

# 粒子統計における二三の研究

樋口 伊佐夫

(1964 年 12 月 受付)

## Some Studies in Particle Statistics

Isao HIGUTI

By particles we mean here those, not so small as molecules and not so large as celestial bodies. Statistical methods of treating ensembles of these particles belong to a newly developing field, named particle statistics. This is originated by the problem of particle size measurement, but now concerns more general problems, such as random packing of particles. From my opinion, (1) problems concerning particle size distributions, (2) problem of random packing, (3) statistical mechanics of discrete body are the 3 main categories in the field. Among them (3) is still not cultivated.

In § 1, the particle size distributions are treated in a rather abstract manner. It is pointed out that there can be other types of size-distribution than number- and weight-distributions. These distributions are of the same conceptual structure as the weight-distribution, and some of them are indeed used in practice (but unconsciously!); ex. in the measurement by the light-extinction method the very one which is measured is neither the number-distribution of shadow nor the weight-distribution of STOKES radius, but the particle-shadow-distribution of STOKES radius.

In § 2, the importance of study of random packing is mentioned and some examples by Monte Carlo Methods are also shown. It is interesting that random packings of equal spheres (circles) by rejection method are also affected by the wall and that the spatial density of particles does not become uniform in this case.

Concerning to the practical problem of estimating particle sizes from cross-sectional photographs, a method is shown in § 3. This method is based on the random configuration of spheres and its validity was verified by a model-experiment. An example is also shown in this paper. In this connection, the distribution of cross sectional circle when the distribution of true size is of Gamma type is studied. This distribution function, as well as its density, relates closely to Bessel K-functions.

§ 4 consists of a report on experimental researches on a particle mixing and dynamical properties of discrete bodies by means of model particles.

Institute of Statistical Mathematics

---

\* この研究の一部は昭和 36~38 年度文部省科学研究費“統計的モデル解析に関する総合研究”による。

粒子統計とは、粒子の集団から成る対象を取扱うときの統計的方法のことである。しかし、一口に粒子集団といっても、多種多様で、天体の集団もあれば、素粒子の集団もある。広い意味での粒子統計は、これらの研究における統計的方法を総称するものであるが、ここでは粒子の大きさに関しての両端、すなわち巨大な天体と、分子原子以下の微小なものは一応除外し、いわゆる粒体や粉体を念頭におく。

この範囲の粒子集団は次の二つの点で特徴づけられる。一つは集団を構成している個々の粒子を観察できることであり、いま一つは集団を分割したり、移動させたりすることができる、一口にいて人間が manage できることである。この二つのことは、天体や分子集団とは異なった問題を起し、異なった取扱いを可能にする。——実際にこれらの粒子集団は工作や構築の材料となるので、純科学的な問題の外に工学的技術的問題が多く生じてくる。——そしてまた、対象の多様性にもかかわらず、ある種の基本的性質や、取扱い方において、原理的にかなり共通なものを生ずることとなる。

しかしこのような共通性にもかかわらず、また古来膨大な研究がなされてきているにもかかわらず、科学としての体系がつくられず、基礎的な意味での研究は今世紀の始め頃からは、むしろ進歩の速度が鈍ってきた感がある。これは個別的応用に対する要求が急であったことと、多くの専門分野にわたっているため、一般的な視野、ことに方法論的視野の重要性が認識されなかったためかとも考えられる。この領域の総合的研究開発の必要は恐らく多くの研究者によって感じられていたのであろうが、筆者の知る限り、その著書による体系化への最初の大きな努力は、J. M. Dallavalle によってなされた。彼は Micromeritics (語源は  $\mu\kappa\rho\sigma + \mu\epsilon\rho\sigma$  small part の意) なる分野を提唱し、多くの領域の研究を集めて整理し、1948年に一つの教科書を出版した<sup>1)</sup>。これはもちろん、統計ではないが、これには統計的方法や統計的考察も多く取上げられており、また統計的に取扱うべき素材も多く載っている。——残念なことに、この教科書は統計の面で新しい考え方や成果をかなり落している。これは他の面についてもいえよう。——粉末工業の発展にともなって、この頃からようやく欧米でそれに応ずる統計的方法の研究が処々で進められたようである。1953年、英国の G. Herdan は Hawell 原子力研究所技師の M. Smith と共同で、Small Particle Statistics なる書物を著した<sup>2)</sup>。これは粉体研究におけるデータの統計的解析法を主として体系づけたもので、前述の Dallavalle の書物のような寄せ集めの粗雑さも、陳腐さもないが、現代数理統計をこの分野に適合するように少し裁断しなおしたという色彩が濃く、現象面を後退させて、技術的なことを前面に押出している。

データ解析の技術は重要ではあるが、筆者はそれが統計のすべてだとは考えていない。そして粒子集団を扱う科学の発展のためには、超単一化された (overunified) redy made の現代数理統計学の方法の単なる適用、あるいは easy order 程度の裁断による適用では到底不十分であるように思う。これは通常よくいわれる理論と実際との懸隔といったものではない。また、現象の解析には数の論理に加うるに物の論理が必要であるということのみ起因しているのではない。むしろ理論、数理が欠けていて潜在的要求を満たすことができないのではないかと考えられる。標本から母集団のパラメタに関する推論を行なう方法に定着した現代数理統計が有効に応用される問題は粒子集団の分野にも少なくない。しかしこれだけでは足りない。たとえば現代統計がすでに棄てて顧みなくなった集団記述に関しても解決を待たれる問題がある。これは古い範疇の一問題でなく、新しい未開拓の分野 (たとえば統計幾何学) を開く可能性もある。また方法論として次第に内容を増してきたモデル解析に関し、その妥当性の検討が数理的な面からも行なわれるべきであろう。

もし“統計とは集団解析の方法である”ということを許してもらえらば、(これには異論があるだろうが)、粒子集団は典型的な集団であるから、統計応用の場というよりもむしろ

ろ、上述の意味で、統計理論の発展のための好個の素材といえよう。

粒体粉体といっても、コロイドから砂礫まで種々さまざまで、これに対して単一の方法が有効であるとは筆者は思っていない。むしろ逆である。また単なる数の論理だけで有効な解析ができるとも思っていない。しかし小粒子の領域に対するものと、大粒子に対するものとに別けるほど特殊化された統計的方法はまだ豊富ではない。それで個々の場における応用の研究に、前記の意味の基礎的研究も含めて粒子統計と称するわけである。もしもさらに日常生活にもっと近い断面での統計的方法を加えるならば\*、殆んどすべての統計的方法が粒子統計に含まれてしまうであろう。しかしこれは牽強附会である。取扱う材料が粒子だといって、常に粒子性が問題の本質になるわけではないからである。粒子性が重要な要因である現象で、それを統計的に取扱うべき場合に、それらが粒子統計の対象となる。

粒子集団の種々の取扱い方を統計的な立場で系統だてるには、次の三通りの観点があるだろう。

第一は、構造的な観点であり、(i) 個体の属性に関するもの（平均粒度、粒子形など）(ii) 内部構造に関するもの（パッキングなど）、(iii) 内部構造の変化に関するもの（混合過程など）といった具合になる。

第二は、現象的観点によるものであり、(i) 独立現象（この意味は個体における現象の総和としてあらわれる現象）、(ii) 協力現象（単独個体ではなく、相互作用によって現象）、(iii) 過程現象（(i)、(ii) の何れに対しても）などにわけて考える。

第三は技術的観点によるものであり、(i) 個体属性に従って集団を部分集団に分ける（分離）(ii) その逆に混合する、(iii) 個体を更に細分する（粉碎）、(iv) 個体をあつめる（凝集）、(v) 全体を固める（団結、焼結など）といった分類になる。

この第三は、行為的であり、もっとも実用的なものである。第二はやや主知的であるが、基礎研究の立場からの見方である。第一は第二に殆んど平行しているが、更に基本的な別け方であろう。すべて統計的ではあるが、第三は工学的、第二は物理学、化学的、第一は数学的な見方ということになる。

これら系統的分類は、当面の研究目標を位置づけてははっきりさせるには役立つが、個別的なものだけでは不十分で、総合する方法が入って来なければならない。平たくいえば、粒度を知ることが当面の目的であっても、個体特性（粒度）が全体特性（たとえば焼結物の脆さ）にどういった影響をもつのかがわからなければ、あまり意味はない。また更にそれならばどのようにすればよいものがつくれるかという問題が解決されはじめて実用になる。このことは当然であるが、筆者は第一の観点に立って粒子統計の問題を整理してみることも意味があると考えている。というのは、粉体の問題で、個体特性と全体特性の関係は多く研究されているが、実際定量的にあまりすっきりしたものが少ない。これは集団内部構造に関する考察が欠けているための場合が多いためではないかと思われる。たとえば粒度分布は非常に重要視されて、熱心に粒度分布測定が行なわれるが、パッキングについてはそれほど関心がない。しかし ceramic の電気伝導度とか、脆さは、粒度分布そのものが直接関係するのではなく、パッキング構造を通して関係すると考えられる。ところが従来粒子統計というと粒度分布に関する数理が大部分を占めていた。これは集団の内部構造の研究に適する統計が従来発達していなかったためにもよ

\* 粉粒体製品の大量生産における品質管理、土質改良、人工降雨などの方策、地盤の調査、煙害や河川汚濁などの公害対策、上水の浄化、雪害、霧害等の防止、珪肺等の医学的問題、穀物の貯蔵輸送、炭坑の爆発や石炭山の自然発火等粒子の関係する問題は数え上げればきりが無い。婦人の美容のことも粒子の問題である。

る。これは必要でないからというのではなく、specification が複雑であり、また実際のものについての測定も容易でないからと思われる。しかし徐々に重要性が認識され、研究がすすめられる傾向がある。このような情勢から、今後の粒子統計の発展の必然的なみちすじを示唆するものとして第一の観点の意義があるだろう。以下、このような立場から最近自分の行なった研究を主として述べる。

## 1. 粒度分布とその測定

粒子の集団の場合は、人間の集団の場合などと異なって構成メンバーを個々に測定してゆくことが非常に面倒なことが多く、逆に specify された部分集団をゴッソリ測定することが比較的容易である。測定のこのような様相にもとづいて、粒度分布の概念にも、普通の統計でつかわれている概念（たとえば人間の集団における身長分布など）と同じ意味の数分布 (number-distribution) の他にいわゆる重量分布 (weight-distribution) なる概念が発達してきた。しかし数分布と重量分布以外には存在しないかという、そうでなく、実際にはその何れでもないものが測定されている場合もあるが、漠然と数分布だと思われているようである。

こうした粒子統計特有の種々の分布概念と、集団測定法の基本については、あまり書かれていないので、ここで簡単に述べておく\*。

考察の対象となる粒子集団  $S$  は、 $A_1, A_2, \dots, A_N$  なる  $N$  個の粒子から成るものとする。個体属性に関する統計的性質は、一般に粒子に附随した性質  $X, Y, \dots, Z$  の関数  $F(X, Y, \dots, Z)$  の  $A_1, \dots, A_N$  に関する平均値、

$$Av.\{F(X, Y, \dots, Z)\} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N F(X(A_i), Y(A_i), \dots, Z(A_i)) \quad \dots\dots\dots (1.1)$$

あるいはいくつかの平均値の間にある演算を施して得られる量であらわされる\*\*。粒度や粒度分布もそれである。粒子  $A$  に対してその大きさをあらわす量  $X$  で一意的にきまるものを考える。(最大径とか容積とか)。平均粒度は  $X$  そのものの平均  $Av.\{X\}$  である。一つのパラメタ  $x$  をもつ  $X$  の関数、

$$F(X; x) = D(x - X(A_i)) \quad \dots\dots\dots (1.2)$$

の平均は数分布とよばれる。ここで  $D$  は単位階段関数\*\*\*である。この平均はパラメタ  $x$  を変数として、いわゆる  $X$  の累積分布関数である：

$$F_X(x) = Av.\{D(x - X)\} \quad \dots\dots\dots (1.3)$$

実用的な密度関数は、もち論これを適当に平滑化してから微分したものと考えてべきで、粒子が離散的だから元来の密度関数は存在しない。形式的な演算では密度関数は、

$$f_X(x) = dF_X(x)/dx = Av.\{\delta(x - X)\}$$

(ここで  $\delta$  は DIRAC のデルタ関数) となり、

$$\bar{X} = \int x f_X(x) dx = Av.\left\{ \int x \delta(x - X) dx \right\} = Av.\{X\}$$

となる。\*\*\*\*

\* 内容は昭和38年度日本統計学会で発表したことに重複する部分が多い。

\*\* extensive な性質は平均でなく総和であるが、粒度とか粒度分布など intensive な性質に対しては平均である。

\*\*\* 
$$D(x) = \begin{cases} 0 & x < 0 \\ 1 & x \geq 0 \end{cases}$$

\*\*\*\* 実用的な密度関係の推定にヒストグラム

$$\begin{aligned} & \sum_{n=0}^{\infty} \{F_X((n+1)\Delta x) - F_X(n\Delta x)\} D((n+1)\Delta x - x) D(x - n\Delta x) \\ &= Av.\left\{ \sum_{n=0}^{\infty} D((n+1)\Delta x - X) D(X - n\Delta x) D((n+1)\Delta x - x) D(x - n\Delta x) \right\} \end{aligned}$$

が用いられるのは当然である。

粒子統計における粒度分布にはさらにつぎのような形をとるものもある。

$$\Phi_{X|Y}(x) = Av.\{D(x-X)Y\}/Av.\{Y\} \dots\dots\dots (1.4)$$

ここで  $X$  は粒子の大きさをあらわす量であるが、 $Y$  は  $S$  の部分集団（個々の粒子は一つの粒子から成る部分集団と考える）の族に対して加法的な量である。もち論  $Y$  は粒子属性であるが、必ずしも粒径をあらわすものでなくてもよい。加法的というのは  $S$  の任意の部分集団  $S' = \{A_{i1}, A_{i2}, \dots, A_{ik}\}$  に対し、

$$Y(S') = \sum_{j=1}^k Y(A_{ij})$$

が成立つことである。たとえば容積はこのようなものであるが、粒子径はそうでなく、集団に対して径は更めて定義しなければならない。数学的に加法性をみたとすように定義することができるだけでは駄目で、物理的に意味をもつものとする。このことは後述の測定の方法に関係している。

$Y$  が重量  $W$  のときに  $\Phi_{X|W}(x)$  は  $X$  の重量分布（累積分布関数）となる。 $X$  の意味によって、表面積の重量分布とか、最大径の重量分布とか、種々のものが存在するわけである。 $Y(A_i)$  が粒子  $A_i$  に依存せず一定で、従って  $Y(S')$  が  $S'$  の粒子数に比例する場合を考えると、 $\Phi_{X|Y}(x)$  は数分布  $F_X(x)$  になる。この意味で  $\Phi_{X|Y}$  は数分布の拡張と考えられる。

さて筆者の主張は  $\Phi_{X|Y}$  は  $Y$  について重量と数に限る必要はないということである。（粒子の配向を考えに入れると、やや厳密さを欠くが）、分散された (disperse) 粒子群の遮蔽面積  $M$  は加法的である。 $Y$  として  $M$  をとったものも粒度分布といえるだろう。光透過法による懸濁微粒子の粒度分布の測定において、直接測定されるものは  $X$  を STOKES 粒径としたときの  $\Phi_{X|M}$  である\*。

このように一口に粒度分布といっても多くのものがある。従ってそれらのものの間の変換 (conversion) がいつでも問題になる。変換は数学的に行なわれるのが常で、経験的な変換関数を用いるということはまずまれである。

数学的に行なうといっても、特別な場合を除き、一般には困難である。そこで集団の個々の粒子を、それぞれ容積が等しい廻転楕円体とか、表面積が等しい球とかいった仮想的な粒子におきかえ、仮想集団の分布関数を求め、これを真の集団の分布関数の代りに用いる。このような仮想集団の中にはもとの集団と厳密な関係がないものがある。たとえば不規則な形の粒子に対し、それと重量が等しく、かつ、STOKES 粒径が等しい球は一般には存在しないだろう。しかしこのようなものを考えないと、たとえば沈降法による  $\Phi_{X|M}(x)$  を  $F_M(m)$  にかえることがむづかしい。この事情をもう少し説明しよう。

取扱う実在の集団を  $S$  とし、仮想集団を  $S' = (A_1', A_2', \dots, A_N')$  とする。 $S'$  の上での平均を  $Av$  であらわす。 $F_X(x)$  の測定から  $F_Y(y)$  を導こうという場合、 $S'$  として次のようなものを探る。 $X(A_i') = X(A_i)$  がすべての対応する粒子に対して成立ち、既知関数  $y = \phi(x)$  があって、 $Y(A_i') = \Phi(X(A_i'))$  が  $S'$  のすべての粒子について成立つことが一つ一つ確かめなくてもわかるもの。このような  $S'$  を用いると  $F_X = Av\{D(x-X)\}$  と  $F_{X'} = Av'\{D(x-X)\}$  とが等しいことは明らかであり、 $F_{X'}$  から  $F_{Y'} = Av'\{D(y-Y)\}$  を導びくことは普通の分布関数の変数変換と同じである。問題は、求めたいものが  $F_Y$  であるのに  $F_{Y'}$  で代用せざるを得ないということである。

$\Phi_{X|Y}$  から  $F_X$  を導く場合は  $S'$  として  $X(A_i') = X(A_i)$ ,  $Y(A_i') = Y(A_i)$  で  $S'$  の粒子について  $Y = \phi(X)$  が明らかであるものがあれば、それを用いることになるが、そのような  $S'$  が

\* 全遮蔽面積に対する、STOKES 径が  $x$  以下の粒子群の遮蔽面積の総和である。これは  $F_M(m)$  でも  $\Phi_{X|Y}$  でも  $\Phi_{X|M}$  でもない。

論理的に存在しないときは、変換された分布

$$F_X(x)' = Av.\{Y\} \int (1/\phi(x)) d\Phi_{X|Y}(x) \dots\dots\dots (1.5)$$

がどのような粒子集団の分布になっているのかは厳密には明瞭でない。この  $F_X(x)'$  はもしも上記の条件をみたす  $S'$  が存在しさえすれば  $F_X(x)$  に一致する\*。

このような変換の誤差は測定誤差に比べ通常小さいと信じられ、これによる情報の損失などについてはあまり研究されていない。

粒度分布の測定法を、集団測定の方法として原理的に考えると、大略次の四つにわけられよう。

(i) 個別測定の方法, (ii) 完全分離の方法, (iii) 不完全分離の方法, (iv) 完全非分離の方法

個別測定の方法は、個々の粒子についての測定を集計分類することであって、顕微鏡写真などの測定がこれに属する。この方法ではまず数分布の測定ということになる。

完全分離の方法は、集団を部分集団  $S_1, S_2, \dots, S_m$  にわけて、各  $S_j$  ( $j=1, 2, \dots, m$ ) に対して集団に関する加法的な量  $Y(S_j)$  を測定する。 $S_1, S_2, \dots, S_m$  は互いに粗（共通粒子をもたない）で、各  $S_j$  は粒度特性  $X$  に関し、 $X(A_i)$  が  $x_{j-1}$  と  $x_j$  の間にある粒子  $A_i$  のみからなるものとする。篩い分けはこれに相当する。この方法によれば  $\Phi_{X|Y}(x)$  のヒストグラムを測定することになる。

不完全分離の方法は微粒子の場合に多くつかわれる間接測定の方法で、 $X(A_i) < x_j$  なるすべての  $A_i$  からなる部分集団を  $S_j$  とするとき  $S_j$  を含む集団  $S_j'$  をつくって  $Y(S_j')$  を測定するものである。 $S_j = S_j'$  のときは  $S_j'$  は粗ではないが、 $Y$  の加法性から  $Y(S_j') - Y(S'_{j-1}) = Y(S_j' - S'_{j-1})$  で  $S_j' - S'_{j-1}$  が互いに粗になるので完全分離の場合の取扱いに帰せられる。問題は  $S_j' \neq S_j$  の場合である。 $S_j'$  のかわりに  $S - S_j$  を含む集団  $S_j''$  をつくることが多いから、その場合について述べる。

$Y(S)$ ,  $Y(S_j'')$  またはその比が測定される。 $Y(S_j)$  をそれから求めることができれば完全分離の方法に帰せられるから、問題は  $Y(S_j)$  を求めることである。

$$S_j'' = (S - S_j) + R_j$$

とすると、 $Y$  の加法性から容易にわかるように、

$$Y(S) - Y(S_j'') = Y(S_j - R_j)$$

$S_j, R_j$  従ってまた  $S_j - R_j$  には  $x_j < X(A_i)$  なる  $A_i$  は入っていない。そこで  $Y(S_j - R_j)/Y(S_j)$  が  $x$  の関数としてわかれば困難はないが、一般にそれは望めない。しかし  $S$  における個々の粒子が  $R_j$  に属するということが、粒子について独立な偶然事象と考えられるならば、この確率の場合における  $Y(S_j - R_j)$  の期待値は  $\sum_{i=1}^N (1 - P_r(A_i \in R_j)) D(x_j - X(A_i)) Y(A_i)$  となる。従ってもし  $P_r(A_i \in R_j)$  が  $X(A_i)$  の値のみに依存する既知関数  $p(X)$  としてわかれば、

$$\frac{Y(S_j - R_j) \text{ の期待値 }}{Y(S)} = \frac{Av.\{(1-p(X))D(x_j - X)Y\}}{Av.\{Y\}}$$

となるから、この左辺を測定値に等しいとおいた式

$$1 - \frac{Y(S_j'')}{Y(S)} = Av.\{(1-p(X))D(x_j - X)Y\} / Av.\{Y\}$$

\* 証明: もしも  $S'$  が条件をみたせば、明かに  $Av\{Y\} = Av'\{Y\}$ , また、 $d\Phi_{X|Y}/dx = Av\{\delta(x-X)Y\} / Av\{Y\}$  であり、この右辺の  $Av$  は  $S'$  の上の平均  $Av'$  におきかえてよく、また  $S'$  では  $Y = \phi(X)$  であるからデルタ関数の性質から上記 (1.5) の  $F_X'(x)$  は  $Av'\{D(x-X)\}$  に等しくなる。そしてそれが  $Av\{D(x-X)\}$  に等しいことは  $S'$  のつくりかたから明らかである。

から  $\phi_{x|Y}$  を推定する方策がみつかる。すなわち、多くの  $S_j''$  に対する  $Y(S_j'')/Y(S)$  の測定値から一つの  $x$  の連続関数  $Y(S''(x))/Y(S)$  をつくる。これに対しては上式は、

$$1 - Y(S''(x))/Y(S) = \int_0^x (1 - p(x)) d\phi_{x|Y}(x)$$

となる。 $p(x)$  が物理的考察により理論的に求められるときは、この積分方程式を(数値的に)解いて  $\phi_{x|Y}(x)$  を求めることができる<sup>3)</sup>。分離沈澱法\* (重力沈降、遠心力沈降) はこの方法にあたる。この方法による誤差は測定の技術にともなうものの他に、 $p(x)$  の理論仮定、 $Y(S'')$  の連続化などによるものも相当に入ってくる<sup>4)</sup>。

完全非分離の方法は、測定条件を変えたときの測定値の変化が粒度に依存する量を選んで、刺激(測定条件)のパラメタと応答の粒度依存の関係が知られているとき、応答の強度分布を逆変換するものである。この方法の根拠には部分集団族に関して応答が線型加法的であるということがある。超微粒子、高分子(分子量分布)などに対する音響法、緩和スペクトルの方法、流動複屈折法などがこれに属する。流動複屈折法の場合は二つの応答の比が測定される。すなわち条件  $\alpha$  のときの応答を  $R_1(S, \alpha)$ ,  $R_2(S, \alpha)$  とすると、

$$\begin{aligned} R_l(S, \alpha) &= Av. \{R_l(A, \alpha)\} = \int Av. \{\delta(x-X)\} \phi_l(x, \alpha) dx \\ &= \int \phi_l(x, \alpha) dF_x(x) \quad (l=1, 2) \end{aligned}$$

ここで  $\phi_l(x, \alpha)$  は  $X=x$  なる粒子のみよりなる集団に対する応答である。 $R_1(S, \alpha)/R_2(S, \alpha)$  の種々の  $\alpha$  に対する測定値から  $F_x$  を求めることは、数値的には斉次の連立一次方程式をとくことに対応し、安定した解を得ることがむづかしいことが多い。分布測定の方法として非分離の方法は、一般に測定時間は少なくすむが、感度が鈍く、今後の開発に待つべきものが多い。

もしも  $\phi_l(x, \alpha)$  が  $\alpha$  によってきまる  $x_0(\alpha)$  以上の  $x$  に対して 0 となるならば、本質的には不完全分離の方法で完全分離に帰着できる場合となる。測定技術のことを別とすれば、こうした方法が完全非分離の方法にまさることが当然期待される。東大野田春彦教授と船越浩海氏によって開発されている廻転電場による廻転拡散係数分布測定法\*\*はこれに相当する。

粒子統計で扱う集団は一般に個体数が非常に多く、小標本によるサンプリング誤差は問題の中心ではない場合が多い。(顕微鏡による測定には勿論そのような問題が重要であることも多いが)。そのことに考えをあわせて、ここでは集団平均を前面に出して分布を眺めてみたのである。

測定される集団がさらに大きな集団の一部であること、すなわち標本であるという本質は粒度分布の場合もかわらない。被測定集団を一つの個体とみて、大きな集団から、このようなものをいくつもとって推定するのなら、普通の統計の方法が適用されよう。測定が簡単なものであればこれが用いられる。しかし分布の測定となると一般には、そう簡単に多数の集団について測定するわけにゆかない。このときに問題は大きな集団内における均一性である。これは集団の内部構造であるから少し深く考えると仲々にむづかしい問題を含んでいる。

分布関数ではないが個体特性の平均として考えられるものに次のようなものがある。

集団  $S$  中の特別な集団  $S_0$  に対し、 $S_0$  の特性関数  $C(A_i \in S_0)$  ならば  $C(A_i)=1$  さもなくば  $C(A_i)=0$  を用い、

\* Method of Separate Precipitation: 牟田明徳氏の命名による。

\*\* 未発表

$$\Psi_{z|Y}(z, \Delta z; S_0) = \frac{Av.\{D(z+\Delta z-Z)D(Z-z+\Delta z)CY\}}{Av.\{D(z+\Delta z-Z)D(Z-z+\Delta z)Y\}}$$

をつくる。ここで  $Z$  は粒子の intensive な性質である。もち論分母が 0 でないところだけで考える。これは粒子選別において重要な量であり<sup>5), 6)</sup>,  $\Delta z \rightarrow 0$  の場合、すなわち、

$$\Psi_{z|Y}(z; S_0) = \frac{Av.\{\delta(z-Z)CY\}}{Av.\{\delta(z-Z)Y\}}$$

を  $z$  の関数として、 $Z$  が比重、 $Y$  が重量のとき Tromp 曲線とよばれるものになる。これに関しては専門家の間で概念上の混乱からくる不明瞭な議論が、約 10 年ほど前までは行なわれていたのである。

ここで述べたような、分布関数やその測定についての抽象的な概念的分類は、実際には殆んど役に立たないことである。しかし実際場で定性的考察で簡単にわかることが概念の混乱のために不明瞭になることもある。たとえば、LAMBERT の式を用いる光透過法で粒度分布を測定するとき、測定法が不完全分離法であることと、測定しているものは STOKES 径の遮蔽面積分布であることに着目すれば、吸光係数補正の省略による誤差に関し、容易につぎの結果が導びける。吸光係数\* が粒度に依存しないときは、吸光係数補正を省略しても、推定に何ら影響をもたない。吸光係数が分布の全域にわたり 1 より大で粒度の増大とともに減少するときは、これを省略すると得られる分布は真のものより小さい方にかたよったものになり、平均粒度は過小評価される。

## 2. ランダムパッキング

パッキングは粒子の空間的な配位 (configuration) のことであって、集団の内部構造に関するものであるから、粒度や粒度分布とは本質的に別のカテゴリーに属する概念である。分布は集団の構成要素を一たんバラバラにしてから、ある基準によって集めなおす操作を基にした概念である。これに反し、バラしては失なわれる特性に関与するのがパッキングである。パッキングの研究手段には分布概念がつかわれるが、元来、分布とは別ものである。これは統計概念として発達していないが、将来は何らかの形に集約されて、分布概念を補なうものとして、単に粒子統計のみならず、各方面に用いられるようになるものと思われる。

パッキングの研究は、以前は球の規則的充填が基調であった。ランダムパッキングに着目してこれを重視するようになったのは約 20 年ほど前からのようである。しかし主として充填率だけが問題にされ、パッキング構造には関心が払われなかった。しかし次第にその重要性が認識されるようになったようである<sup>7), 8)</sup>。

オランダの PHILIPS 研究所では 1950 年頃からランダムパッキングの統計的性質をある種の数学的方法で近似する研究が行なわれている。Bourdijk は等大球について、Wise は対数正規型粒度分布をもつ球について、更に最近 Hogendijk は径が 5 種類までの球について研究を行ない、伝統がつくられつつあるように見える<sup>9)-11)</sup>。

筆者は 5 年ほど前に、16 種の大きさのベアリング用ボールを用い、粒度分布が対数正規型に近い球のランダムパッキングを円筒容器内につくり、これをパラフィンでかためて断面について種々の統計量を測定し、一方、粒子の位置は互いに独立として重なりあい許し、大きさは仮定された粒度分布をもつ母集団からのランダムサンプルであるような数学的モデル\* による計算とを比較した<sup>12)</sup>。

あとで知ったことであるが、丁度そのころ物理学者 Bernal は液体構造の研究に、等大球に

\* 容器中の粒子の個数は実験値と等しくとる。従って充填率は与えられたものとする。実験に用いる粒子の割合は数学的仮定の粒度分布に近似させる。



よるランダムパッキングの重要性を指摘し、筆者の用いた方法と殆んど同じ手段で等大球のパッキングをつくり、更に各粒子の空間位置を測定し、測定値を計算機に入れて、たとえばラザアル分布を計算するといった彼のいう hybrid 法を行なった。彼は更に“japanese paint”を用いて、球の接触点の個数分布について結果を得ている<sup>13)</sup>。

その頃から電子計算機による Monte Carlo 法での研究が進み出した。とはいっても計算機の容量、速度の制約および計算手続きの繁雑さのため、現状では頭にえがいたモデルに対して、さっと答を出せるといった段階に来ていない。しかし計算機の進歩とともに発展するであろう。デジタル計算機の発達がどのように進むのか筆者には予断の能力がないが、図形には本質的に弱いようだから、適当な hybrid method を考案することがパッキングの Monte Carlo 法の発達にとって望ましい。

計算機によるランダムパッキングの構成法としては、筆者の知る限りでは、(1) 棄却法 (rejection method), (2) 局所移動法 (method of local displacement), (3) 割り込み法 (intrusion method), (4) 落下法 (method of falling-particles), (5) 成長法 (method of particle growth) などがある\*。

Monte Carlo 法は実際のものの simulation として意義のあるものであるが、一方、ランダムパッキングを論理的に明瞭に、しかも容易に定義する方法を与えるものとしての意義も大きい。そのことについて少し述べよう。

パッキングは一つの幾何学的対象であるから、純粹に数学的に定義されるものである。事実、“数の幾何学”ではパッキングという概念がつかわれているが、空間は一般の  $n$  次元実ユークリッド空間を考えるものの、同じ図形のパッキング (合同図形を平行移動させたもののあつまり) のみを考えている。粒子集団のパッキングは空間は 3 次元であるが、粒子は形も大きさも向きもさまざまであるから、数学的に定義するなら次のようにいわねばなるまい。

空間  $R$  (三次元までの実ユークリッド空間) の中の点集合  $\varphi$  の各点に変換  $B$  を施して得られる写像点の集合を  $B\varphi$  とあらわすものとする。 $R$  の集合  $\mathcal{S}$  と、原点を含む点集合  $\varphi_1, \varphi_2, \dots, \varphi_r$  および運動 (鏡映を含まない合同変換)  $B_1, B_2, \dots, B_s, \dots$  があって、点集合の集まり  $\Pi = \{B_1\varphi_1, \dots, B_s\varphi_r, \dots\}$  で、(i)  $\Pi$  に属する集合はすべて  $\mathcal{S}$  に含まれ、(ii) それらは互いに共通点をもたず、(iii) すべての  $\varphi_i$  に対し、それに  $\{B_j\}$  のどれかの変換を施したものが  $\Pi$  に含まれるとき、 $\Pi$  を  $\mathcal{S}$  中の  $\varphi_1, \dots, \varphi_r$  のパッキングという。ここで  $\varphi_i$  はすべて有界で単連結の集合としてよい。

パッキングはこのような存在概念であるが、ランダムパッキングはそれをつくる操作を基にして考えないと、はっきり定義する方法が今のところみつからない。パッキングをつくるということは  $\mathcal{S}, \{\varphi_i\}, \{B_j\}$  が与えられているときに上記の条件をみたす集合の集り  $\Pi$  を一つ選び出すことであるが、ランダムパッキングは選び出す操作に何らかの偶然性が入ったものである。この場合条件 (iii) は除く。こうした偶然性は、確率空間、確率測度の言葉で数学的に表現されることが望ましいが、一般に物理的イメージが先行するので、それを数学的に表現することは複雑である。しかし、この image を Monte Carlo 法の計算 procedure にうつすこ

\* このうち成長法は実際計算機で行なわれているかどうか知らないが、Pielou が植物生態学における集団測定のためにコンパスで製図して実行したものである。物理で液体構造の研究につかわれる場合は等大球で、二次元の (等大円) の場合が多いようである。Round と Newton によって考えられた割り込み法は、密な coherent なパッキングをつくるのに上手な方法である。最近筆者の研究室の白水は落下法で粒子が堆積に接触した後も、堆積の表面に沿ってポテンシャルの谷までおちこんでゆく場合の二次元パッキングのプログラムをつくった。残念なことに三次元の拡張法が困難である。大い粒子が球 (円) であるのに反し、Vold は棒状粒子を simulate するものとして、串ざし団子状に球を一直線につないだものについて沈降容積解析の計算を行なっている。(三次元、落下法)

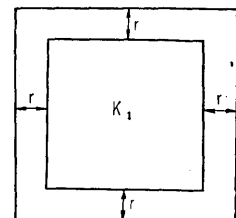
とは割合容易である。(どんな複雑な命令も論理的に矛盾のない限り計算機は実行し、かつ計算時間は問わないとする)。これによって image は論理的に正確なものとなる。つまり ALGOL 思想による formulation をする。もち論、このようなことだけで充分ではない。等価な class をみつけたり、パッキングの統計的性質の間の関係をはっきりさせるために厳密な確率論的研究が必要である。

筆者はさきの研究以来、パッキングに関してあまり研究を行っていないので、新たに報告すべきほどのものはないが、TSK III が統計数理研究所に設置された際に、試みにモンテカルロ法でわずかばかり計算を行った。スチールボールの実験は非常に労力を要するので、計算機に肩代りさせたいと思ったのである。まず、簡単に棄却法でパッキングをつくることを思いついた、この方法でつくられたものは密ではない。従って剛球実験には到底対応しないし、また実際問題でこれが応用される場合は(狭義の粒子統計の対象では)少ないように見える。実際に近い方法をと考えてはみたもののよい思案も浮ばないままに、とに角このような簡単明瞭な構成法による場合に統計量、たとえば充填率がどうなるかということを知るのも無駄ではあるまいと考え、少し試算を行ってみたのである。これについて述べよう。

計算機でランダムパッキングをつくるというのは、乱数(最初は一般に一様乱数)を次々に変換して、粒子の位置、大きさ、向きをあらわす数の組をつくることであるが、一定の条件の下で一定の手続きでつくられる全体が目的のパッキングであって、個々の組によってあらわされるパッキングはサンプルパッキング  $\Pi$  である。サンプルパッキングをつくるとき一つ一つ粒子をつけ加えてゆくことが多い。 $n$  番目までの粒子でできた粒子のあつまりは(サンプル)部分パッキング  $\Pi_n$  ということにする。 $n$  番目につけ加わる粒子を  $\pi_n$  とすると、 $\Pi_n$  は  $\Pi_{n-1}$  の数値はかえないで単に  $\pi_n$  の数値をつけ加えたものになっている場合とそうでない場合がある。前者は象徴的に  $\Pi_n = \Pi_{n-1} + \pi_n$  後者は  $\Pi_n = \Pi_{n-1}'(\Pi_{n-1}, \pi_n) + \pi_n$  と書ける。棄却法は前者である。 $\pi_n$  の数値にしようとして取上げられる乱数によってあらわされる粒子はテスト粒子とよばれる。テスト粒子が  $\pi_n$  として採用される確率は必ずしも 1 ではない。しかし  $\Pi_{n-1} \rightarrow \Pi_n$  の間において、採用されないテスト粒子は、通常  $\Pi_{n-1}$  に何ら影響を及ぼさず、合格の確率は、 $\Pi_{n-1}$  のみに依存するものとする。テスト粒子を  $\tau(\Pi_{n-1})$ 、その合格率を  $P(\tau(\Pi_{n-1}))$  とあらわす。よく定義された、パッキング構成においては、サンプル生成の過程( $\Pi_1, \Pi_2, \dots$ )の全体から、確率空間が構成されよう。各系列  $\Pi_1, \Pi_2, \dots$  が有限のとき、最後の  $\Pi_i$  はもはやテスト粒子を受け入れない状態で、これを完全パッキング (full packing) というが、棄却法では特別の場合をのぞき完全パッキングをつくるためのプログラムをつくるのが非常に困難である。また  $n$  の増大とともに  $P(\tau(\Pi_{n-1}))$  が減少するので完全パッキングに近づくためには非常に時間がかかる。このあたりの事情をつかんでおいて大体完全パッキングに近くなっていると考えられるまで行うプログラムをつくるのが、予備テストの目的の一つであった。

#### (a) 二次元単位正方形の容器に等大円をつめる場合

円の半径を  $r$ 、容器を  $K$  とし容器の周囲から幅  $r$  の廻廊をのぞいた領域を  $K_1$  とする。各テスト粒子の中心は  $K$  内で一様分布とする。 $\pi_n$  の半径を 2 倍にした同心円を  $\pi_n^*$  とすると、 $\tau(\Pi_0)$  はその中心が  $K_1$  に入れば合格、入らなければ不合格、 $n \geq 1$  については  $\tau(\Pi_n)$  がその中心が  $K_1 - \bigcup_{i=1}^n \pi_i^*$  に入れば合格、入らなければ不合格である。集合の容積(この場合面積)を  $I$  であらわすと  $P(\tau(\Pi_n)) = I(K_1 - \bigcup_{i=1}^n \pi_i^*)$  だから完全パッキングのための最終判定は、 $I(K_1)$



(図 1)

$=I(K_1 \cup_{i=1}^n \pi_i^*)$  かどうかでできるわけであるが  $\pi_i^*$  は互いに粗でないで、これがむづかしい。  $\Pi_{n-1}$  ができてから  $\Pi_n$  ができるまでにつかわれるテスト粒子の数を  $X_{n-1}$  とすると、

$$E(X_{n-1})=1/p_{n-1}, \text{Var}(X_{n-1})=(1-p_{n-1})/p_{n-1}^2$$

ただし  $p_{n-1}=P(\tau(\Pi_{n-1}))$  で、上の期待値、分散は、 $\Pi_{n-1}$  という条件の下でのそれらである。 $X_{n-1}$  をすべてのサンプルパッキングについて平均したもの  $\bar{X}_{n-1}$  が  $n-1$  個入っているときにつぎに  $\Pi_n$  をつくるには何個のテスト粒子が必要かの平均個数となる。また  $(\sum_{i=1}^{n^*} 1/p_i)$  が全部つめるには test 粒子を何個必要とするかの平均個数となる。ここで  $n^*$  は  $p_n^*$  が 0 になる一つ手前の  $p_i$  であるような番号である。これが知りたいが、不明である。

$m$  個のサンプルパッキングから  $\bar{p}_n, \bar{X}_n$  を推定するには maximum likelihood estimate をつくと、

$$\hat{p}_n = \frac{m}{\sum_{e=1}^m X_n^{(e)}}, \quad \left( \frac{1}{\hat{p}_n} \right) = \frac{\sum_{e=1}^m X_n^{(e)}}{m}$$

であるから\*、これによることが出来る。ここで  $e$  はサンプル番号をあらわす。

テスト粒子の全数  $\sum X_n$  を固定して行った結果の一例を示す\*\*。  $r=0.1, \sum X_n=200, m=110$  (予備実験 10, 実験 100) とした。

$\Pi$  が何個の粒子から成るか (すなわち合格したテスト粒子の数の分布はつぎの通り)。

$n$	8	9	10	11	12	13	14	15	計
度数	1	0	4	25	32	32	13	3	110

平均 12.273

完全パッキングにしてもこれよりさほど大きくはならないと考えられる。平方格子 (most open packing) の場合は 25 個入るから、その約半分くらいしか入らない。

図 2 は最初から数えて  $\nu$  番目のテスト粒子が合格した割合を示す。  $\nu$  が 50 程度までは指数的に減少し、その後はあまり減少しない。

図 3 は  $m=50$  (全実験の約半数) を用いて  $\overline{P(\tau(\Pi_n))}$  を推定したものである。容易にわかるように各サンプルパッキングについて、

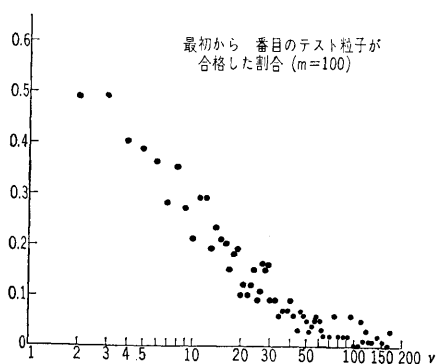


図 2

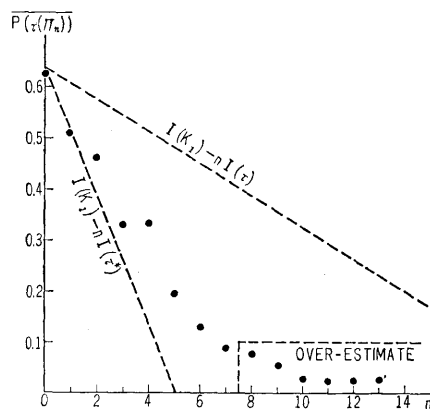


図 3

\*  $E(X_n) \neq 1/\bar{p}_n$  である。

\*\* 森本謙一君が計算機室の数示による擬似乱数を用いて計算した。

$$I(K_1) - nI(\tau^*) \leq P(\tau(\Pi_n)) \leq I(K_1) - nI(\tau)$$

である.  $n \geq 8$  になると推定のときに用いた  $m$  は 50 より小さくなっている. これはサンプルパッキングの中には 8 以上の球を含むものがないもの (200 個のテスト粒子のうち 7 個しか入らなかったもの) があらわれてくるためである. ( $n=8, 9, 10, 11, 12, 13$  に対し  $m=49, 49, 48, 32, 18, 8$  であった.) これらのサンプルサブパッキングは容器中に比較的一様にパックしていると推察されるので, もしも試行回数  $\sum X_i$  を増加していても以後の  $X_i$  は他のサンプルパッキングのそれより大きい傾向があると推察される. 従って  $\overline{P(\tau)}$  の推定は, この部分で過大評価になっているものと想像される.

テスト粒子は空間的に一様であるが, 合格粒子だけを考えると  $K_1$  で必ずしも一様とはいえないだろう. そこで粒子の位置の空間配置の分布を観察した. このためには  $m$  が少ないので一次元にあつめ周辺分布を見ることにし,  $y$  軸に関し小区間にわけて, 小区間に入っている粒子を総和した. これは  $y=0.5$  に関し対称であるべきだから 0.5 で折返しをかさねて, 推定の精度をあげる. 図 4 はそれでグラフの縦軸は粒子数そのままであるが, 横軸 ( $y$ ) に関し相対的にみていただきたい\*. 実物の球のランダムパッキングのごとく, カベの附近が多く, それから液体のラジアル分布に似た効果で粒子径より少し大き目の周期がでている. これは方法が棄却法であるという事を考えると一寸面白い現象であるが, パッキング構成の比較的初期において正方形の四隅に入りやすく (わずかばかり), それが後の粒子に影響して結果的にこのような傾向を示すものと考えられる.

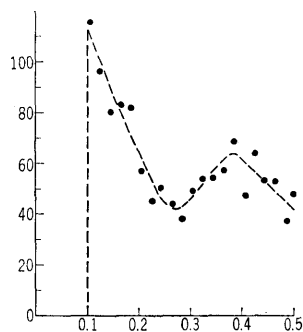


図 4

(b) その他, (i) 三次元の立方体, 円筒に等大球をつめる場合, (ii) 二次元の単位正方容器に半径が一様分布の円をつめる場合, 同じく粒度分布が対数正規型の円をつめる場合, (iii) 三次元立方体に一様分布, 対数正規の粒度分布の球をつめる場合, についてしらべてみようとした. 特に (ii), (iii) については, 一つの段階のテスト粒子が合格するまで同じ径のものをを用いる場合の他に, 一つのテスト粒子が不合格になれば粒度を更めて母集団から選びなおし, 位置も選びなおすという場合を考えパッキング構成の進むにつれ, パッキングの中の粒度分布がどう変化するかを見ようとした. これらは大いプログラムを作って通してみたというに過ぎない. 時間がかかりすぎるので, プログラムの改良をしようと思ってそのままになっている\*\*.

棄却法は種々のランダムパッキングの中で数学的に簡単なものであるが, それでも, 純数学的に取扱われているのは今まで一次元線分上に等長区間をかさならないようにランダムに置く場合だけである. (これに関しては Renyi と Bánkóvi が完全パッキングで線分を無限に増加したときの区間の間の間隙の分布, 平均, 分離を求めている<sup>18), 19)</sup>). 数学的研究の補助手段としても Monte Carlo 法の重要性は増大するであろう.

ここではパッキングづくりの話だけで, しかも中途半端な準備テストの実例を示したので, 目標のない研究として読者は不快を覚えられた事を思う. 筆者自身も記述が事志と異なった方向に走ったことは残念である.

\*  $y > 0.1$  および  $y > 0.9$  では度数が 0 になることを考慮し, またおりかえし点で区間の幅の半分になることを考えて他の部分の密度と比較し得るように補正した.

\*\* プログラムテストにおけるせいぜい 2, 3 個のサンプルパッキングの結果での大体の様子を述べると, 次のようである. 単位正方形容器で半径 0~0.1 の一様分布の場合被覆率 (充填率) 約 0.5, (半径 0.05 の等円ならば被覆率は約 0.4) 同じ容器で  $\mu = -3.22$ ,  $\sigma = 0.2$  (平均半径 0.04 に相当) の対数正規型粒度分布のとき被覆率は約 0.37 これらは何れも粒子径をかえない場合である. 不合格毎に粒子径をかえる場合や三次元の場合は時間が長くなるというのでテストも途中で打切った.

筆者の場合、粉末製品の物理的・化学的性質の研究や、土質の研究などに役立てることを頭においているわけである。しかしランダムパッキングの統計的性質のどれが、具体的にどう結びつくかを聞かれても、一、二をのぞき解答できない。これは専門家の研究を待たねばならない。逆に専門家に同じ質問をしても恐らく戸惑う人も多いだろう。そもそもパッキングの統計的性質が明瞭になっていない以上無理な話である。問題の在り家を明らかにするためにも、まず掘り起す手段として統計的諸性質を明かにする必要がある。問題の在り家を探すという無理をして探すように聞えるが、そうでなくて大きな潜在的問題があるように思う。実際それを示すものが現われて来ている\*。筆者の場合ここで述べたような均一ランダムパッキングだけが目標でなく、これをもととして、不均一なランダムパッキングの不均一性を測る方法にもってゆかねばならないと考えている。

### 3. ランダムパッキングモデルの粒度分布測定への応用（断面写真からの粒度分布の推定）

話の趣きをかえて実用的な問題にうつる。粉体材料や製品の品質研究のために、樹脂に埋め込んだものや焼結物の研磨面の顕微鏡写真から粒度分布を推定することが、しばしば必要である。この推定問題を厳密に解くことは不可能であるが、球のランダムパッキングモデルを用いると、ある程度の推論ができる。

球のランダムパッキングにおいて、断面の粒度分布のようなもの（筆者は全局的な統計的性質と呼んでいる）は、球を重ねるものとした簡単な数学的モデル\*\*から計算したものとかわらない。筆者はこのことを、さきにスチールボールを用いて実験的に確めた\*\*。

このモデルにおいて、球の径  $\rho$  の数分布の密度関数を  $\varphi(\rho)$ 、その平均値を  $\bar{\rho}$ 、ランダムな断面の一つにあらわれる円（球の断面）の径  $x$  の密度関数を  $f(x)$  とすると、

$$f(x) = \frac{x}{\bar{\rho}} \int_x^{\infty} \frac{\varphi(\rho)}{\sqrt{\rho^2 - x^2}} d\rho \quad \dots\dots\dots (3.1)$$

となる。この関係をもとにして考える。

(3.1) から少し計算すればわかるように、 $x$  の積率と  $\rho$  の積率との間には、

$$d_k \bar{x}^k = \bar{\rho}^{k+1} / \bar{\rho} \quad \dots\dots\dots (3.2)$$

なる関係が成り立つ。ここで  $d_k$  は

$$d_k = 2\Gamma\left(\frac{k+1}{2} + 1\right) / \sqrt{\pi} \Gamma\left(\frac{k}{2} + 1\right) \quad \dots\dots\dots (3.3)$$

である。（特に  $d_1 = 4/\pi = 1.2732$ ,  $d_2 = 1.5$ ）

(3.2), (3.3) から、断面における平均径が真の平均径（立体としての粒子の平均径）よりも小さくなるのは、すなわち  $\bar{x} \leq \bar{\rho}$  となるのは、

$$\bar{\rho}^2 \leq 1.2732 \bar{\rho}^2 \quad \dots\dots\dots (3.4)$$

の場合、換言すれば  $\rho$  の変動係数が 0.5227 より小のときであることがわかる\*\*\*。

\* たとえば Gurland: A study of the structure and sintering mechanism of Cemented Carbide (P.B. rep 140, 229, 1957) は専門家の間に物質のセミマクロ構造の重要性がようやく認められて来たことを示すもので、ランダムパッキングにもとづく統計的材料力学の必要性和手がかりを示すものであろう。

\*\* 粒度分布の密度を  $\varphi(\rho)$ 、容器の容積を  $V$ 、球の中心の位置を  $\vec{r}_i$  とすると、 $N$  個の球の位置と粒度との同時分布の確率要素が

$$V^{-N} \prod_{i=1}^N \varphi(\rho_i) d\rho_i d\vec{r}_i$$

となるもの。

\*\*\* 断面には各粒子はその一部しか顔を出さないから、断面の平均径は真の平均径よりも小さいときめてかかっている人があるかも知れないが、それは誤りである。

一般に粉粒体の粒度分布は、さほど変なものでなく、普通、対数正規型でよく近似される。他に Rosin-Ramler 型、Roller 型などあるが、それらはデータの曲線あてはめにおける慣習上の便利さから使われることがあるだけで、別に理論的根拠があるわけではない。従ってここでは対数正規型の場合を主として考え、それと少し異なるものとしてガンマ型の場合を考える（もっとも異種の粒体を混合したもの、分離操作などにより人工的に粒度を按配したものは、このような分布型にあてはまらないが、ここではそのような場合は考えない）。

これらの密度関数を、

$$\varphi(\rho) = (2\pi)^{-1/2} \sigma^{-1} \rho^{-1} \exp \left\{ -\frac{1}{2} (\log \rho - \mu)^2 / \sigma^2 \right\} \quad (\text{対数正規型}) \dots\dots\dots (3.5)$$

ここで  $\mu = \overline{\log \rho}$ ,  $\sigma^2 = \text{var.}(\log \rho)$

$$\text{および} \quad \varphi(\rho) = \rho^{c-1} c^{-\lambda} \exp(-\rho/c) / \Gamma(\lambda) \quad (\text{ガンマ型}) \dots\dots\dots (3.6)$$

ここで  $C = \text{var.} \rho / \bar{\rho}$ ,  $\lambda = \bar{\rho}^2 / \text{var.} \rho$

とする。

対数正規型の場合、 $\bar{\rho} = \exp \left( \mu + \frac{\sigma^2}{2} \right)$ ,  $\bar{\rho}^2 = \exp(2\mu + 2\sigma^2)$  であるから、(3.4) から、 $\bar{x} \leq \bar{\rho}$  となるのは  $\sigma \leq 0.4915$  のときであることがわかる。ガンマ型のときに  $\bar{x} \leq \bar{\rho}$  となるのは  $\lambda \geq 3.6598$  の場合である。

つぎに  $x$  の分散と  $\rho$  の分散との比は、一般に、

$$\frac{\text{var.} x}{\text{var.} \rho} = \frac{\bar{\rho}^3}{d_2 \bar{\rho} \text{var.} \rho} - \frac{1}{d_1^2} \left( \frac{\text{var.} \rho}{\bar{\rho}^2} + 2 + \frac{\bar{\rho}^2}{\text{var.} \rho} \right)$$

で、特に対数正規型では、

$$\frac{\text{var.} x}{\text{var.} \rho} = \frac{1}{d_2} \kappa^2 + \left( \frac{3}{d_2} - \frac{1}{d_1^2} \right) \kappa + \left( \frac{3}{d_2} - \frac{2}{d_1^2} \right) + \left( \frac{1}{d_2} - \frac{1}{d_1^2} \right) \kappa^{-1}$$

ガンマ型のときは、

$$\frac{\text{var.} x}{\text{var.} \rho} = \frac{2}{d_2} \kappa + \left( \frac{3}{d_2} - \frac{2}{d_1^2} \right) + \left( \frac{1}{d_2} - \frac{1}{d_1^2} \right) \kappa^{-1}$$

となる。ここで  $\kappa = \text{var.} \rho / \bar{\rho}^2$  で対数正規型のときは  $\kappa = \exp(\sigma^2) - 1$ , ガンマ型のときは  $\kappa = 1/\lambda$  である。

この比は常に 1 より大きい。すなわち、断面径の方が真の径の分散より大きい。通常の場合  $\kappa$  はあまり大きくないので、両方の型でよく一致している。比が最小になるのは、対数正規型のとき  $\kappa = 0.17551$ , でこれは  $\sigma = 0.40215$ , にあたり、最小値は 1.30000 である。これに対し、ガンマ型では  $\kappa = 1.93293$  のときで ( $\lambda = 5.17348$ ), 最小値は 1.25582 である。参考のためにいくつかの数値を表に示す。表で  $K$  は (3.9) で与えられる量である。なお、最小の比を与える  $K$  は対数正規のとき 1.2704, ガンマのとき 1.2258 である。

さて実際には  $x$  の方の測定値ですべてを推定しなければならない。 $x$  の二次までの積率を用いて、積率法によりパラメタの推定ができる。すなわち、

$$\text{対数正規型:} \quad \begin{cases} \mu = 4 \log \bar{x} - \frac{3}{2} \log x^2 + 4 \log d_1 - \frac{3}{2} \log d_2 \\ \sigma^2 = \log \bar{x}^2 - 2 \log \bar{x} + \log d_2 - 2 \log d_1 \end{cases} \dots\dots\dots (3.7)$$

$$\text{ガンマ型:} \quad \begin{cases} c = \bar{x} \left( \frac{d_2}{d_1} K - d_1 \right) \\ \lambda = \left( 2 - \frac{d_2}{d_1^2} K \right) / \left( \frac{d_2}{d_1^2} K - 1 \right) \end{cases} \dots\dots\dots (3.8)$$

$\kappa$	対 数 正 規 型			ガ ン マ 型		
	$\frac{\text{var. } x}{\text{var. } \rho}$	$\sigma$	$K$	$\frac{\text{var. } x}{\text{var. } \rho}$	$\lambda$	$K$
0.001	50.584	0.032	1.082	50.584	1000.0	1.082
0.010	5.762	0.100	1.062	5.763	100.0	1.092
0.050	1.833	0.221	1.135	1.829	20.0	1.132
0.100	1.409	0.309	1.189	1.398	10.0	1.179
0.200	1.319	0.427	1.297	1.282	5.0	1.261
0.300	1.407	0.512	1.405	1.332	3.333	1.330
0.400	1.551	0.580	1.513	1.424	2.500	1.390
0.500	1.724	0.637	1.621	1.533	2.000	1.441
1.000	2.866	0.833	2.162	2.149	1.000	1.621
1.500	4.374	0.957	2.702	2.800	0.667	1.729
2.000	6.224	1.048	3.242	3.458	0.500	1.801
2.500	8.411	1.119	3.783	4.120	0.400	1.853
5.000	24.359	1.339	6.485	7.443	0.200	1.931
7.500	48.647	1.463	9.186	10.773	0.133	2.034
10.000	81.269	1.549	11.888	14.105	0.100	2.063

を用いればよい。ここで、

$$K = \overline{x^2} / \overline{x}^2 \quad \dots\dots\dots (3.9)$$

実際に最も関心のある平均粒度の推定のための関係式は次のようになる（二乗平均もついでに記す）。

対数正規型のとき、

$$\overline{\rho} = \frac{\overline{x^3}}{\overline{x}^2} \frac{d_1^3}{d_2}, \quad \overline{\rho^2} = \frac{\overline{x^4}}{\overline{x}^2} \frac{d_1^4}{d_2} \quad \dots\dots\dots (3.10)$$

ガンマ型のとき、

$$\overline{\rho} = d_1 \overline{x} \left( 2 - \frac{d_2}{d_1^2} \frac{\overline{x^2}}{\overline{x}^2} \right), \quad \overline{\rho^2} = d_1^2 \overline{x^2} \left( 2 - \frac{d_2}{d_1^2} \frac{\overline{x^2}}{\overline{x}^2} \right) \quad \dots\dots\dots (3.11)$$

すなわち、(3.9) の  $K$  を用いて、対数正規型のとき、

$$\overline{\rho} = 1.376 K^{-1} \overline{x}, \quad \overline{\rho^2} = 1.621 K^{-1} \overline{x}^2 \quad \dots\dots\dots (3.12)$$

ガンマ型のときは、

$$\overline{\rho} = (2.546 - 1.178 K) \overline{x}, \quad \overline{\rho^2} = (3.242 - 1.500 K) \overline{x}^2 \quad \dots\dots\dots (3.13)$$

これによると  $K$  の小さい範囲では両方の場合で大差ないが、 $K$  が大きくなると、差が大きくなり分布型に依存してくる。（ $K < 1.2$  では (3.12) と (3.13) の  $\overline{\rho}$  の差は 1% 以内である）。粒度分布は大体これらに近いから、 $x$  の変動係数が小さいときは、それを精度よく測ることにより、平均粒度を正しく求めることができよう。 $x$  の変動係数の大きい場合は、何れの型に近いかをきめて、大略の値を推定するより仕方ない。（型の判定は三次の積率まで用いれば可能であるが、誤差のことを考えると成功は疑わしい。むしろ  $x$  の小さい部分での密度関数の挙動からきめるのがよい）。

次の興味は断面粒度分布から真の粒度分布を推定することである。 $f(x)$  から  $\varphi(\rho)$  を求める

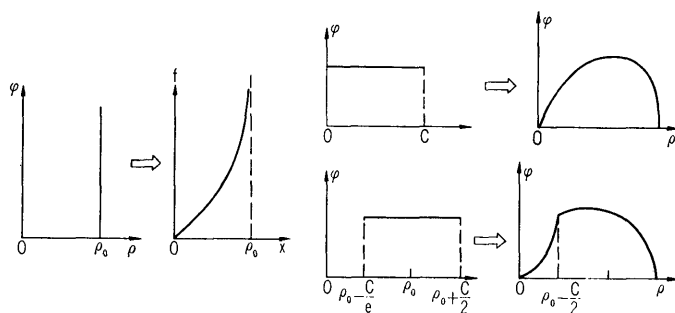


図 5

こと, すなわち, 積分方程式を解くことはむづかしい. そこで  $\rho$  から  $x$  への変換によって分布がどう変るかしらべる. このことは  $\rho$  の分布を  $x$  の分布の形から想像することに役立つだろう.  $\rho$  が単位分布および一様分布のとき図のような形に変化する (図 5)\*.

一般にはこのようなものの重量である.

特に  $\varphi(\rho)$  が対数正規型の場合が関心事である. すなわち  $x$  の密度関数は,

$$f(x) = \frac{x}{\exp\{\mu + \sigma^2/2\}} \int_x^\infty \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma\rho}} \exp\left\{-\frac{(\log(\rho/e^\mu))^2}{2\sigma^2}\right\} \frac{d\rho}{\sqrt{\rho^2 - x^2}} \quad \dots (3.14)$$

であるが, これを簡単な初等関数であらわすことができない. このままでは数値積分にも不便である (被積分関数は積分の下限で発散する). そこで  $\rho = x(\xi + 1/\xi)/2$  において積分変数  $\rho$  を  $\xi$  にかえると,

$$\frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} \exp\left\{-\left(\mu + \frac{\sigma^2}{2}\right)\right\} \int_0^1 \frac{2}{\xi^2 + 1} \exp\left\{-\frac{\left(\log\left(\frac{1}{2}(\xi + (1/\xi))\right) + \alpha\right)^2}{2\sigma^2}\right\} d\xi \quad \dots (3.15)$$

となる. ここで  $\alpha = \log x - \mu$  である. ここにあらわれる積分は, 区間が  $(0, 1)$  で, 被積分関数

$$\phi_1(\xi) = \frac{2}{\xi^2 + 1} \exp\left\{-\frac{\left(\log\left(\frac{1}{2}(\xi + (1/\xi))\right) + \alpha\right)^2}{2\sigma^2}\right\} \quad \dots (3.16)$$

は有界 (積分区間の両端で 0 に収束) であり, また著しく振動するものでないから数値積分に都合がよい.

分布関数  $F(x)$  は, (3.14) から,

$$F(x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} \exp\left\{-\left(\mu + \frac{\sigma^2}{2}\right)\right\} \int_0^x dt \left( t \int_t^\infty \frac{\exp\{-(\log \rho - \mu)^2/2\sigma^2\}}{\rho \sqrt{\rho^2 - t^2}} d\rho \right) \quad (3.17)$$

この二重積分は簡単に一次元化される. 一般に密度が (3.1) の場合, 分布関数,

$$F(x) = \int_0^x dt \int_t^\infty \frac{t}{\rho} \frac{\varphi(\rho)}{\sqrt{\rho^2 - t^2}} d\rho$$

\* (i) 単位分布 (等大球) の場合:  $\varphi(\rho) = \delta(\rho_0 - \rho)$ ,  $f(x) = x\rho_0^{-1}(\rho_0^2 - x^2)^{-1/2}$  (ただし  $0 \leq x \leq \rho_0$ ),  $F(x) = 1 - \rho^{-1}(\rho_0^2 - x^2)^{1/2}$

(ii) 一様分布の場合 (中心  $\rho_0$ , 区間の長さ  $c$ ),  $\varphi(\rho) = c^{-1}(\rho_0 - c/2 < \rho < \rho_0 + c/2)$ , 簡明のために,  $u = x/\rho_0$ ,  $\alpha = c/(2\rho_0)$  において,  $u$  の分布を記すと

$$f(u) = \begin{cases} u(2\alpha)^{-1}\{\xi(u, \alpha) - \xi(u, -\alpha)\} & (0 \leq u \leq 1 - \alpha) \\ u(2\alpha)^{-1}\{\xi(u, \alpha) - \log u\} & (1 - \alpha \leq u \leq 1 + \alpha) \end{cases}$$

$$F(u) = \begin{cases} 1 + u^2(4\alpha)^{-1}\{\xi(u, \alpha) - \xi(u, -\alpha)\} - (4\alpha)^{-1}\{\eta(u, \alpha) - \eta(u, -\alpha)\} & (0 \leq u \leq 1 - \alpha) \\ 1 + u^2(4\alpha)^{-1}\{\xi(u, \alpha) - \log u\} - (4\alpha)^{-1}\eta(u, \alpha) & (1 - \alpha \leq u \leq 1 + \alpha) \end{cases}$$

ここで  $\xi(u, v) = \log(1 + v + \sqrt{(1+v)^2 - u^2})$ ,  $\eta(u, v) = (1+v)\sqrt{(1+v)^2 - u^2}$



は  $(\rho, t)$  の二変数の関数の積分として,  $(\rho, t)$  面上での積分領域を考えると容易にわかるように  $\int_0^x dt \int_t^\infty d\rho = \int_0^x d\rho \int_0^\rho dt + \int_x^\infty d\rho \int_0^x dt$ , あるいは  $\int_0^\infty d\rho \int_0^\rho dt - \int_x^\infty d\rho \int_x^\rho dt$  となる\*. 何れを実行しても  $\bar{\rho} = \int_0^\infty \rho \varphi(\rho) d\rho$  に注意すれば,

$$F(x) = 1 - \frac{1}{\bar{\rho}} \int_x^\infty \sqrt{\rho^2 - x^2} \varphi(\rho) d\rho \dots\dots\dots (3.18)$$

となる. 従って (3.17) は単純化され, 密度関数のときと同じ積分変数の変換によって,

$$F(x) = 1 - (2\pi)^{-1/2} \sigma^{-1} x \exp \{ -(\mu + \sigma^2/2) \} \int_0^1 \phi_2(\xi, \alpha) d\xi \dots\dots\dots (3.19)$$

ただし,

$$\phi_2(\xi, \alpha) = \frac{(1-\xi^2)^2}{2\xi^2(\xi^2+1)} \exp \left\{ -\frac{\left( \log \left( \frac{1}{2}(\xi + (1/\xi)) \right) + \alpha \right)^2}{2\sigma^2} \right\} \dots\dots\dots (3.20)$$

の形にもたらされる ( $\alpha = \log x - \mu$ ). 分布関数も密度関数と殆んど同じシステムで計算されることになる,

(3.14), (3.17) の数値計算は目的が関数計算であるから, 手際よく行なわないと, 時間が非常にかかる.  $\alpha$  を (できれば  $\sigma^2$  とともに) 積分の外に追い出すことができれば, いろいろの  $x$  の値について計算する場合, 数値積分は一度ですむから好都合であるが, これはむづかしい.  $\phi_1, \phi_2$  の数値積分を行なうこととし, その方法に少し工夫をした. (それについては後に述べる).

分布の形は予想された通り,  $\sigma$  が約 0.5 より大きい時は殆んど対数正規型に近い. 分布の立ちあがり部分 ( $x$  の小さい所) でわずかに異なる.

実例: 海水マグネシアクリンカー (MgO) の断面写真における粒子径の分布\*\*

各粒子は独立に散在しているのではなく, 塊 (clump) になっている. 塊の間で粒度は異なるようであるから, 粒度分布推定についてはサンプリングが問題である. ここでは密に pack した粒子群の断面の分布に問題の焦点をしぼるので, むしろ連続領域のある部分を全部測定した. (このような部分をいくつか選んで実際測定してみると, それらの間では写真を一見した時の印象ほどには差はない). 粒子の形は不規則であるから, 最大径最小径の中間を選んだ.

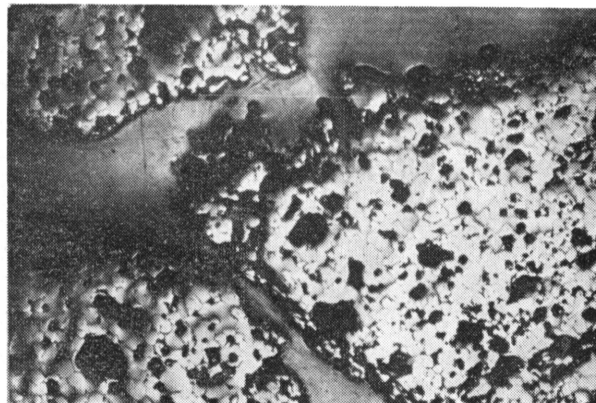


図 6

\* ここで関数記号を省略したが, 意味は明瞭のことと思う.

\*\* 写真は国立防災センターの高橋博氏より提供を受けた. 測定は瀬戸衣子嬢が行った.

写真上の測定の最小単位は 0.5 mm である。写真の倍率は 11 倍であったが、ここでは絶対値は問題にしない。写真上の 1 mm を単位として結果の一例を示す。

図 7(a) は累積相対度数を対数確率紙にプロットしたものである。この場合、測定単位が 0.5 mm であるので、例えば 7.0 mm までの累積は 7.25 の所に、3.5 mm までの累積は 3.75 の所にプロットする、このことは特に重要である。このようにしないと対数確率紙の場合分布が対数正規型であってもプロットを結ぶと下に凸の曲線になる。特に分布の立上りの部分で著しい。さてこのような注意を払ったにもかかわらず図 7(a) でプロットは直線になっていない。両端の度数の少ない（誤差の大きい）部分をのぞいてみても上部で fit した直線と下部で fit した直線がくい違う。このような傾向は、ここに図示した例だけでなく、他の塊について測定した 4 通りのデータのすべてについていえる。従って  $x$  の分布は対数正規型に近いが少し異なるといえよう。この測定値から平均  $\bar{x}$  および  $\bar{x}^2$  を求めると、 $\bar{x}=3.43$   $\bar{x}^2=13.43$  であった\*。これから (3.7) に従って、 $\mu$ ,  $\sigma^2$  の推定値を求めると、 $\sigma=0.2340$ ,  $\mu=1.4368$  である。この  $\mu$ ,  $\sigma$  を用いて関数 (3.17) を計算し、プロットしたのが (b) の曲線である。(b) における×印は (a) と同じものである。これは一例であるが、この他の測定値群についても分布の適合度はこの程度である。(c) は四つの異なる部分の測定を合わせて一つの測定値群としたもので、 $\bar{x}=3.69$ ,  $\bar{x}^2=16.25$  これから計算したパラメータは  $\mu=1.403$ ,  $\sigma=0.3003$  である。

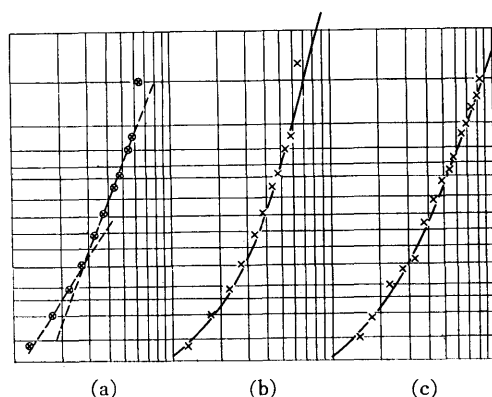


図 7

分布が計算値とよくあうということは  $\rho$  の分布が対数正規型によくあうということを裏づけるものである。ただ小さい粒子を測定し損じたとき、 $x$  の分布自身が対数正規型であっても、対数確率紙にプロットすると（すなわち切りとられた対数正規分布をプロットすると）、下に凸の曲線になるが、測定に際し、そのような誤差のないよう、写真の鮮明な部分を故意に選んだので、測定値のプロットの曲りはこれが原因ではないと考えられる。

この事例は、この問題の例として最も適したものでもなく、またいろいろ問題点も含むが、断面における粒子径の分布と真の径の分布との関係を少なくとも定性的には示しているものといえるだろう。

パッキングモデルとはいうものの、ここで用いたのは粒子の独立性を仮定した数学的モデルで、パッキングではない。表題にいつわりありといわれても致し方ない。ただ以前のモデル実験で、このような方法の妥当性を実験的にたしかめたというほどの意味である。モデル実験としては、その後、ゴム粘土で等大球をつくり、マジックインキを塗り、それを堆にして圧縮

\* 従って (3.9) の  $K$  は 1.143 となり、(3.12) から  $\bar{\rho}$  は  $\bar{x}$  の約 1.2 倍、また  $x$  の分散は  $\rho$  の分散の約 1.7 倍であると推察される。

し、鋭い刃で切断し、粒子の断面形の研究を行おうとした。ここで扱った問題に関しては、これから系統的測定誤差に関する知見が得られる筈であるが、統計的解析が行なえるほどの多くのサンプルをつくるに至らず実験を中断したままである\*。

$\rho$  の分布がガンマ型のときの  $x$  の分布

$\rho$  の分布がガンマ型のとき、(3.1) は

$$f(x) = \frac{1}{c} \left( \frac{x}{c} \right)^{\lambda} \frac{1}{\Gamma(\lambda+1)} \int_1^{\infty} \frac{t^{\lambda-1} \exp(-tx/c)}{\sqrt{t^2-1}} dt$$

と変形される。また分布関数は (3.18) から

$$F(x) = \int_1^{\infty} I \left( \frac{x}{c} t, \lambda+1 \right) \frac{dt}{t^2 \sqrt{t^2-1}}$$

ここで  $I(z, \lambda)$  は不完全ガンマ関数

$$I(z, \lambda) = \Gamma(\lambda)^{-1} \int_0^z t^{\lambda-1} e^{-t} dt$$

である。

一般にこれらの値を求めるには数値積分によることになるが、特に  $\lambda$  が整数のときには変形 Bessel 関数を用いてあらわすことができるので数表が利用できる。以下それに関して述べる。複雑さを避けるため  $x$  のかわりに  $u=x/c$  の分布を考える。 $\lambda=n$  のときの分布関数、密度関数には suffix  $n$  をつけてあらわすことにする。

密度関数  $f_n(u)$  は、

$$f_n(u) = u^n (n!)^{-1} \int_1^{\infty} t^{n-1} e^{-ut} (t^2-1)^{-1/2} dt \quad \dots\dots\dots (3.21)$$

とくに  $n=1$  のときは ( $\rho$  の分布は指数型)

$$f_1(u) = u \int_1^{\infty} e^{-ut} (t^2-1)^{-1/2} dt = u K_0(u)$$

となる。ここで  $K_0(u)$  は第二種変形 Bessel 関数である\*\*。

$f_n(x)$  を Bessel 関数であらわすには、(3.21) を次々に部分積分を行なっていってもよいが、

$$\begin{aligned} \int_1^{\infty} \frac{t^{n-1} e^{-ut}}{\sqrt{t^2-1}} dt &= \int_1^{\infty} \left( \int_u^{\infty} (-1)^n \frac{d^n}{dw^n} e^{-tw} dw \right) \frac{dt}{\sqrt{t^2-1}} \\ &= - \int_u^{\infty} (-1)^{n-1} \frac{d^n}{dw^n} \left( \int_1^{\infty} \frac{e^{-tw}}{\sqrt{t^2-1}} dt \right) dw = - \int_u^{\infty} (-1)^{n-1} \frac{d^n}{dw^n} K_0(w) dw \\ &= (-1)^{n-1} \frac{d^{n-1}}{du^{n-1}} K_0(u) \end{aligned}$$

となるから (この場合形式的変形が可能)

$$f_n(u) = \frac{(-1)^{n-1}}{n!} u^n \frac{d^{n-1} K_0(u)}{du^{n-1}} \quad \dots\dots\dots (3.22)$$

を得る。これから  $f_n(u)$  は次の定差微分方程式をみたすことがわかる。( ' は導関数をあらわす)。

$$u f_n' = n f_n - (n+1) f_{n+1} \quad \dots\dots\dots (3.23)$$

Bessel 関数のよく知られた関係

$$K_0'(u) = -K_1(u), \quad (u K_1(u))' = -u K_0(u) \quad \dots\dots\dots (3.24)$$

を用いると、(3.22) から  $f_n$  を  $K_0$  と  $K_1$  を用いてあらわすことができる。

\* 最近 Bernal がこれに似た実験を行なったことを知った。彼の場合は圧縮してから再びバラして立体としての粒子の面の形の統計的研究を行なった。

\*\* たとえば Watson: Theory of Bessel Functions p. 185

$$f_2(u) = \frac{1}{2}u^2 K_1(u)$$

$$f_3(u) = \frac{1}{6}u^3 K_0(u) + \frac{1}{6}u^2 K_1(u)$$

$$f_4(u) = \frac{1}{24}u^3 K_0(u) + \left(\frac{1}{24}u^4 + \frac{1}{12}u^2\right) K_1(u)$$

$$f_5(u) = \left(\frac{1}{120}u^5 + \frac{1}{40}u^3\right) K_0(u) + \left(\frac{1}{60}u^4 + \frac{1}{20}u^2\right) K_1(u)$$

$$f_6(u) = \left(\frac{1}{360}u^5 + \frac{1}{60}u^3\right) K_0(u) + \left(\frac{1}{720}u^6 + \frac{7}{720}u^4 + \frac{1}{30}u^2\right) K_1(u)$$

.....

一般に  $n \geq 3$  に対しては,

$$f_n(u) = \sum_{i=1}^{\left[\frac{n-1}{2}\right]} \alpha_n, i u^{2i+1} K_0(u) + \sum_{i=1}^{\left[\frac{n}{2}\right]} \beta_n, i u^{2i} K_1(u) \dots\dots\dots (3.25)$$

の形となる. [ ] は Gauss の記号である.

$\alpha_n, i$  および  $\beta_n, i$  の漸化式は (3.23) から

$$\alpha_n, 0 = 0$$

$$\alpha_{n+1, i} = \frac{1}{n+1} \left\{ \beta_n, i + (n-2i+1) \alpha_n, n D\left(\frac{n-1}{2} - i\right) \right\}$$

$$\beta_{n+1, i} = \frac{1}{n+1} \{ \alpha_n, i-1 + (n-2i+1) \beta_n, i \}$$

ただし,  $\beta_{21} = 1/2$ ,  $\alpha_{21} = 1$ ,  $D$  は単位階段関数をあらわす.

つぎに分布関数  $F_n$  は (3.23) を積分することにより,

$$F_n(u) = F_{n-1}(u) - \frac{u}{n} f_{n-1}(u) \dots\dots\dots (3.26)$$

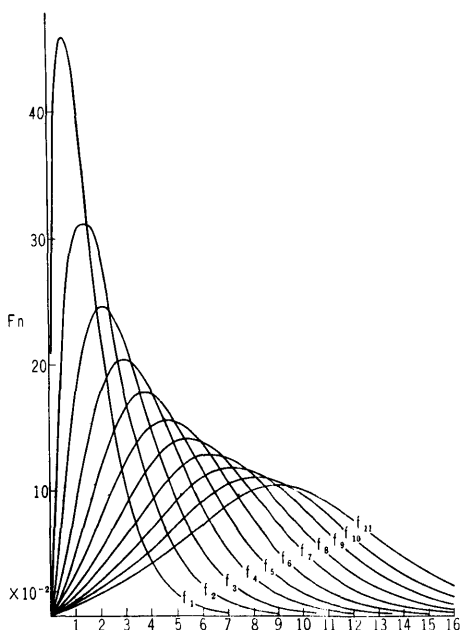


図 8

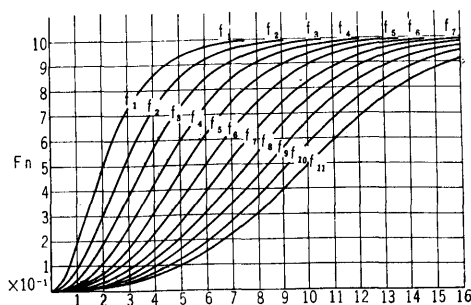


図 9

(3.22) から  $\lim_{u \rightarrow 0} u K_0(u) = 1$  に注意すれば, (3.24) により,

$$F_1(u) = 1 - u K_1(u) \dots\dots\dots (3.27)$$

すなわち,  $F_n(u)$  は (3.27) を初期関数として, 定差微分方程式 (3.26) をみたす. これから公式 (3.24) を使って, 次々に,

$$\begin{aligned} F_2(u) &= 1 - \frac{1}{2} u^2 K_0(u) - u K_1(u) \\ F_3(u) &= 1 - \frac{1}{2} u^2 K_0(u) - \left( \frac{1}{6} u^3 + u \right) K_1(u) \\ F_4(u) &= 1 - \left( \frac{1}{24} u^4 + \frac{1}{2} u^2 \right) K_0(u) - \left( \frac{5}{24} u^3 + u \right) K_1(u) \\ F_5(u) &= 1 - \left( \frac{1}{20} u^4 + \frac{1}{2} u^2 \right) K_0(u) - \left( \frac{1}{120} u^5 + \frac{9}{40} u^3 + u \right) K_1(u) \\ F_6(u) &= 1 - \left( \frac{1}{720} u^6 + \frac{13}{240} u^4 + \frac{1}{2} u^2 \right) K_0(u) - \left( \frac{1}{90} u^5 + \frac{7}{30} u^3 + u \right) K_1(u) \\ &\dots\dots\dots \end{aligned}$$

一般に,

$$F_n(u) = 1 - A_n(u) K_0(u) - u B_n(u) K_1(u) \dots\dots\dots (3.28)$$

となる. ここで  $A_n(u)$ ,  $B_n(u)$  は  $u^2$  の多項式で,

$$A_n(u) = \frac{1}{2} u^2 + \sum_{i=1}^{\left[ \frac{n}{2} \right]} a_{n,i} u^{2i}, \quad B_n(u) = 1 + \sum_{i=1}^{\left[ \frac{n-1}{2} \right]} b_{n,i} u^{2i}$$

の形である. (3.28) を微分すると, (3.24) により,

$$f_n(u B_n - A_n') K_0 + (A_n - u B_n') K_1$$

これと (3.25) とを比較して  $\alpha$ ,  $\beta$  と  $a$ ,  $b$  との関係も得られるが, (3.26) から,

$$A_{n+1} = A_n + \frac{u^2}{n+1} B_n - \frac{u}{n+1} A_n', \quad B_{n+1} = B_n + \frac{1}{n+1} B_n - \frac{u}{n+1} B_n'$$

であるから  $a$ ,  $b$  の漸化式を得る.

$x$  の分布はガンマ分布に非常に近い. 分布の形の差異をみるために, 二次までの積率が一致するように対応するパラメタを調整したものと比較する. すなわち  $f_n(x)$  と,

$$\lambda^* = \frac{3\pi^2(n+1)}{(32-3\pi^2)(n+1)+32} \quad c^* = \frac{32(n+2)-3\pi^2(n+1)}{12\pi} c$$

をパラメタとしてもつガンマ分布とを比較すると,  $n$  の大きくない範囲ではよく一致する.  $n=11$ ,  $x=13.5$  に対し  $F(x)=0.8541$  これに対し対応するガンマ分布は 0.8462 また  $n=1$   $x=6$  に対し  $F(x)=0.9914$  であるが対応するガンマ関数は 0.9917 である.

特に  $n=1$ ,  $n=2$  のときの関係から  $K_0$ ,  $K_1$  を広い範囲でよく近似する式が得られる. すなわち,

$$\begin{aligned} K_0(x) &\sim 1.1626 x^{-0.39005} e^{-1.02438x} & (0.1 < x < 8.0) \\ K_1(x) &\sim 1.6017 x^{-0.73249} e^{-0.96237x} & (1.0 < x < 6.0) \end{aligned}$$

これは有効数字は約二ケタであらう.

#### 分布関数の数値計算:

分布関数 (3.18), 密度関数 (3.15) の計算には TSK III (HIPAC 103) の性能にかんがみ, 以下に述べる方法を試みた.

計算の主要部は積分の部分である. 被積分関数の中に含まれる指数関数と対数関数が, 計算時間を長くする根源である. 対数関数の方は  $\xi$  だけの関数だから,  $(0, 1)$  区間の充分細かい分

割に対し一度ずらりと計算して記憶させておけばよいが、指数関数の方は、 $\alpha$  (従って  $x$ ) を含むから、 $x$  の変るごとに、(和分が収束するまでの)分割に対応する回数だけ、改めて勘定しなおさねばならない\*。収束を早くする方法を講じなければならないが、指数関数は微分しても変わらないことから、被積分関数の Taylor 展開も、このための一つの方法として有効だろう。

区間  $(0, 1)$  を  $n$  個の小区間に分割し、 $i$  番目の小区間の幅を  $\Delta_i$ 、中心を  $\xi_i$  とする。

$$\phi(\xi) = \phi(\xi_i) + (\xi - \xi_i)\phi'(\xi_i) + \frac{1}{2}(\xi - \xi_i)^2\phi''(\xi_i) + \cdots + \frac{1}{(2m)!}(\xi - \xi_i)^{2m}\phi^{(2m)}(\xi_i) + R_{2m}$$

から、

$$\begin{aligned} \int_0^1 \phi(\xi) d\xi &= \sum_{i=1}^n \int_{\xi_i - \Delta_i/2}^{\xi_i + \Delta_i/2} \phi(\xi) d\xi \\ &= \sum_{i=1}^n \phi(\xi_i) \Delta_i + \frac{1}{24} \sum_{i=1}^n \phi''(\xi_i) \Delta_i^3 + \frac{1}{1920} \sum_{i=1}^n \phi^{(4)}(\xi_i) \Delta_i^5 + \cdots \\ &\quad \cdots + \frac{1}{(2m+1)!} \sum_{i=1}^n \phi^{(2m)}(\xi_i) \Delta_i^{2m+1} + \int_0^1 R_{2m}(\xi) d\xi \end{aligned}$$

となるが、 $\phi(\xi_i)$  の計算の途中にあらわれる種々の値を利用すれば  $\phi''(\xi_i)$ 、 $\phi^{(4)}(\xi_i)$  等が容易に求められるのであれば、計算は早く行なえる。次第に分割をこまかくして収束するまで行なうので、剰余項に関しては、 $|\phi^{(2m+1)}(\xi)|$  があまり大きなものでなければよい。

展開はそれによって収束を早める効果よりも、計算手続の増加による計算時間の増大が上廻らない程度に止めるべきである。われわれの場合  $\phi''$  の項を追加することにより時間はずっと短縮されたが、 $\phi^{(4)}$  の項の追加はかえって時間を増すことになった。(もっともパラメタ  $\mu$ ,  $\sigma^2$ , や  $x$  の値に依存するから、“概して” の話である)。

区間の分割ははじめから、 $n$  等分することをきめておけば計算プログラムは簡単であるが、 $x$  の値如何によって、収束の早さが異なるから、 $\frac{1}{2}$ ,  $\frac{1}{4}$ ,  $\cdots$  と小区間の幅を次第に縮めてゆく方法をとる。ただし区間の両端は他の区間幅の  $1/2$  とする。このようにすると再分割のときに以前の値が利用できる。少しくわしく説明すると、

$$\text{最初の分割 } \xi_1 = \frac{1}{8}, \xi_2 = \frac{1}{2}, \xi_3 = \frac{7}{8}$$

$$\left( \Delta_1 = \frac{1}{4}, \Delta_2 = \frac{1}{2}, \Delta_3 = \frac{1}{4} \right)$$

$$\text{第二の分割 } \xi_1 = \frac{1}{16}, \Delta_2 = \frac{1}{4}, \xi_2 = \frac{2}{4}, \xi_3 = \frac{3}{4}, \xi_4 = \frac{15}{16}$$

$$\left( \Delta_1 = \frac{1}{8}, \Delta_2 = \Delta_3 = \Delta_4 = \frac{1}{4}, \Delta_5 = \frac{1}{8} \right)$$

一般に  $k$  番目の分割では  $n=2^{k+1}$ ,  $\xi_1=1/2^{k+1}$ ,  $\xi_n=1-1/2^{k+1}$

$$\xi_i = \left( i - \frac{1}{2} \right) / 2^{k+1} \quad (i=2, \dots, 2^k)$$

$$\Delta_1 = \Delta_n = 1/2^{k+1}, \Delta_i = 1/2^k \quad (i=2, \dots, 2^k)$$

\* この場合計算機の組込みルーチンによる万能的指数関数を用いるよりも、次々に行う指数関数の計算を、一つ前の計算点に関する TAYLOR 展開によって行うのが得策のように思える。というのは分割が細くなってくると、相隣れるものの差は小さく、かつ計算機の精度まで実際に有効数字を必要としないときは、展開項数はわずかですむと考えられるからである。しかし誤差が積もらないように、時々正確な値にもどす必要があり、また計算点が前のそれと大分離れているときは組込みルーチンを用いる方が得であるからこのための制御をつけなければならない。実際にこれを用いたり用いなかったりしてみた。用いた方が得のようであるが、大差ないようである。

となるように選ぶ。

$k$  番目の分割の  $\xi_i$ ,  $\Delta_i$  を  $\xi_i(k)$ ,  $\Delta_i(k)$  とすると,  $\xi_2(k)=\xi_1(k-2)$ ,  $\xi_{n-1}(k)=\xi_n(k-2)$ ,  $\xi_{1+2j}(k)=\xi_{j+1}(k-1)$  であるから,  $k$  番目の分割に際し新たに計算すべきものは,  $\xi_3, \xi_5, \dots, \xi_{n-2}$  における関数値である\*。

$\phi(\xi_i(k))$ ,  $\phi''(\xi_i(k))$  等を  $\phi_i$ ,  $\phi_i''$  等と略記し,

$$\begin{aligned} S_0(k) &= \phi_1 + \phi_n, & T_0(k) &= \phi_4 + \phi_6 + \dots + \phi_{n-3}, \\ U_0(k) &= \phi_2 + \phi_{n-1}, & V_0(k) &= \phi_3 + \phi_5 + \dots + \phi_{n-2}, \\ S_2(k) &= \phi_1'' + \phi_n'', & T_2(k) &= \phi_4'' + \phi_6'' + \dots + \phi_{n-3}'', \\ U_2(k) &= \phi_2'' + \phi_{n-1}'', & U_2(k) &= \phi_3'' + \phi_5'' + \dots + \phi_{n-2}'', \\ S_4(k) &= \phi_1^{(4)} + \phi_n^{(4)}, & T_4(k) &= \phi_4^{(4)} + \phi_6^{(4)} + \dots + \phi_{n-3}^{(4)} \\ & \dots\dots\dots \end{aligned}$$

とする。さらに,

$$W_j(k) = T_j(k) + U_j(k) + V_j(k)$$

とすると,

$$U_j(k) = S_j(k-2), \quad V_j(k) = W_j(k-1)$$

なる関係があるから,  $k$  番目の分割での和

$$\begin{aligned} S_0(k)\Delta_1(k) + W_0(k)\Delta_2(k) + \frac{1}{24}\{S_2(k)\Delta_1(k)^3 + W_2(k)\Delta_2(k)^3\} \\ + \frac{1}{1920}\{S_4(k)\Delta_1(k)^5 + W_4(k)\Delta_2(k)^5\} + \dots\dots\dots \end{aligned} \quad (3\cdot25)$$

の計算においては  $S_j(k)$ ,  $W_j(k)$  を別々に貯蔵して次の用に備えればよい。計算手順は明らかであろう。たとえばつぎのようにする。

$St_1$ ,  $St_2$ ,  $St_3$  を記憶装置とする。

- ①  $St_2$  の  $S_0, S_2, \dots$  を  $St_1$  に移す。
- ② 新たに  $S_0(k), S_2(k), \dots$  を計算して  $St_2$  におさめる。
- ③  $St_3$  の  $W_j$  に  $St_2$  の  $S_j$  を加え  $St_3$  におさめる。
- ④ 新たに  $T_j(k)$  を計算してこれを  $St_3$  の  $W_j$  に加え  $St_3$  におさめる。
- ⑤  $\Delta_1(k-1), \Delta_2(k-1)$  から  $\Delta_1(k), \Delta_2(k)$  をつくる。
- ⑥  $St_1$  の  $S_j$  と  $St_3$  の  $W_j$  および  $\Delta_1(k), \Delta_2(k)$  により (3.25) を計算する。

これをくりかえす。 $S_j(k)$ ,  $T_j(k)$  の計算においても以前の計算で利用できるものを用いて計算の重複をさけることはいうまでもない。

このことに関連して,  $\phi''$ ,  $\phi^{(4)}$  の計算法を少し具体的に示そう。(3.16) の場合も同様であるから, (3.20) の  $\phi$  に関して記す。

$$l = \log \frac{1}{2} \left( \xi + \frac{1}{\xi} \right) + \alpha, \quad \eta = \frac{1}{\sigma^2}, \quad P = \frac{(1-\xi^2)^2}{2\xi^2(\xi^2+1)}, \quad H = \exp(-l^2\eta)$$

とおくと, (3.20) の  $\phi$  は,

$$\phi = PH, \quad \phi'' = P''H + 2P'H' + H'', \quad \phi^{(4)} = P^{(4)}H + 4P^{(3)}H' + 6P''H'' + 4P'H^{(3)} + PH^{(4)}$$

であるが,  $H'$ ,  $H''$  等はすべて  $\eta$  と  $l'$ ,  $l''$ ,  $\dots$  の多項式と  $H$  との積となる。このうち  $\eta$  と  $l$  には  $\xi$  以外のパラメタを含むが,  $l'$ ,  $l''$ ,  $\dots$  等には含まれない。 $\phi''$ ,  $\phi^{(4)}$  についても

\* この細分法では  $k$  番目の段階で新たに  $2^{k-1}+1$  個計算しなければならないので,  $k$  が大きくなってから, 一段ずつめると老大な計算を追加しなければならない。この欠点をやわらげるために, 二種類の分割を組みあわせる方法も知られているが,  $k$  が小さくてすむときは逆効果になるから, プログラムに採用しなかった。

同様である。すなわち、

$$\phi'' = \{P'' - l''^2\eta - (2l'P' + l'')l\eta + l''^2(l\eta)^2\}H$$

$$\phi^{(4)} = \{a_1 + a_2\eta + a_3l\eta + a_4\eta^2 + a_5l\eta^2 + a_6(l\eta)^2 + a_7l^2\eta^3 + a_8(l\eta)^3 + a_9(l\eta)^4\}H$$

ただし、 $a_1 = P^{(4)}$ ,  $a_2 = -6l'^3P'' - 12l'l''P' - (3l''^3 + 4l'l^{(3)})P$ ,  $a_3 = -6l''P'' - 4l'P^{(3)} - 4l^{(3)}P' - l^{(4)}P$ ,  $a_4 = 3l'^4P$ ,  $a_5 = 12l'^3P'' + 18l'^2l''P$  となる。これらの係数は  $\xi$  だけの関数であるから、充分こまかい分割に対して\*一度計算して、内部記憶装置 (access time の短い core memory) に貯えておけば  $\phi$  を計算するついでに  $\phi''$ ,  $\phi^{(4)}$  を計算することは大して時間を要しないだろう。しかしこれは TSK III の記憶容量では無理である。

$g = 2/(1 + \xi^2)$ ,  $h = 1/\xi^2$  とすると、

$$P = \frac{1}{2}(1 + h) - g, \quad P' = -\xi(h^2 - g^2), \quad P'' = 3h^2 - 3g^2 + 2g^3$$

$$P^{(3)} = -6\xi(2h^3 - g^3 + g^4), \quad P^{(4)} = -6(-10h^3 + 5g^3 - 10g^4 + 4g^5)$$

$$l' = \xi(g - h), \quad l'' = g^2 - g + h, \quad l''' = -\xi(2h^2 - g^2 + 2g^3)$$

$$l^{(4)} = 3(h^2 - g^2 + 4g^3 - 2g^4)$$

であり  $g$  と  $h$  の間に  $gh = 2h - g$  の関係があるから、手順をよくすれば係数は割合早く求まる\*\*。

#### 4. 粒体の運動と粒子混合についての模型実験

パッキングは粒子集団の静的な形状を示すものであるが、粒子集団内部の動的な状態変化の基本的なものとして、粒子の相対的な配位の変化があげられよう。異種の粒子からなる粒子群における配位の変化の中で混合、分離は統計的な観点からも興味があり、実用面からも重要な問題である。この種の問題に関しては実用の粉粒体について、実際の混合機、分離機について、性能をしらべ、それを向上させようという研究が多くの方で行なわれており、それに関連した理論的研究もなされてはいる。しかし粒子集団の振舞いを統計的観点から根本的に調べることは、まだあまり行なわれていない。が、パッキングの研究が、最近になってようやく統計的観点からなされるようになり、次第に面目をかえると同時に、各方面で重要視されて来つつあることを考えると、やがてこの種の問題も多く取上げられるだろう。

パッキングは幾何学的なものであるのに対し、粒子集団の運動は、力学的な問題である。これを力学的観点からみると、不連続体の力学という、まだあまり開拓の進んでいない分野の問題といえよう。従来の力学（ここでは勿論、古典力学の成立つ世界のことで、量子力学や相対性力学のことは考えていない）は主として質点の力学と、連続体の力学であるが、これだけでは記述、定式化に不便であるような現象が、粉粒体の場合に存在する。統計的に集団を扱うものとしては統計力学があるが、これは狭義の粒子統計の対象となる粉粒体を扱うためののではないことは周知の通りである。狭義の粒子統計の対象の範囲では、粒度の極めて小さい領域をのぞいて、固有の粒子間力が微弱で、いわゆる離散体で、外からの攪乱がなければ内部運動を起さない。そして粒子は有限の大きさをもっていて、内部的相対運動を行なうためには、不均一な外力の他に、粒子の動き得るための空間が必要となる。このような意味でも統計力学をただちに右から左へ適用するわけにはゆかない。

\* あまり細いと以下に述べる形式的計算法では計算機は overflow し、またはしないまでも誤差を生ずる。

\*\* しかし  $\phi''$  までにとどめるのが効果的である。 $\phi$  だけを用いた最も簡単な（計算には無駄の多い）プログラムに比して計算時間で約 50 倍以上の能率化ができる。但し 0.00001 の桁まで求める場合である。そして  $x$  の小さい所で収束がよくないから 0.001 程度であきらめることにしての話である。



このような離散体に対する統計的な力学一般を口にするのは、余りにも先走ったことである。ただ粒子集団の力学的性質の関与する現象には、統計的な方法での近接の望まれるものも多いと思われるから、統計的研究も次第に増加するであろう。そしてこのような未開拓の領域では取扱う現象が異なり、方法が異っていても個々の研究が、互いに研究を進める上で役に立ち、これらが集積して、全体の進歩がなされるものと考えられる。以下に述べる筆者の研究は、非常に特殊で制限された問題であるが、このような意味で少しでも寄与できればと考えて始めたものである。

筆者はさきの模型粒子によるランダムパッキングの研究に際し、偏りのないパッキングをつくるのに苦心した。振盪すればかえって大きい粒子と小さい粒子との分離が起る。この現象、すなわち大粒子の浮上りは、自然界にも、工業混合に際してもみかけられることで、現象としては知られているが、粒子の大きさが関与する現象であり、基礎的にはあまり研究されていないようであるから、少しくわしく調べてみようと思い立った。そのころ丁度、統計的モデル解析についての総合研究に参加することができ、少し研究費を得たので、それをもとに実験的研究を計画した。すなわち振盪による混合、分離の過程を調べることが目的である。一口に振盪といっても力の型にさまざまなものがある。条件を限定すると一般性を失うことになるが、一方条件をあいまいにしておくとも結果は漠然とし、原理的な解釈がつかないから、研究が発展性のないものに終る可能性が強い。粒子として比重が一定の模型球を用い、粒子の径とな振幅で振動するのが、粒径や外力との関係をつけるのに、最もよさそうに思えた\*。

計画は立てたものの、実験的研究に適当な補助者のないことに悩んでいた所、早大機械教室の奥村敦史教授から門下学生を毎年派遣していただけることとなり、この学生諸君の協力によって研究を実施することができるようになった。

まず振盪機の製作から始め、ようやく昨年始めから本格的にデータをとるようになったが、現象は思ったより複雑で、実験をすすめるにつれ、予想しなかった事実もあらわれ、まだ充分見通しのある定式化を行なうに到っていない。現象に対する一つのまとまった見解を得るためには、今少し時日を要するので、それは更めて発表することにし、ここではこれまでの研究の経過と部分的な結果の概略をのべる。

振盪機の製作；粒子群が内部運動を行なうためには、粒子が一様でない力を受けることと、粒子が動き得る空間がつけられることが必要である。従って粒子を入れた容器を水平に振盪する場合には殆んど混合現象が起らないが、垂直振盪による混合は、もし水平運動を同時に加えると、その効果が非常に大きくなると想像される。すなわち、単独では無効のものが加わって大きな効果を齎らすという現象である。これは日常の物理現象としては面白いから、このことも調べたいと考えた\*\*。粒子は検討の結果、市販のラクトロイド球（合成樹脂）を用いることにし、取敢えず、直径 8 mm, 6 mm, 4 mm の三種を用いた。容器はアクリル樹脂円筒で高さ 20 cm, 内径の 10 cm と 8 cm の二個を用意した。この程度の大きさ重さのものを、数 cm もの振幅で振盪するものは、市販していないので、特に設計し、振動数、振幅ともに可変で、しかも垂直および水平方向に単独および同時に正弦運動を行なう装置をつくった\*\*\*。

容器は底より幅 2 cm の 5 個の輪に切断し、アルミ製外枠により固定し、振動中の粒子の運動に対する測定装置をもたないため、振動の前後における容器各層の状態の変化をしらべることにした。これには各層内における粒度分布（重量比）を測定する。

\* 力学的相似についてはまだ何もわかっていないから、出た所勝負でやってみるより仕方ない。

\*\* 実際にはまだ調べていない。

\*\*\* この設計には沢田威文（現在ミツミ電機）；大須賀惇雄の両君があたった。機構は沢田君の考案になるものである。また製作は佐藤板金工業所の好意に負う所が大きい。

研究方針： まず垂直運動のみに限定し、粒子は二種類とし、最初は分離した状態におき、時間とともに状態の変化をみることに、長時間混合機における最終状態（浮上り現象の効果）をみることにの二点に重点をおいた。

このことは現在でもかわっていないが、次に述べる擬対流運動が、容器内での運動の基本的なものであることをみつけたので、それを追求して、現象における因果のすじみちを立てることにした。まず粒子性を滅却して連続体として大づかみの関係を求めた。しかしこれでは十分説明がつかず不明の現象もあらわれるので、更にくわしくしらべるため、縦割りの容器を用い、容器内で粒子群のつくる模様の変化を追うことにした。これによると、粒子性が大きくきく所が明らかになった。これの解析が成功すれば、一応この実験範囲内での統一の見解ができ、更に実験を拡大し力学的相似を知ることにより一歩近づくことができよう。

擬対流運動： 粒子の振盪中の運動は測定値には直接関係しない。振盪前後の変位が測定値に関係するので、以下この変位のことを単に運動と称することが多い。

実験を始める前には、粒子の混合は主として拡散によるものと考え、容器の下層部に大粒子、上層部に小粒子を入れて振盪すると、境界面から次第に拡散するものと想像していた。（そしてこのような場合の拡散が果して Brown 運動や random walk の場合と同じ様子を示すものかどうかの一つの関心事であった。しかし実際は、最大加速度が 3g 以下では対流に似た動きが圧倒的である\*。

この擬対流運動（以下対流と称する）の原因は明らかである。垂直正弦運動で、粒子群が上にほうり上げられたとき容器の壁の部分はずでに下向きの加速度をもち、摩擦によってそれが粒子に伝わる。粒子の中で容器の壁から遠いものはこの影響を受けにくいから下降が遅れる。これで相対的には中心部は上昇、周辺部は下降する。運動のむきの逆の時は、この効果はないから、相対速度の向きは平均的に一定している。これが対流の原因である。

この対流は各層の粒度分布の変化からもわかるし、着色球を用い各層の断面の変化を見てもわかる\*\*。図 10 はその一例である。

#### 運動の速さと振動条件の関係\*\*\*:

対流が圧倒的だとすると、混合状態への到達の速さ、は対流の速さによって定まってくるであろう。そして運動が定常で、容器内の各点の速度は相似である（任意のきまった点の速度に比例する）と考え、容器内の代表的な点における速度を比較することによって対流の速さが比較される。

測定値の安定、測定容易さから、容器の中心における上から 4 層目の表面から最上図までの上昇時間を測定し、対流の速さの代りにした。

上昇時間は粒子の表面状態に大いに依存する、たとえば、振動条件が一定でも次のような変異がある。

- a. 粒子が水にぬれている状態 約 20 分
- b. 滑り粉を表面に均一に附着させた状態 11 分
- c. 洗浄し乾燥した状態 3 分
- d. この実験で普通の状態（多少細い粉と油とが附着していると思われる） 54 秒

研究目的から、この要因は困るので、表面状態を一定にして、正常の状態かどうかを check し

\* もっと反発係数大きい不規則形の粒子を用いると拡散が圧倒的になるかも知れない。

\*\* 着色球と白色球のわずかな性質の相違が重大な影響をもつかと思ったが、全然そのようなことはなかった。

\*\*\* この実験は主として松林大樹、大塚康雄の両君によって遂行された。

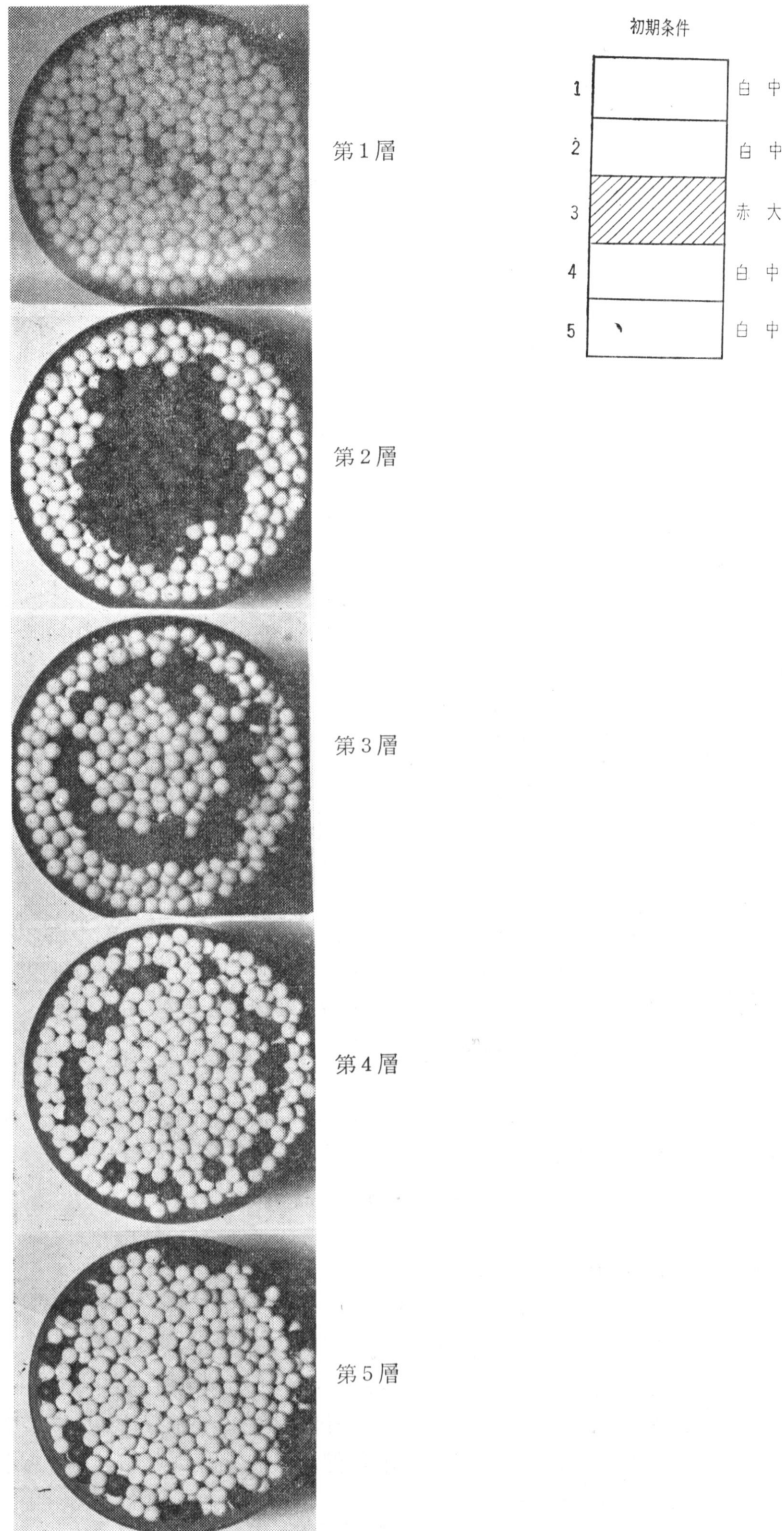


図 10 振動初期のある時点における各層の上面  
振幅 12 mm 回転数 320 r.p.m.

ながら\*実験を行なった。

混合の速さに関係するのは、振動のエネルギー（あるいは速度）であるか、振動の加速度であるのか、まず問題である。このために振動数  $\omega$  を一定 (42.1 rad/sec) とし片振幅  $r$  を 0.5~1.2 cm までの範囲で変化させて測定し (図 11), つぎに  $r$  を一定 (1.1 cm) にして  $\omega$  を 30~50 rad/sec の範囲で変化させて測定した (図 12)。これらの結果に曲線を fit し上昇時間から逆に  $r, \omega$  を読む。そして  $r\omega^2, r^2\omega^2$  を計算する。同じ上昇時間に対する単位 energy

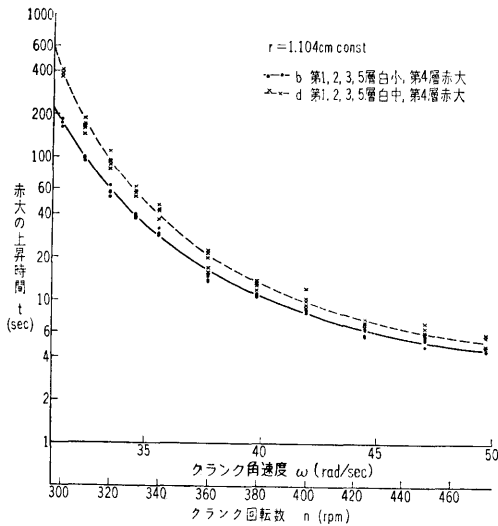


図 11 上昇時間に及ぼすクランク半径(振幅)の影響

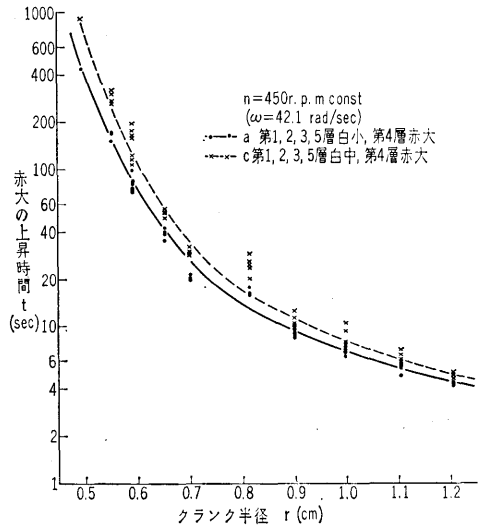


図 12 上昇時間に及ぼすクランク回転数の影響

の値は  $\omega$  = 一定 のときと,  $r$  = 一定 のときとは異っているのに対し, 最大加速度  $r\omega^2$  に対してはほぼ一定の値である。これから, 上昇時間, すなわち対流の速さは加速度に関係することがわかったわけであるが, なお,  $r^\alpha\omega^\beta$  なる量に依存すると考えて,  $\alpha, \beta$  の比を求めた。これはなまのデータからでは不可能で,  $\omega = \omega_0$  (一定) の曲線から読みとった上昇時間  $t_i$  に対する  $r$  の値を  $r_i$ ,  $r = r_0$  (一定) の曲線から読みとった  $t_i$  に対する値を  $\omega_i$  とし,

$$r_i^\alpha \omega_0^\beta = r_0^\alpha \omega_i^\beta$$

すなわち,

$$\alpha(\log r_i - \log r_0) + \beta(\log \omega_0 - \log \omega_i) = 0$$

から最小二乗法で求めた。結果は,

$$A = r^{1.07} \omega^2$$

の形となる (図 13)。

つぎに最大加速度  $r\omega^2$  が重力の加速度  $g$  以下では運動は起らないことを考慮し,

$$t_i(A_i - 980)^\delta = 10^\sigma$$

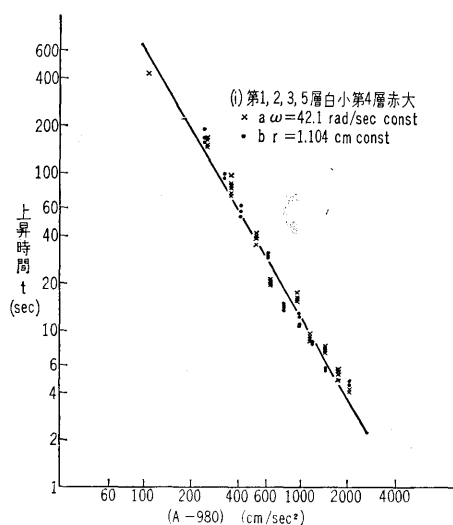
として  $\delta, \sigma$  を最小二乗法で求めた。 $\delta$  は約 1.8 で, あるから, 流流の速度は,

$$(r^{1.07}\omega^2 - g)^{1.8} \dots\dots\dots (4.2)$$

に比例するという結論を得た。この結論についての数値のこまかい部分についての理論的検討は行っていない。むしろこれは定量的な研究の第0近似として利用されるべきであろう\*\*。こ

\* 毎日, 始めとおわりにきまった条件で上昇時間を測定しそれによって check する。

\*\* 対流の原因から考えると速さの加速度依存は当然のようである。しかしやはり, 実験してみなければわからなかった。むしろこの結果は原因に対する考察を裏づけるものである。

図 13  $(A-980) \sim t$  曲線

の実験の初期条件は、すべて上から4層目には大球を入れ、上の三層と最下層に中球を入れた場合について行われた。なお振動機はクランク機構であるので、速度、加速度は（廻転半径）/（ロッド長さ）の比に依存する適当な補正をしているが、ここでは叙述を簡単にするため、一々ことわらない。

#### 層内の成分比の時間的变化。

以後五つの層を上から1層，2層，……，5層と呼ぶことにする。二成分の場合しかまだ扱っていないので、粒度分布に対応するものとしては第*i*層における粒子の全量に対する大きい方の粒子の量の比率  $P_i$  を考えれば充分である。

問題は、混合状態の変化から見てゆこうということであるから、まずは振動条件を一定にし、配位の初期条件をいろいろに変えて  $P_i$  の変化を見た。

実験点は次の通りで、各実験点で3～5回のくりかえしを行った。（実験装置の構造上、時間をつぎ足すわけにゆかない。各時点の測定は別々の sample process に対応するわけである。

初 期 条 件					時 間（'は分''は秒）
1	2	3	4	5	
白中	白中	白大	白大	白大	0.5', 1', 1.5', 2', 2.5', 3', 3.5', 4', 4.5', 5', 5.5', 6', 6.5', 7', 7.5', 8', 8.5', 10'
白大	白大	白中	白中	白中	0.5', 1', 1.5', 2', 2.5', 3', 3.5', 4', 4.5', 5', 5.5', 6', 6.5', 7', 7.5', 8', 8.5', 9', 9.5', 10', 11', 12', 15', 30', 60'
白大	白大	赤大	白大	白大	15'', 30'', 45'', 60'', 75'', 90'', 105'', 120'', 135'', 150''
白大	白大	白大	赤大	白大	15'', 30'', 45'', 60'', 75'', 90'', 105'', 120'', 135'', 150''
白小	白小	赤大	白小	白小	15'', 30'', 45'', 60'', 75'', 90'', 105'', 120'', 135'', 150''
白小	白小	白小	赤大	白小	15'', 30'', 45'', 60'', 75'', 90'', 105'', 120'', 135'', 150''

しかし時間の増加とともに測定値の分散は増加するということもなく、数回の測定の平均をとったものは時間経過に対して割合きれいに仕上がる。

振盪条件は何れも  $r=11.9\text{ cm}$   $\omega=33.5\text{ rad/sec}$  容器大である。前表で初期条件 

1	白中
---	----

 は1層に白の中球を入れるという意味。大は8mm, 中は6mm, 小は4mmの球である。各  $P_i$  のグラフは時間とともに波をうつ。これは対流によるものである (図14, 15)

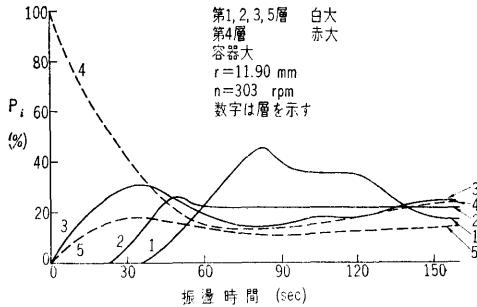


図14 測定値による混合比曲線

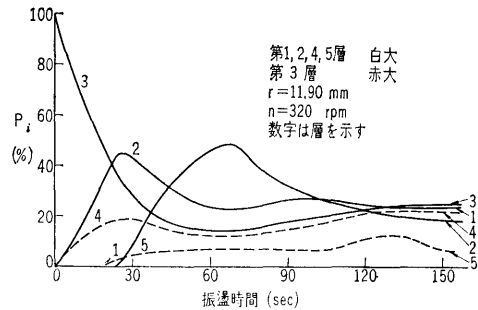


図15 測定値による混合比曲線

これをはっきりさせるということと、速度分布を明確にし更に深い研究への足がかりとするために、実験曲線と、簡単な対流モデルによる計算値とを比較した。

まづ筆者は普通の粘性流体と同様のことで間にあるのではないかと考えて、円筒のラジアル方向の速度分布を二次関数とし、上下端で単純な折返しを行なうものを計算した(モデルI)。

もち論上下の両端での複雑な動きがこのような単純なものであらわれないから、びたり実験値にあうとは期待しなかったが、そのことを考慮しても波の特徴などがあわない。(このモデルIは層流ではあるが混合は起る) (図16)。

これに対し松林大樹君は速度分布関数を  $n$  次とし、質量保存に適合するよう端で混合操作を入れるモデルを考えた。モデルII。(このモデルIIは複雑で、長い時間の経過に対して計算す

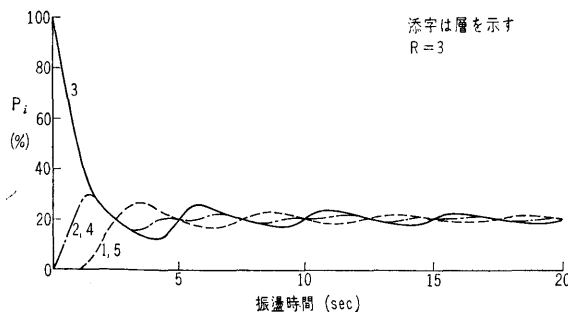


図16 モデルIの混合比曲線

ることは困難であるが、実験値の  $P_i$  は混合状態に達するまでの変化がいちじるしいのであるから、この困難は重要ではない。実験値は  $P_i$  だけ特別な動きをしているので、これでも正確にあうことは望めないが、 $n=4$  とするとかなりよくあうことがわかった (図17, 18)。

このことは対流が普通の粘性流体とは異なる振舞いをしていることを示している。

それでも疑問は残った。4次の速度分布を仮定すると、静止点(容器との相対速度が0の所

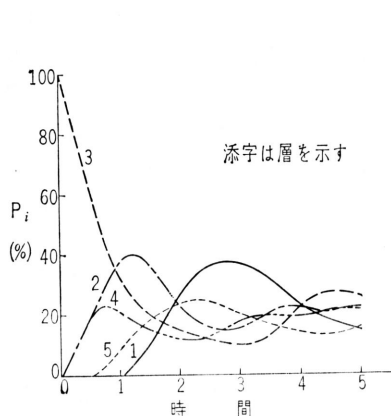


図 17 モデルⅡの混合比曲線 ( $k=3, n=4$ )

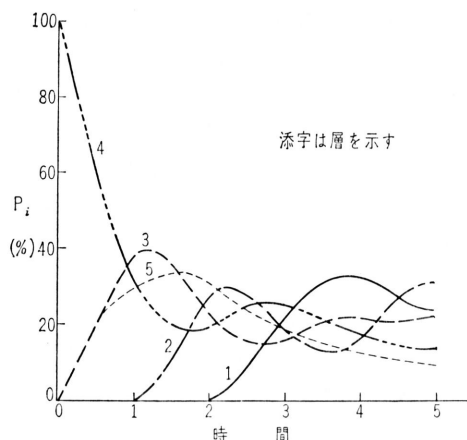


図 18 モデルⅡの混合比曲線 ( $k=4, n=4$ )

で、モデルⅡでは円柱面)はずっと壁に近いものとなるが、断面写真から観察すると、それほど近くはなく、むしろ二次の速度分布のそれに近い。また第5層に小さい粒子がおちると殆んど動かないという考えも、最初に5層に小球、その上は大球を入れて振盪すると、しばらくたつと、完全に入れかわり5層は大球ばかりとなることから誤りである。(これに対しては混合された状態と混合していない状態とは速度の異なること、混合された状態では大球と小球とで上昇速度に差異があり粒子の入れかわりが行なわれるとすれば、定性的には説明がつくが、定量的にはわからない)。このようなこともあるので、なお追求するために縦割りにした容器を用いて、縦断面を観測することにした。これについては目下実験の途中であるが、粒度および成分比のちがいでパターンの異なること(このパターンは粒径に関し極めて微妙である)。振動条件をかえても、少なくとも初期においては、パターン自身は異なること。長時間の振盪によって、大粒子が浮上りのみならず、速度0の場所に集る傾向のあることなどがわかって来た。現象は複雑であるが、不連続体の特徴があらわれてきて、研究は佳境に入ってきた感がある。

写真は縦断面の一例で、パターンとして割合素直なものである\* (図 19, 20)。

最終混合状態： この研究のきっかけは、大きな粒子の浮き上り現象であった。最終的にどのような状態に達するか、それと粒子径、振動条件との関係は興味がある。そもそも分離と混合とをいつまでもくりかえすのか、それとも平衡状態に達するのかも私には不明であった。

前述の運動の速さの実験によれば、完全には証明されたわけではないが、まず近似的にせよ平衡状態があると考えてよい。そしてわれわれの実験の範囲では大体10分～30分で達し得る。

振動条件は一まず一定とし、球径の差異、混合率の差異で最終状態がどのように異なるかを輪切り容器でしらべてみた。最終的な  $P_i$  は、勿論初期の配位にはよらないで、ただ混合率  $P_0 = (\text{大粒子の全量}) / (\text{全粒子の重量})$  にのみ依存する。

実験は、振幅 11.8 cm、廻転数 320 r.p.m. で行なった。粒径は (大, 小), (中, 小), (大,

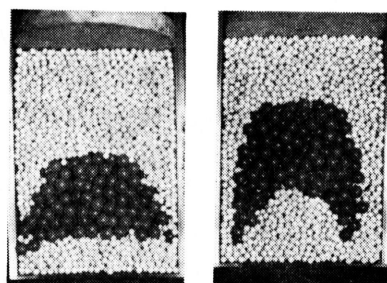


図 19

図 20

\* この写真測定は安井脩, 村上賢二の両君によって行なわれつつある。

中),  $P_0=0.2, 0.4, 0.6, 0.8$ , 容器大, 小のすべての組合せに対し各々の場合につき4回測定をくりかえした. この他に対照として, 廻転数を400にし, (振幅はそのまま)  $P_0=0.6$ のときに容器の大, 小について測定した. 各々  $P_1 \sim P_8$  まであるのでデータの数520となる. このデータはなまのまま計算機に入れられ, 10種類の種々の混合をあらわす測度に変換され, その各々について, 種々の平均, 種々の分散が能率よく計算された. 種々の測度は混合をあらわすものとしてそれぞれ特徴をもつ. たとえば  $P_i$  から各層の粒度分布(数分布)の平均  $(\bar{x})_i$  や分散  $(\sigma_x^2)_i$  は容易に計算される\*.  $(\sigma_x^2)_i$  が小さければよく混合しているということであろうが, これは一つの容器内での比較にはなっても, 他の場合との比較にならない. 他の場合との比較を行なうためには  $(\bar{x})_i$  の層間変動がよさそうであるが, しかし, これは  $P_0$  の如何によって当然変ってくる.  $P_0$  が小さいと平均粒度が小さいので層間変動も小さい. そこで  $(\bar{x})_i$  の変動係数をとればよいようである. しかし実はそれをとっても, なおかつ  $P_0$  に依存する.

これはまだよい方であるが, やたらなものをとると, 容器の大小, 粒径比などに関し全然何れがよく混合するのかわからない. 統計的検定にかけなければ有意差がわからない. このようなものでなく, 混合度を  $P_0$  の如何にかかわらずあらわすもので, しかも算式の意味の明瞭なものはないだろうか. こうして思いついたのが, 悪魔の分離能力である. 極めて大雑把なものであるが, これを説明する.

今 I, II の二つの領域に赤玉と白玉があり, 常に境界を通して交換が行なわれているものとする(従って領域における質量は保存されている). この境界に悪魔がいて I の領域に白を集め II に赤を集めようとしている. もし I の白と II の赤が交換しようとするときは追いかえし, I の赤と II の白とが交換しようとするときは必ずこれを実行させる(ともに白, ともに赤のときは問題ない). ところで, この悪魔は全能でなく交換を中止させるべきときに怠り, 交換させるべきときに中止させることがある. そこでその能力を  $x$  とする. これは1から誤りの確率を引いたものである. 領域 I における赤白合計に対する赤玉の割合を  $P_1$ , II におけるそれを  $P_2$  とする. 交換しようとする現象はランダムマッチングによるものとする. このような状況の下で, マッチングに際し領域 I の赤が一つふえる確率は  $(1-x)(1-P_1)P_2$  で, 白が一つふえる確率は  $xP_1(1-P_2)$  である. 統計的平衡状態に達した場合には, この二つの確率が等しくなるべきだから,

$$x = \frac{(1-P_1)P_2}{P_1(1-P_2)+P_2(1-P_1)}$$

が成立つ.  $P_1, P_2$  の平衡状態における値から悪魔の能力の接点となされる. しかしこのままでは, 全く怠慢で何もしない悪魔は50点( $x=1/2$ ) いただくことになるから, このようなものを0にし, 逆のを行なうものに負の値をつけるために  $2x-1$  を分離能として考える.

さて, われわれの場合は球の大きさが異なるが, 大小の球はそれぞれいくつかづつあつまって恰も大小の体積の最小公倍数の体積をもつ等大の粒子として振舞うものとすれば, 重量比の  $P_i$  は上に述べた  $P_1, P_2$  と同じ意味をもつから, 第  $i$  層と第  $i+1$  層の間の悪魔に対し,

$$2x-1 = \frac{P_{i+1}-P_i}{P_i(1-P_{i+1})+P_{i+1}(1-P_i)}$$

を与えればよい. われわれの場合は境界面が四つ( $i=1 \sim 4$ ) であるが, その4個の境界における悪魔の能力を平均したのが平均分離能である. これは  $P_0$  にあまり関係ない. そして容器, 粒径等の間での差異が割合はっきりしている.

この結果は表4に示す通りである. これによると容器の小さい方が分離が大きい.

\* この模型実験の場合重量の測定から数に変換するときの誤差は1個以内である.(実験的にもたしかめてある).



表 4  
平均粒度の変動係数

$P_0$ 粒径		(8, 4)	(6, 4)	(8, 6)
容器大	.2	.0132	.0078	.0076
	.4	.0267	.0128	.0160
	.6	.0477	.0197	.0233
	.8	.0913	.0307	.0222
容器小	.2	.0241	.0084	.0102
	.4	.0423	.0171	.0228
	.6	.0540	.0231	.0275
	.8	.0964	.0285	.0294

平均分離能 (%)

$P_0$ 粒径		(8, 4)	(6, 4)	(8, 6)
容器大	.2	17.96	9.78	11.75
	.4	16.43	7.30	10.57
	.6	16.62	7.71	11.22
	.8	20.91	9.71	9.86
容器小	.2	33.36	10.37	13.75
	.4	29.29	10.02	16.13
	.6	19.17	8.30	13.92
	.8	22.98	8.95	15.00

粒径比=(大きな方の径)/(小さい方の径)については、これが大きいほど、分離が大であるように考えられ勝ちであるが、実際は表にあらわれたごとく 6 mm/4 mm の場合が最も分離しにくかった(径比は 8/4, 6/4, 8/6 の順であるにもかかわらず、分離のよさは 8/4, 8/6, 6/4 の順である)。この原因は粒子径の絶対値が円筒に対して小さいことによる\*。(以上)

この研究をすすめるについて、多くの方々から、さまざまな形で心あたたまる御助力をいただきました。まだ十分研究成果をあげるにいたらず、これらの御好意に報いることができないのは残念で、また恥入る次第ですが、御好意を心にかみしめ、これからも努力するつもりです。何卒これからも一層の御鞭達御指導をお願いする次第です。

統計数理研究所

## 文 献

- 1) J. M. Dallavall: Micromeritics, Pitman Publ. 1948.
- 2) G. Herdan & M. Smith: Small particle statistics, Elsevier Co., 1953.
- 3) I. Higuti: A statistical research on colloidal graphite 1. Ann. Inst. Math. Stat. Vol. VI, No. 2, 1954.
- 4) I. Higuti: Some problems on the errors of superfine powder measurement, Bulletin of I.S.I.,

\* 縦断写真によると、小さい粒子は壁に沿って底の方まで到達可能であるが大粒子は途中から壁より内側に押しこまれるので、下に到達する数が少なくなる。

Vol. XXXVIII, Part III, 1961.

- 5) 樋口伊佐夫: Tromp-Curve 解析に関する注意, 統教研彙報, 3 巻, 2 号, 1956.
- 6) 今泉常正: トロンブ配分曲線の分級およびフルイ分けへの応用, 選炭, Vol. 7, No. 31, 1957.
- 7) K. O. Rice: J. Chem. Phys. 12, 1, 1944.
- 8) G. D. Scott: Packing of equal spheres, Nature, 1960.
- 9) A. H. Bowdlyk: Some remarks concerning close packing of equal spheres, Philips, Repts, 7, 1952.
- 10) M. E. Wise: Dense random packing of unequal spheres Philips, Rep. Rep. 7, 1952.
- 11) Hogendijk: Random dense packing of spheres with a discrete distribution of the radii, Philips, Res. Rep. 18, 1963.
- 12) I. Higuti: A Statistical study of random packing of unequal spheres, Ann. Inst. Math. Stat., Vol. VII, No. 3, 1960.
- 13) J. D. Bernal & J. Mason: Packing of spheres, Nature, 1960.
- 14) J. D. Bernal: The Structure of Liquid; Scientific American, Aug. 1960.
- 15) E. C. Pielou: Single mechanism to account for regular random aggregated populations, J. Ecol. 48, 1960.
- 16) G. F. Round & R. Newton: Random packing of equal spheres on a plane surface, Nature, 1963.
- 17) M. J. Vold: Sediment volume and structure in dispersions of anisometric particles, J. Chem. Phys., 1962.
- 18) A. Renyi: On a one-dimensional problem concerning random place filling, Mag. Tud. Akad. Kut. Mat. Intezet. Közlenényei, 1958.
- 19) G. Bánkövi: On gaps generated by a random space filling procedure, Pub. Math. Inst. Hung. Sci., 1962.