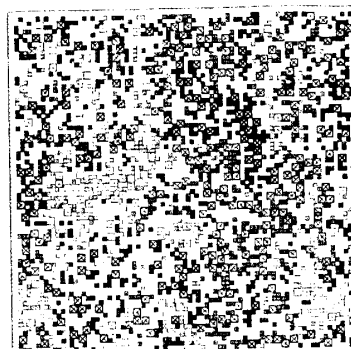
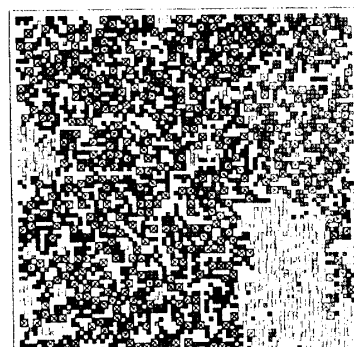
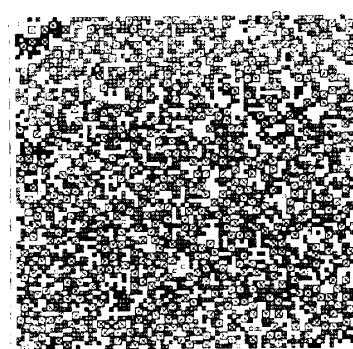
$$(4N_L + N_s) / (80^2) = p \quad (3)$$

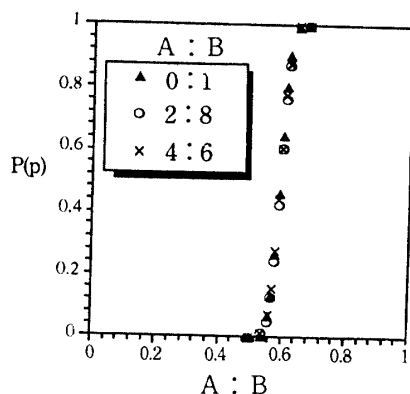
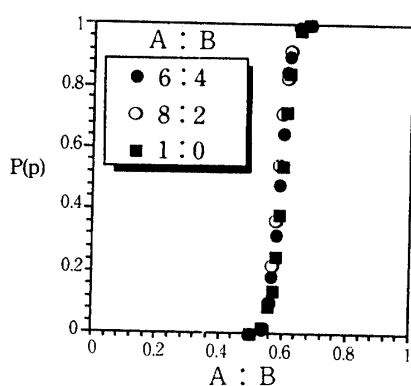
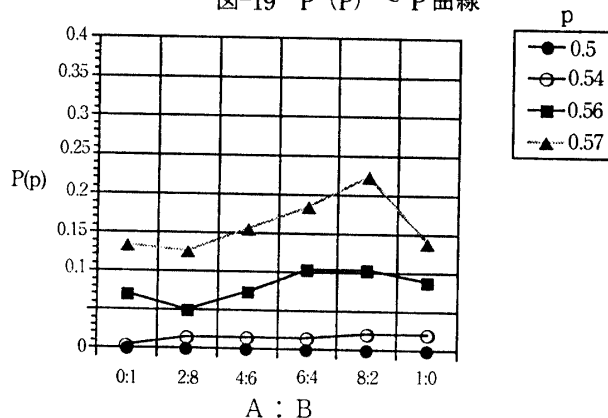
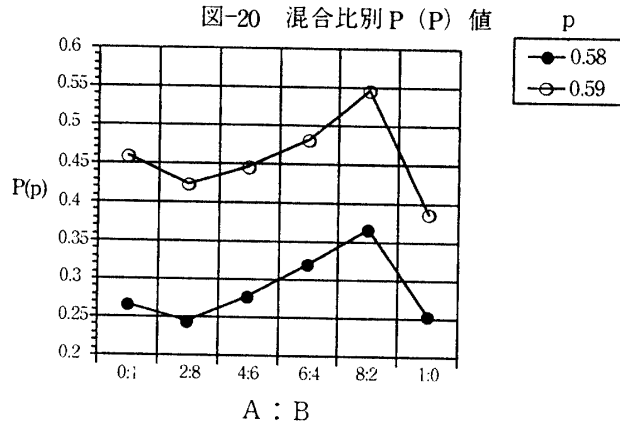
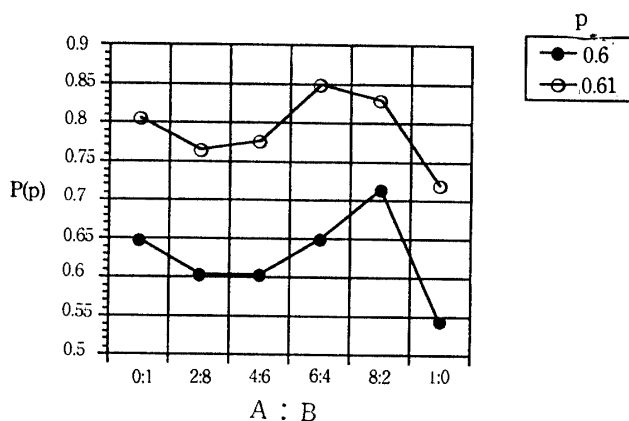
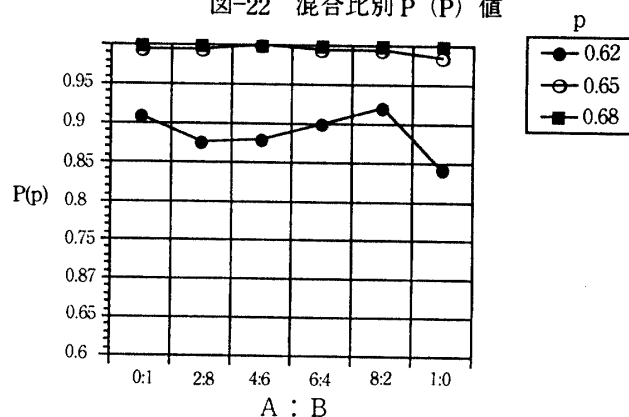
の2つの式から大粒子の数 N_L と小粒子の数 N_s を決める。

大粒子 N_L 個と小粒子 N_s 個を図-11の格子上にランダムに配置してゆき、上下及び左右の2辺間でのパーコレートの有無を調べる。図-13に小粒子のみ、小粒子と大粒子の混合、大粒子のみでパーコレートしたときのパターンの一例を示す。1組の (A, B, p) に対して、各1500回この手順を繰り返し計算し、パーコレートした回数 M を数える。そして、最終的に求めるべき量である浸透確率 $P(p)$ を次の式で与える。

$$P(p) = M / 3000 \quad (4)$$

（ただし、分母は上下及び左右の2辺のパーコレートを別々に数えるため $1500 \times 2 = 3000$ とした）

図-14 $p = 0.45$ 図-15 $p = 0.50$ 図-16 $p = 0.60$ 図-17 $p = 0.65$

図-18 $P(p) \sim P$ 曲線図-19 $P(p) \sim P$ 曲線図-20 混合比別 $P(p)$ 値図-21 混合比別 $P(p)$ 値図-22 混合比別 $P(p)$ 値図-23 混合比別 $P(p)$ 値

3.3 結 果

3.3.1 格子占有率 p による変化

図-14, 15, 16, 17に大粒子と小粒子の混合比を一定にして ($A:B = 1:1$), 格子占有率 p だけを変化させた場合に生じたクラスター分布の例を1つずつ挙げた。各図では、隣接する独立したクラスターに色分けが施してある。 $P=0.60$ のケースで上下間でパーコレーションが生じていることが分かる。

3.3.2 混合比による閾値の変化

図-18, 19に $A:B$ 毎の p と $P(p)$ 関係の曲線を示す。2つの図から、殆どすべてのケースで、浸透閾値の p は 0.52 付近であることが読み取れる。また、 $p=0.66$ 付近で $P(p)$ は 1, つまり完全にパーコレートする。図-18, 19では、 p が 0.6 付近で急激に浸透確率が上昇していることがよくわかる。つまり、この付近に臨界点があることを示している。

ところが、図-18, 19では、グラフの変化が同じ場所集中しているために、粒子の混合比 $A:B$ による違いが見えにくい。そこで、図-20, 21, 22, 23に混

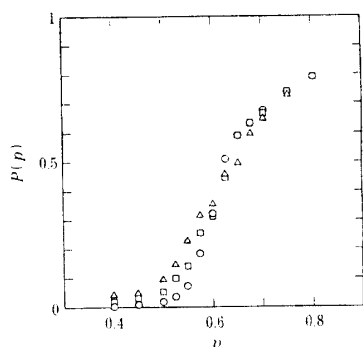


図-24 正方格子の浸透確率を $25 \times 25(\triangle)$, $50 \times 50(\square)$, $100 \times 100(\bigcirc)$ の格子に対して求めたもの。¹³⁾

合比と浸透確率の関係を格子占有率をパラメータとしてプロットした。

4. 考察

先の結果について考察を行なうに当たり、まず今回のシミュレーションで用いた 80×80 の格子についての妥当性を考える。図-24を見ると¹³⁾、格子の数が増加するに従い、 $P(p)$ - P 曲線の勾配が急になっていく。ここでの $P(p)$ は、最大クラスターの大きさと系の大きさの比で表されており、 $P(p)$ の変曲点は浸透閾値の近似値を与えるものである。系を大きくするにつれ近似の精度は上がる。つまりパーコレーションモデルでは格子数が増加するほど精度が上がる事が知られている。ここでは、計算時間の短縮を重視し、また粒子の占有格子数比 (1:4) を考慮して 80×80 の格子を選んだ。格子数が小さすぎると $P(p)$ - P 曲線の勾配は緩やかになるが、図-18, 19を見る限り、そういった格子数の不足による勾配の緩さは認められず、また大小の粒子を混合させることによる勾配のばらつきも見られないことから 80×80 格子を用いることは妥当であるといえる。

今回のシミュレーションにおける粒子の発生方法は、ある確率 ($P_L = p \times N_L / (N_L + N_S)$) で所定の格子に大粒子を発生させ、空いた格子に確率 ($P_S = 1 - P_L$) で小粒子を発生させるものとする。従って最初は大粒子を全くランダムに発生させているわけであるから、小粒子の配置は、大粒子の配置の影響を受け、いつも大粒子の隙間を埋めるようにしか配置されていない。

次に大粒子の発生確率を増加させて(ここではAの値を大きくすることを意味する)シミュレートした結果について検討する。例えば、図-20, 21, 22, 23で

グラフの傾きが正の部分では、大粒子が多くなるとパーコレートする確率が高くなっている。これは、大粒子は必ず4つの隣接した格子を占有しているの、粒子を1つ発生させる毎に縦および横方向のパーコレーションに関係するそれぞれ2格子分の枝を有するため、小粒子のみの場合よりもパーコレートする確率が高くなったものと考えることができる。

しかし、ここで考えている発生確率 p は粒子の個数ではなく、全格子数と占有格子数から求めているので、大粒子を多数発生させることとパーコレートしやすいと言うことが一義的に結び付くわけではない。つまり、大粒子1個は小粒子4個に相当する格子を占有するので、大粒子を発生させることは同時に橋渡しの役割を担う小粒子の発生を制限させていることになっている。だから、大粒子が過渡に存在するとかえって、パーコレートする確率が下がることが考えられる。それが証拠に、図-20, 21, 22, 23を見ると、殆どのケースで $A:B=8:2$ の部分を境に $P(p)$ の傾きは突然負に転じている。この $A:B=8:2$ の点はとりも直さず、大粒子と小粒子の個数比が1:1の点である。この辺りに、大粒子の存在が無駄な領域を作ってしまう臨界点があるものと思われる。また、一連の図では、グラフの左端でも、やはり減少の傾向が見られるが、これは、大粒子が少し混入したことによって、小粒子だけでうまくパーコレートできていた平衡が崩されるために起こったのではないかと予測される。

5. まとめ

本論文では、物質の配置に関わる幾何学特性が、その物質の性質を左右していることについて触れ、その配置も、一件ランダムに見えても、それぞれの相互作用で、何らかの幾何学的制約を受けていることについて述べた。また、この幾何学的制約によって、状態量に臨界現象が引き起こされることに注目し、パーコレーション理論の重要性を説いた。

6. 参考文献

- (1) 相沢洋二, 別冊・数理科学, 形・フラクタル, pp. 133-139.1986
- (2) CHANG, K. C. and ODAGAKI, T., *Stat.Phys.*35, pp. 597, 1986.

- (3) CRICK, F. H. C., and WATSON, J.D., *Ciba Foundation Symp., London*, 1957.
- (4) キューザック, N.E. 著, 遠藤裕久, 八尾誠訳, 構造不規則系の物理 (1), 第1版, 吉岡書店, 京都市, 1994.
- (5) DAVIDSON, A. and TINKHAM, M., *Phys. Rev. B*13, pp. 3261, 1976.
- (6) DEUTSCHER, G., Zallen, R., and Adler, J., *Percolation Structures and Processes, Annals of the Israel Physical Society* 5, Bristol : Adam Hilger, 1993.
- (7) 土居洋文, 西尾英之助, 別冊・数理科学, 形・フラクタル, pp. 161-171, 1986.
- (8) 保坂康弘, ウイルス学 (渡辺格, 高野利也編), 講談社サイエンティフィック, pp. 5-13, 1980.
- (9) 堀素夫, 別冊・数理科学, 形・フラクタル, pp. 63-70, 1986.
- (10) JAGOTA, A., *IMM Workshop on Mechanics and Statistical Physics of Particulate Materials*, 1994.
- (11) 川北公夫, 小石真純, 種谷真一, 粉体工学 (基礎編), 第1版, 槇書店, 東京都, p. 129, 1987.
- (12) LAMBE, T. W. and WHITMAN, R.V., *Soil mechanics SI version, John Wiley & Sons, Inc.*, p. 287, 1979.
- (13) 小田垣孝, パーコレーションの科学, 裳華房, p. 24, 1993.
- (14) OHTSUKI, T. and KEYES, T., *Phys. Rev. A*33, pp. 1223, 1986.
- (15) SAKAGUCHI, H., *IMM Workshop on Mechanics and Statistical Physics of Particulate Materials*, 1994.
- (16) SAKAGUCHI, H. & OZAKI, E., *Proc. 2nd. Int. Conf. DEM*, pp.153-163,1993.
- (17) スタウファー著, 小田垣孝訳, 浸透理論の基礎, 第1版, 吉岡書店, 京都市, 1988
- (18) 滝本浩一, 清野純史, 三浦房紀, 八木宏晃, 篠塚研究所研究会報告, 1994.
- (19) TRAVERS, T., BIDEAU, D., GERVOIS, A., TROADEC, J. P. and MESSENGER, J. C. ,*Phys. A*, 19, pp. 1033-1038, 1986.
- (20) Troadec, J. P. and Dodds, J.A., Bideau, D., Hansen (editors), *Disorder and granular media, Elsevier*, 1993.