

# Synthesiology

技術アーキテクチャ分析の提案

過酸化水素を用いるクリーンで実用的な酸化技術

有害物質規制に対応するための  
プラスチック認証標準物質の開発

マグネシウム合金連続鋳造材の鍛造プロセス開発

シンセシオロジー編集委員会

本誌は、成果を社会に活かそうとする研究活動の目標と社会的価値、具体的なシナリオや研究手順、また要素技術の構成・統合のプロセスを記述した論文誌です。本号論文の価値が一目で判るように、編集委員会が作成したシンセシオロジー論文としてのポイントを示します。

シンセシオロジー編集委員会

### 技術アーキテクチャ分析の提案

#### －カーナビゲーション開発への適用事例－

能見（経済産業省）らは、住友電工が研究開発および実用化を行ったカーナビゲーションシステムを対象に、主に要素技術の組み合わせ方を分析し、新製品開発の方法や戦略に関わる新たな知見を論述している。研究開発の経緯と方法を技術経営論の視点から改めて分析・整理して図示することにより、技術アーキテクチャの組み立てを方法論として汎用化する試みの論文として、産業界等において、新製品の研究開発計画の確度を高める波及効果が期待できる。

### 過酸化水素を用いるクリーンで実用的な酸化技術

#### －新規触媒の開発とファインケミカルズへの展開－

今（産総研）らは、グリーン・サステナブルケミストリーの典型的な具体例として著者らが世界に先駆けて示した過酸化水素酸化技術について、基盤研究としての新規触媒の開発から、最終的に製品化を目的としたベンチプラントサイズでの製造と製品開発まで、その要素技術の構成と統合に関する研究シナリオを述べている。化学工業における触媒技術の重要性および新規触媒技術が工業的に実用される際に必要な他の視点や技術の重要性に言及した統合化学技術に関する論文である。

### 有害物質規制に対応するためのプラスチック認証標準物質の開発

#### －RoHS指令対応の重金属分析用および臭素系難燃剤分析用に－

日置（産総研）らは、本論文において、プラスチック認証標準物質が必要とされた社会的な背景、ニーズを捉えてから認証標準物質の開発に至る経緯、また、そのニーズを具現化するための技術開発、そして実社会への貢献としての標準物質の頒布の状況をまとめている。RoHS 指令への緊急な対応という産業界等からの強い要請に的確に対応し、国際的に通用する重金属と臭素系難燃剤の標準物質を開発した戦略とプロセスが適切に記述されている。

### マグネシウム合金連続鋳造材の鍛造プロセス開発

#### －結晶粒微細化を利用した鍛造技術－

省資源・省エネルギーの観点から広範囲の工業製品に対して軽量化の社会的要請がある。斎藤（産総研）らは、構造用金属材料の中で最も軽量であるマグネシウム合金に関して、従来困難とされてきた連続鋳造材の低温鍛造プロセスを開発し、コスト低減、環境低負荷、作業環境改善に大きく貢献した事例を示している。特に、産総研が有する基礎基盤技術と企業が有するものづくり技術の密接な連携によって鍛造プロセスを開発した際に選択した要素技術やその統合シナリオが述べられている。

# Synthesiology 第8巻第1号(2015.2) 目次

論文のポイント	i
研究論文	
技術アーキテクチャ分析の提案 — カーナビゲーション開発への適用事例 — ・・・能見 利彦、池田 博榮	1-14
過酸化水素を用いるクリーンで実用的な酸化技術 — 新規触媒の開発とファインケミカルズへの展開 — ・・・今 喜裕、田中 真司、佐藤 一彦	15-26
有害物質規制に対応するためのプラスチック認証標準物質の開発 — RoHS 指令対応の重金属分析用および臭素系難燃剤分析用に — ・・・日置 昭治、大畑 昌輝、松山 重倫、衣笠 晋一	27-40
マグネシウム合金連続鍛造材の鍛造プロセス開発 — 結晶粒微細化を利用した鍛造技術 — ・・・斎藤 尚文、岩崎 源、坂本 満、神原 和夫、関口 常久	41-52
編集委員会より	
編集方針	53-54
投稿規定	55-56
編集後記	61
Contents in English	
Research papers (Abstracts)	
Proposal for technology architecture analysis — Application of the analysis method to the development of car navigation systems — --- T. NOMI and H. IKEDA	1
Clean and practical oxidation using hydrogen peroxide — Development of catalysis and application to fine chemicals — --- Y. KON, S. TANAKA and K. SATO	15
Development of plastic certified reference materials (CRMs) to cope with restrictions on hazardous substances — CRMs for analysis of heavy metals and brominated flame retardants regulated by RoHS directive — --- A. HIOKI, M. OHATA, S. MATSUYAMA and S. KINUGASA	27
Development of forging process for magnesium alloy continuous cast bars — Forging process utilizing grain refinement — --- N. SAITO, H. IWASAKI, M. SAKAMOTO, K. KANBARA and T. SEKIGUCHI	41
Editorial policy	57-58
Instructions for authors	59-60

# 技術アーキテクチャ分析の提案

## — カーナビゲーション開発への適用事例 —

能見 利彦<sup>1, 2\*</sup>、池田 博榮<sup>3</sup>

近年、製品開発には多くの要素技術を必要としており、どのような要素技術を組み合わせるかは研究開発マネジメント上の重要な課題である。この研究は、製品の機能と要素技術の関係、要素技術の間の補完・代替関係といった技術アーキテクチャ（要素技術の組み合わせ方）を図示して分析する新たな手法を提案した。また、カーナビゲーションのイノベーションにおいて、要素技術の組み合わせ方は何度も変化して、製品が進化したので、この分析手法をこの事例に適用した。これにより、技術アーキテクチャの検討手法についての重要な知見を得た。

**キーワード:**イノベーション、研究開発マネジメント、要素技術、補完関係と代替関係、技術アーキテクチャ、カーナビゲーションシステム

## Proposal for technology architecture analysis

### – Application of the analysis method to the development of car navigation systems –

Toshihiko NOMI<sup>1,2\*</sup> and Hirosaka IKEDA<sup>3</sup>

Product development involves many element technologies, so methods that analyze the integration process are important for R&D management. This paper proposes a new method to analyze *technology architecture*: i.e., a method for determining how to combine element technologies, which takes into account relations between product function and element technologies, and the complementary or substitutive relations among these element technologies. We applied this method to the case of development of car navigation systems, where the combination of element technologies changed several times. From this example application of our method, we obtained important insights into the analysis of technology architecture.

**Keywords:** Innovation, R&D management, element technologies, complementary or substitutive relation, technology architecture, car navigation system

### 1 はじめに

イノベーションには、新しい要素技術を開発することのみならず、要素技術の組み合わせ方を新たに考案することが重要である。前者は、純粋に技術的な問題であるが、後者は、新製品開発における研究開発方法に直結し、また、完成した製品の競争力にも大きく影響する。それでは、新製品開発において、どのように技術方式を選択し、どのように要素技術を組み合わせるべきだろうか。この問いに答えるためには、過去のイノベーション事例を分析し、経験を積み重ねることが大切である。

この論文では、要素技術の組み合わせ方を「技術アーキテクチャ」として分析することとする。「アーキテクチャ」は、全体システムの機能・性能とそれを構成するサブシステムと

の関係やサブシステム間の関係の基本構造を表す用語としてシステム・エンジニアリング分野で用いられてきた。近年では、経営学分野においても用いられ<sup>[1]</sup>、技術マネジメントにおいても注目されているが、そこでは、要素技術の組み合わせ方は研究開発時点で人為的に選択すべきマネジメント上の問題であることに必ずしも注意が払われてこなかった。ここでは技術面に着目して、全体システム（製品）と要素技術の関係および要素技術間の関係を検討するために「技術アーキテクチャ」の用語を用い、これを図示して分析する手法を提案する。その上で、住友電気工業（以下、「住友電工」と記す）によるカーナビゲーション車載機（以下、「カーナビ」と記す）開発の事例に適用した。カーナビ・ビジネスの初期の製品の世代交代においては、住友電

1 経済産業省 〒100-8901 千代田区霞が関 1-3-1、2 経済産業研究所 〒100-8901 千代田区霞が関 1-3-1、3 九州大学 〒814-0001 福岡市早良区百道浜 3-8-34 産学官イノベーションプラザ 2F

1. Ministry of Economy, Trade and Industry 1-3-1 Kasumigaseki, Chiyoda-ku 100-8901, Japan, 2. Research Institute of Economy, Trade & Industry (RIETI) 1-3-1 Kasumigaseki, Chiyoda-ku 100-8901, Japan \* E-mail: nomi-toshihiko@meti.go.jp, 3. Kyushu University Innovation Plaza 2F, 3-8-34 Momochihama, Sawara-ku, Fukuoka 814-0001, Japan

Original manuscript received April 10, 2014, Revisions received September 2, 2014, Accepted September 8, 2014

工が現在位置検出技術をリードしており、この事例を分析することで、技術アーキテクチャの検討方法についての興味深い知見が得られた。

なお、この研究は著者の見解であり、所属する組織の見解を示すものではない。

## 2 先行研究とこの研究の課題

カーナビの事例では、後述するように要素技術の技術方式が変化しているが、このようなイノベーションを考える上において、技術課題は産業や技術の発展段階によって異なることに留意する必要がある。Abernathy と Utterback は、新産業の初期は製品イノベーションが中心で、さまざまな技術を用いた製品が登場するが、やがて主流の設計方式（ドミナント・デザイン）に収斂し、その後はプロセス・イノベーションが中心になると指摘している<sup>[2][3]</sup>。Foster は、技術は S 曲線に沿って発展し、成熟して限界に近づいた時には技術方式を新しくすることによって限界突破することが必要だと指摘した<sup>[4]</sup>。

また、イノベーションをインクリメンタル・イノベーションとラジカル・イノベーションに 2 分類することは多いが、Henderson と Clark は、コアコンセプト（コンポーネントのコア技術）が変化するか、設計のアーキテクチャ（コアコンセプトとコンポーネントとの関係性）が変化するか<sup>[5]</sup>の 2 軸によって、図 1 に示すように、イノベーションを 4 つに分類した<sup>[5]</sup>。この図の「モジュラー・イノベーション」は、製品のコンポーネントが新技術を用いたものに置き換わるタイプを指すのに対して、「アーキテクチャル・イノベーション」は、コアコンセプトは変えないが設計のアーキテクチャを変えるタイプで、既存のコンポーネントを用いてもコンポーネント間の関係を変えるだけでイノベーションが生じることを意味する。彼らは、半導体露光装置の産業を例にして、「アーキテクチャル・イノベーション」は技術パラダイムを変え、Tushman と Anderson も指摘しているように、技術パラダイムが変化する時には競争力を有する企業が変わる<sup>[6]</sup>ので、このタイプは重要だと主張した。彼らの研究は、

		コアコンセプト	
		従来からの強化	抜本的な変化
コアコンセプトと コンポーネントとの関係性	変化せず	インクリメンタル・ イノベーション	モジュラー・ イノベーション
	変化	アーキテクチャル・ イノベーション	ラジカル・ イノベーション

図1 Henderson and Clarkによるイノベーションの分類<sup>[5]</sup>

「アーキテクチャ」に着目する点ではこの研究と類似しているが、ラジカル・イノベーションを企画する時にこそ新たな技術アーキテクチャを検討する必要があるにも係わらず、アーキテクチャル・イノベーションをラジカル・イノベーションとは別のものとしている。それに対してこの研究は、図 1 の分類にこだわらず、ラジカル・イノベーションを含めて検討する。また、技術アーキテクチャのあり方やその検討手法を彼らは分析していないが、この研究では、これが重要と考えて分析する。

なお、経営学では「製品アーキテクチャ」に関する研究が多く行われており<sup>[1][7]-[10]</sup>、それらは、製品（全体システム）ごとにそれを構成する部品（サブシステム）は定まっていることを前提として、一つのモジュールが一つの機能を担う「組み合わせ型」（例えば PC）とそうではない「すりあわせ型」とに製品をタイプ分けして、企業の競争力や適切な戦略を分析している。しかし、この研究の問題意識はこれらとは別である。

この研究の技術アーキテクチャ分析は、研究者や技術者が新製品の研究開発計画を立てる際に必要となる要素技術の組み合わせ方を検討するための手法である。この際には、アーキテクチャは技術的に定まっているものではなく、研究者・技術者が自ら設計し、選択すべき課題である。この選択の結果は企業間関係や企業の競争力を左右するために上記の経営学の研究との関連は生じるが、技術アーキテクチャの検討手法は独立した研究課題である。

## 3 この論文で用いる技術アーキテクチャの図示の手法

システム製品の性能は、その実現に必要な諸機能にブレイクダウンすることができ、それぞれの機能は一つまたは複数の要素技術によって実現される。一つの機能を実現するために複数の要素技術が必要な場合、これらの要素技術相互は「補完関係」にある。また、一つの機能を実現するための要素技術（または技術方式）の候補が複数あって、いずれか一つで目的が達成できることもあり、その場合、これらの要素技術相互は「代替関係」（または「競合関係」）にある。製品開発が終了した時点では代替関係にある要素技術は一つに絞られているが、研究開発計画の検討時点では、代替技術のどれを選択するかは、マネジメント上の重要な検討課題であるため、この研究では代替関係にある要素技術も明示的に分析する。こうした要素技術相互の補完関係や代替関係を図示するために、図 2 のように、論理回路記号の「AND」と「OR」を用いることとする。

また、時間とともに製品が進化し、要素技術も変化することが多い。その一つのタイプは、製品に新たな機能を付加し、そのための要素技術も付加するものである。これ

は、「AND」と「OR」を用いて図3a)のように図示することができるが、これは煩雑である。むしろ、新たな記号「ADD ↓」を導入することによって、図3b)のように図示することとする。また、要素技術の変化の別のタイプは、技術進歩に伴って代替関係にある他の要素技術に置き換わる変化である。これは、基本的には「OR」で表現する関係の中での現象だが、時間的な変化を表現する時に、新たな記号「OR ↓」を用いて、図4のように図示することができる。以上の通り、この論文においては論理記号「AND」と「OR」を基軸に置くとともに、新たに「ADD ↓」と「OR ↓」を用いて技術アーキテクチャを表現した。製品および要素技術の時系列での変化を考慮すると、AND系では「AND」のみで「AND ↓」は存在せず、OR系では「OR」と「OR ↓」が存在する。また、ADD系では「ADD」は存在せず「ADD ↓」のみが存在する。

なお、この論文では、図の左から右への方向は全体から要素へのプレークダウンを、右から左への方向は要素から全体への統合（Synthesis）を示すが、これは、さらに細部の要素の分析やさらに全体のシステムの分析にも適用

可能であり、全体としてホロニックな構造になっている。

#### 4 住友電工によるカーナビの開発事例

##### 4.1 カーナビ誕生のための研究開発課題

ナビゲーションは、移動体の現在位置を正しく把握する（第一の基本機能）とともに、目的地に向けてどちらに進むべきかを示す（第二の基本機能）もので<sup>[11]</sup>、昔から船舶用に用いられ、現代では航空機用にも広く用いられているが、1980年以前には自動車用は存在しなかった。それは、自動車用で必要とされる現在位置検出技術の要求水準が、船舶用や航空機用よりもはるかに厳しかったためであった。すなわち、第一に、道路の交差点や高速道路の進入口といった細かなところが大切なため、現在位置の測定誤差が小さくしなければならない。第二に、軍用航空機等のジャイロスコープには「1個で数百万円から数千万円」<sup>[12]</sup>のものまでであるが、自動車用では価格が大幅に安くなければならない。第三に、船舶の航海士や航空機のパイロットとは違って、一般の運転手が利用できるように、操作が容易でなければならない。

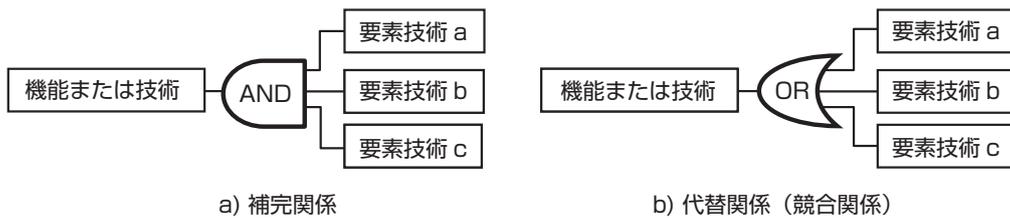


図2 要素技術相互の補完関係と代替関係（競合関係）

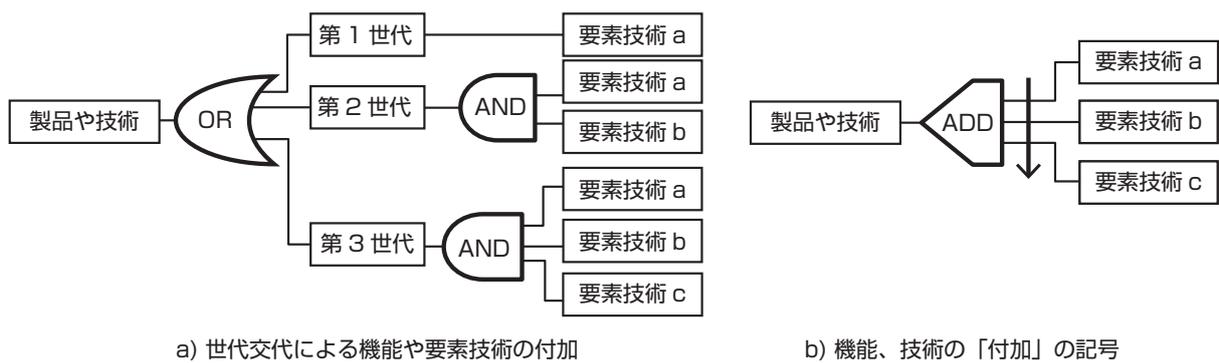


図3 付加（ADD↓）の記号

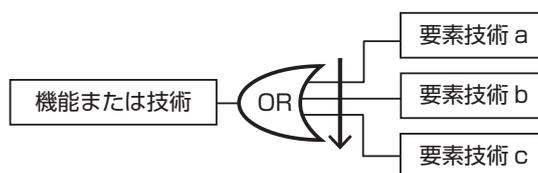


図4 代替関係の要素技術の時間変化（OR↓）

一方、ナビゲーション技術としては、船舶用や航空機用として自立航法<sup>用語1</sup>と他律航法<sup>用語2</sup>が存在した。自立航法は、出発地点から移動した方位と距離を測定して軌跡を計算し、出発時の位置と方向に加えて現在位置を知る方法である（図5）。他律航法としては、例えば、近接無線<sup>用語3</sup>の方式があり、地上に無線の基地局を設置し、移動体が近づいた時に位置情報を送信するが、自動車用の基地局は存在しなかった<sup>[13]</sup>。

このように、高性能で低廉というニーズと技術シーズ面での制約とがあって、従来、カーナビは実用化できなかったが、1980年代になると、関連する技術が進歩して、ビジネスの可能性が生じてきた。技術進歩として重要なのは、「マップマッチング技術<sup>用語6</sup>」の登場である。すなわち、1983年に、米国のベンチャー企業 ETAK 社がカーナビ用にマップマッチング技術を開発した。この技術は、自動車は道路上を走ることを前提に、測定した軌跡や現在位置を地図上の道路と比較し、誤差をソフト上で補正する技術である。自立航法では、移動距離が増すにつれて測定誤差が累積するために、高精度のセンサーが必要だったが、この技術によりセンサーへの要求精度が緩和された<sup>[13]</sup>。また、ハード面でも、1980年代になると、CD-ROM や 16 ビッ

ト CPU など小型で高性能の情報機器が登場した。

このような状況の中で、カーナビを開発する企業が出てきた。カーナビには、自車の現在位置だけを示す第1世代、それに加えて目的地までの経路案内を行う第2世代、通行時の渋滞情報、工事情報、事故情報を外部から取り込んで経路案内を行う第3世代がある（図6）。カーナビはこの世代交代を経て発達したので、以下で、カーナビの技術アーキテクチャの誕生と革新を分析する。

カーナビの開発のためには、自動車の現在位置検出技術に加え、システムを構成するハードウェア（以下、「ハード」と記す）とシステムを制御するソフトウェア（以下、「ソフト」と記す）の研究開発が必要となる。このうち現在位置検出技術としては、自立航法、GPS、近接無線およびそれらの複合方式がある<sup>[14]</sup>。自立航法にマップマッチング技術を用いる場合、それにはセンサー技術とデジタル地図が不可欠である。これらの研究開発課題を整理したのが図7である。この図は、事後的に整理したために、1980年代初期には存在しなかった技術方式（個々の技術の内容は後述する）を含んでいるが、技術アーキテクチャの基本的な構造は図の通りである。ハード（センサーを除く）の研究開発課題は図8に示したが、多くは外部から調達することとなっ

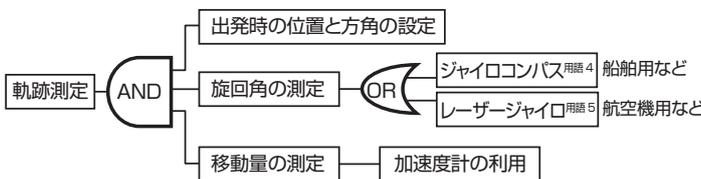


図5 自立航法による従来からの軌跡測定

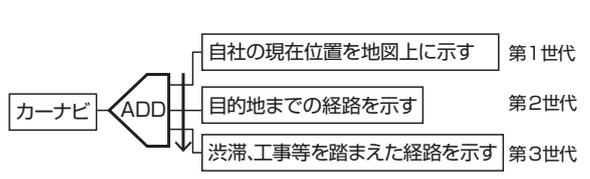


図6 カーナビの第1～3世代

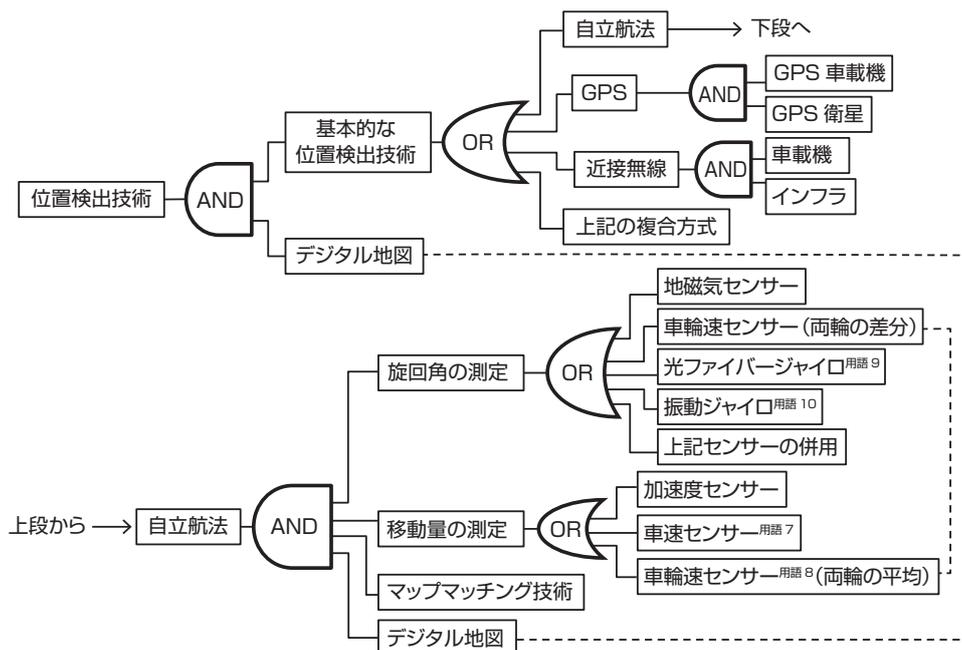


図7 カーナビの現在位置検出技術の研究開発課題（技術アーキテクチャ）

た。ソフトの研究開発課題は、現在位置検出に用いるソフトの他に、ディスプレイへの表示用ソフト、車の運転手によるカーナビ操作の制御用ソフトが必要で、第2世代以降のカーナビでは経路計算用ソフトも必要になる。

#### 4.2 住友電工による最初のカーナビ開発（第1世代前期）

住友電工は、ETAK社のマップマッチング技術に着目し、技術導入も検討したが、米国技術では日本の道路事情に合わないため、1983年から自らカーナビの研究開発に取り組んだ<sup>[13]</sup>。システム全体の目標性能は、道路1本を間違わない程度として、数十m内に誤差を納めることと設定し、価格帯は30-40万円程度を目標にした。

基本的な位置検出技術として、当時はGPSシステムの整備が不十分で利用できず、道路上の無線局は存在しなかったため近接無線も利用できず、自立航法だけが現実的な選択肢であった。上記の製品目標は当時としては極めて高かったため、自立航法の技術方式としてマップマッチング技術を用いることが基本方針で、正確なマップマッチングを行うためには、センサーに高い精度が必要で、デジタル地図にも詳細な道路情報を必要とした。

センサー技術としては、旋回角測定用のセンサーと移動量測定用のセンサーが必要で、高価なものを除けば、当時の選択肢は図9に示すように限定的なものだった。旋回角測定に、住友電工は地磁気センサーを用いたが、地磁気センサーは直流駆動電車や大きな構造物の近くなどでは狂

うためにそれだけでは不十分だった。住友電工は、アンチロックブレーキ（ABS）のメーカーとして高級車には車輪速センサーが取り付けられていることを知っていたため<sup>[13]</sup>、左右の両輪の回転数の差から旋回角情報を得ることを着想し、そのシステムを開発して、地磁気センサーと併用することとした。2種のセンサーを併用したのは、車輪速センサーにも、車輪のスリップやタイヤ空気圧の変化によって誤差が生じ、両方の情報で補完するためである。また、移動量の測定は、左右の車輪速の平均から情報を得ることとした。

デジタル地図の開発においては、2万5千分の1の地図にするか、2千5百分の1の地図にするかが選択肢となった。前者は、国土地理院が有しているので全国の地図を一括して入手できるが、生活道路などの情報は無い。マップマッチングでは精度の高い地図が重要なため、三大都市圏では2千5百分の1の地図を用いることとした。これには、市町村が有する都市計画図の地図があり、東京では23区それぞれと交渉したが、発行年度が古くて情報が古いことがあるとの問題もあった。そのため、電力会社やガス会社が配管敷設工事などのために有している詳細な地図も利用することとした。これらの情報をデジタル化するために、多額の費用を投入し、人手で情報入力を行った。

センサー以外のハードとしては、ディスプレイ、CPU、地図用メモリ、DRAMが必要だが、他社から購入できる良いものを調達した。具体的には、ディスプレイとしては6インチ程度のブラウン管を、地図用メモリとしてはCD-ROM

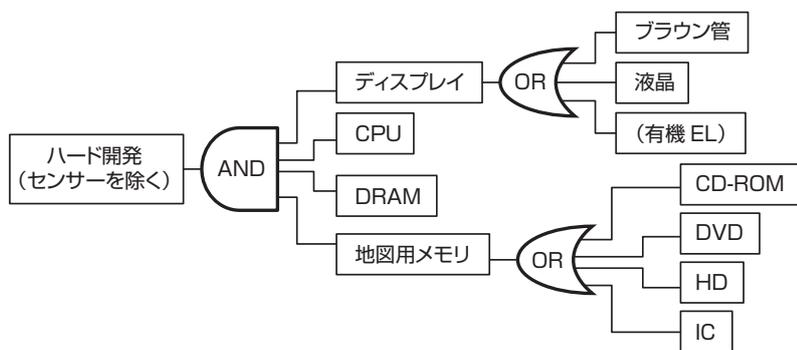


図8 ハードの開発課題

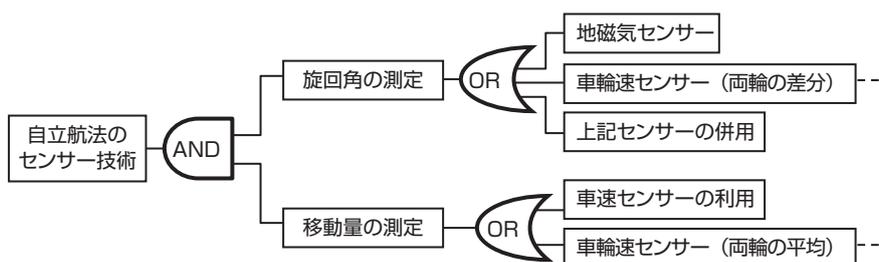


図9 最初のカーナビ開発におけるセンサー技術の選択肢

を用いることとし、CDドライブが車の振動に耐えられるようにゴムの緩衝材を用いた。

ソフトについては、車輪速センサー、地磁気センサーや移動量の情報を制御し、デジタル地図の情報と併せてマップマッチングを行うとの現在位置検出のためのソフトに加えて、計算した現在位置をディスプレイに表示するソフトや、運転手の操作による現在位置の設定などをシステムにフィードバックするソフトなどが必要で、それぞれの処理が大変複雑で、車載用CPUではかなりの処理時間を要した。しかし、運転手に対して0.3秒以内に位置表示を行うとの目標を立て、地図データの読み出しを早くするためのデータ配置、マップマッチングの計算方法などを工夫するとともに、処理速度を速くするための独自のOSを開発して目標を達成した。また、カーナビの大きなディスプレイがエアコン、オーディオの表示部や操作スイッチが置かれていた場所に設置されるため、カーナビには、エアコンやオーディオの表示・操作ができることが求められ、そのソフトも必要だった。

以上による技術アーキテクチャは図10の通りである。住友電工は、要素技術を開発した後、全体を統合した試作品を作成して、その実車走行実験を行った。全体を統合する上で特に難しい問題だったのは、センサーには測定誤差があり（時にはそれが極めて大きい）、デジタル地図の情報が古くて現実の道路が異なることもあって、絶対的に信頼できる情報がない中で現在位置を計算することだった。そ

の解決のため、各センサー情報、デジタル地図情報及びその時点までの経路情報を全て確率的に用いることとし、各情報の信頼度のさじ加減をソフト上で決めていった。このため、走行実験の結果によって課題を抽出し、ソフトを改良し、再度試作品で実験を行うとの試行錯誤を繰り返した。ただし、第1回の実車走行実験以降は、実車走行実験で収集したデータを用いた研究室でのシミュレーションを多用した。こうした改良、試作品のテスト、課題の抽出のサイクルを繰り返すことで、現在位置検出の精度を高めていった。これが住友電工独自のマップマッチング技術となった<sup>[13]</sup>。

以上の研究開発を経て完成したカーナビは、マップマッチングを初めて実用化したシステムで、ナビの示す現在位置が道路からはずれて運転手自身で現在位置を設定し直す頻度が40-50kmの走行で1回程度まで減少し、信頼性の高いものとなった。これは、当時、世界で最先端のシステムとなり、1989年に日産のセドリックとシーマに採用されて市場に登場した。

一方、運転手がカーナビを信頼するようになり、かえって、現在位置の間違いに対するクレームが来るようになった。間違いの原因は、主に、旋回角の測定精度の不足で、車輪速センサーの精度は高かったが、市場ニーズとの比較では性能不足であることが明らかとなった。

#### 4.3 光ファイバージャイロを用いた第1世代後期の開発

住友電工は1989年システムの開発直後から、次のシス

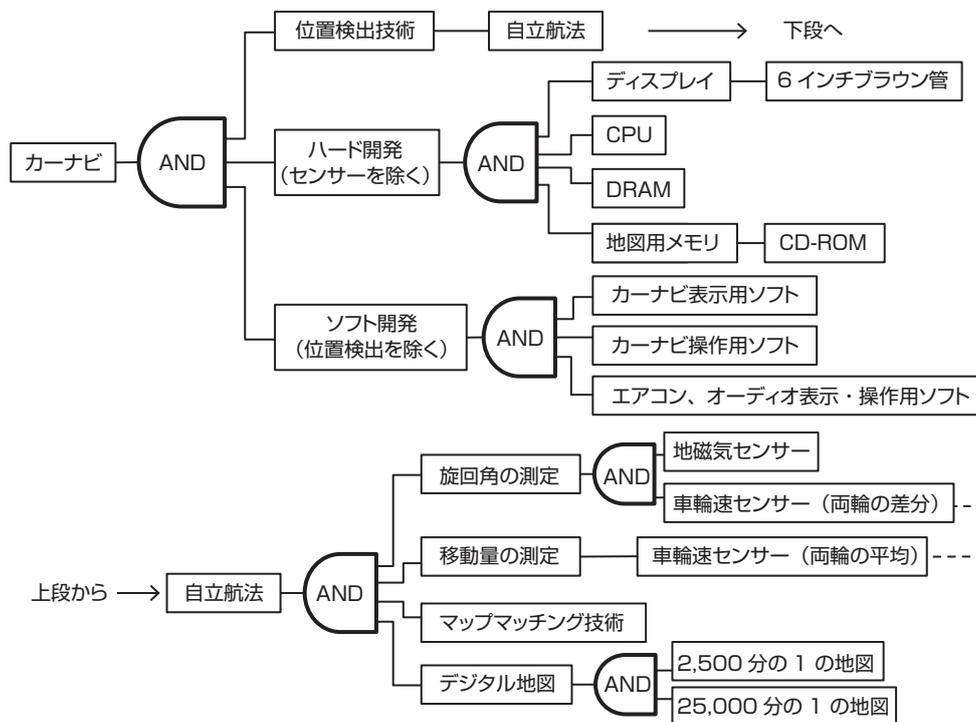


図10 最初のカーナビ（1989年システム）完成時の技術アーキテクチャ

テム開発に着手した。最も重要な課題は、車輪速センサーよりも精度が高い旋回角センサーの開発だった。当時、住友電工では、自社製の光ファイバージャイロを開発しており、その旋回角測定の精度は高かったが、サンプル価格は数百万円だった。自動車用には1-2万円以下にする必要があり、部品の材質、加工方法など要素技術1つ1つを見直すことによって、これを実現した。このシステムの技術アーキテクチャは基本的には前のシステムと同じだが、自立航法のセンサー構成は図11のように変更している。

なお、デジタル地図の作成に関しては、1988年に日本デジタル道路地図協会が設立され、関係省庁と関係企業が協力してデジタル地図の作成に取り組んでいたため、表示デザインを除いてはその成果を用いた。

このようにして開発された第1世代後期のカーナビは、日産の1991年のセドリックとシーマに搭載された。カーナビにマップマッチング技術を用いることを他社も追随したが、住友電工の製品は、他社にはない光ファイバージャイロを用いた結果、運転手による位置合わせの頻度は200kmの走行で1回くらいにまで減少し、これが競争力の源泉となった。

#### 4.4 ドミナント・デザインとなった第2世代の開発

その後のカーナビ開発の一つの課題は、現在位置把握の機能に加えて、目的地に向けてどのような経路を進むべきかを示す機能（ナビゲーションの第二の基本機能）を付加することだった。この第2世代のカーナビは他社が先行し、住友電工も追随する必要があった。このため、経路計算ソフトウェアを開発するとともに、デジタル地図に、一方通行、右折禁止などの規制情報や高速道路への接続道路などの道路間の接続情報を付加することが必要になった。経路計算ソフトに関しては、多くの大学が計算ソフトのアルゴリズムを発表していたが、膨大なメモリと高速読み出しを必要としていたため、少ないメモリでも高速で経路計算できるソフトを自社開発した。

また、関係分野の技術進歩の成果を取り入れることも課題だった。その一つはGPSである。マップマッチング技術を用いても自立航法では位置ずれは完全には避けられ

ず、絶対位置を知ることがカーナビ設計者の強い希望だったが、GPSによりそれが可能になった。GPSは、24機のGPS衛星を軌道上に配備し、地上では4機のGPS衛星からの測位用信号を受信することによって位置を知る技術である<sup>[15][16]</sup>。1978年の最初のGPS衛星打ち上げ後、1980年代は衛星の数が少なかったが、1990年代に入ると衛星数が整ってきて実用に耐えるようになった<sup>[17]</sup>。1990年には他社がGPSを用いたカーナビを実用化し、住友電工もGPSを用いることとした。GPS受信機は市販のものがあるため、開発内容はGPS情報を用いたマップマッチングのソフト開発が中心であった。（その後、GPSは1993年に完成宣言がなされ、1995年から正式なサービスが開始された。）GPSは、トンネル内やビル陰では使用できないとの問題があり、また、当時、SA (Selective Availability) として米国国防省が意図的に精度を落としていて最大100mの誤差があったが、自立航法と併用することで実際上の問題は回避できた。

関係分野からの成果導入のもう一つは、旋回角測定に用いる振動ジャイロである。これは、回転体の慣性力（コリオリ力）は振動体にも働くとの原理を用いたもので、実用レベルの感度を得る技術が1988年に開発され、さらにその後、小型化と低コスト化が図られた<sup>[12]</sup>。これがカメラの手ぶれ防止用に普及し始め、住友電工はこれに着目した。精度は光ファイバージャイロよりも悪いが、GPSと併用すれば旋回角センサーの要求精度が低くなるため、光ファイバージャイロより小型で低コストの振動ジャイロを用いることとし<sup>[13]</sup>、地磁気センサーも不要となった。ただし、カーナビに用いる場合、カメラ用とは異なってゼロ点ドリフト（旋回が0の時でもセンサーから旋回しているような出力が出ることで、主な原因は温度なので温度によって補正する）を小さくする必要があった。そのため、その研究開発を含めて振動ジャイロのメーカーである村田製作所に依頼し、同社はこれを実現した<sup>[13]</sup>（図12）。

以上により、コストの低減と寸法の小型化が実現し、この第2世代カーナビは、1992年の三菱自動車のディアマンテに搭載された。この後、カーナビにGPSと振動ジャイロ

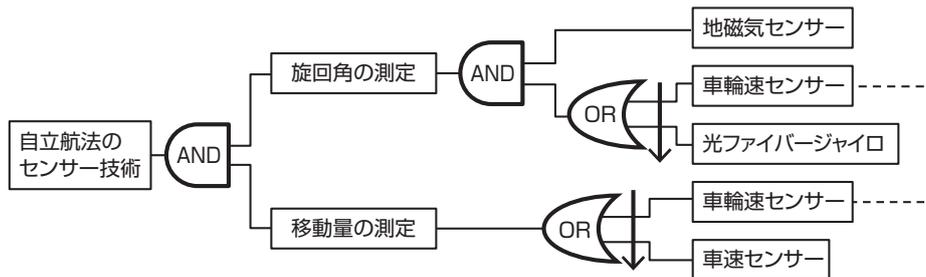


図11 1989年システムから1991年システムへのセンサー構成の変化

を組み合わせる用いることが、他のメーカーにも広がり、93年頃に業界標準（ドミナント・デザイン）となった。

#### 4.5 第3世代カーナビの開発と住友電工の撤退

1990年代にはカーナビが普及するとともに、カーナビ技術も進歩し、渋滞、事故、工事などの交通情報を加味した第3世代のカーナビが登場した。第3世代のためには、外部（インフラ側）から走行中の車にリアルタイム交通情報を提供する必要があるため、1990年からの検討を経て、1995年に道路交通情報通信システムセンター（VIC<sup>11</sup>センター）が設立された。これは、警察および道路管理者が有する交通情報を収集して、光ビーコン<sup>12</sup>や電波ビーコン<sup>13</sup>によってカーナビに情報を提供する組織で、道路に光ビーコンや電波ビーコンを発信する基地を設置するとインフラ側の整備を進め、1996年の東京圏、大阪圏から、順次、サービスが開始された。このサービス開始当初から、住友電工のカーナビも、受信機の装備とソフトの改良による第3世代へと進化し、VIC<sup>11</sup>情報を活用するようになった。VIC<sup>11</sup>情報は、現在位置検出にも利用でき、GPSや振動ジャイロと併用した（図13）。

しかし、GPS受信機、振動ジャイロおよびVIC<sup>11</sup>受信機は、それぞれの専門メーカーから購入可能なため、これはカーナビ・メーカーにとっての競争優位の源泉ではなくなった。この結果、1990年代半ばにはカーナビ・ビジネスの参入企業は20数社を数え、価格も低下して<sup>18)</sup>、住友電工も低価格競争にまきこまれるようになった。一方で、ソフトで処理すべき機能の増加によって、ソフトの規模が大幅に増大し、そのための開発要員も大幅に増大して開発コストの増大をもたらした。カーナビ開発の初期に、処理速度を速くするために独自のOSを用いたこともこの傾向を助長し、ハードの能力に依存して汎用のOSを用いていた企業

との競争は不利になった。その結果、収益面では赤字が継続し、同社は、1999年の意思決定を経て、2000年にカーナビ・ビジネスから撤退した。

### 5 短期的な技術アーキテクチャ分析と長期的な技術アーキテクチャの革新

前章では、カーナビの登場と世代交代の時期に、住友電工がどのように要素技術を選定して研究開発したかの事実関係を整理した。この事例は、機種ごとの4つの短期的研究開発プロジェクト（第1世代1989年システム、第1世代1991年システム、第2世代、第3世代）の事例としても、カーナビが進化していく一つの長期的な過程の事例としても捉えられる。このため、この二つの観点からの検討を行った。

#### 5.1 世代ごとの新製品の研究開発計画の検討手法

短期的な観点から、新製品の研究開発計画を立てる際のポイントとして、まず、計画の検討プロセスを検討した。今回の事例で、住友電工は、①製品の機能を実現するため、全体システムを構成するサブシステム（要素技術）のシステム構成を検討し、②それぞれのサブシステムを実現するための技術方式の候補を幅広く検討し、③候補技術を比較して採用する技術を適切に選び、④採用した要素技術を自社開発するか外部から入手するかを検討していた。これは、技術アーキテクチャ分析としては、①補完技術の検討、②代替技術の探索、③代替技術の選定、④要素技術の入手方法の検討の4つのプロセスが必要であることを意味する。研究開発計画を立案する際には、これら4つのプロセスによって技術アーキテクチャ図を作成するとともに、技術アーキテクチャ図を用いて4つの検討を深めることが重要である。さらに、今回の事例から、この4つのプロセ

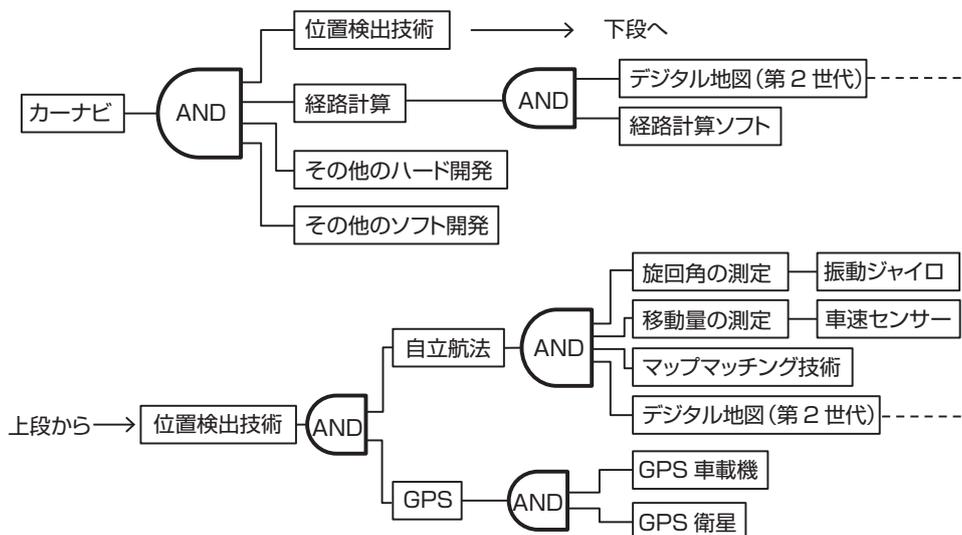


図12 1992年システム（第2世代）の技術アーキテクチャ

スの中での検討内容についての次の知見が得られた。

第一に、要素技術として補完技術と代替技術（または競合技術）の両方を検討することの重要性である。完成した一つの製品には不要な要素は存在しないために補完技術のみで構成され、その技術アーキテクチャ図（図 10、12、13）は AND ばかりである。しかし、それは利用する要素技術を選択した後の結果であり、研究開発計画を検討する際には、図 7 や図 9 のように、候補となる代替技術を明示し、採用する技術を適切に選択することが重要である。実際、初期のカーナビで、製品差別化も考慮して要素技術（車輪速センサーを用いたマップマッチング技術や光ファイバージャイロ）を選択したことが住友電工の競争優位の源泉となっていた。

第二に、候補としてリストアップする代替技術（技術方式）を幅広く情報収集することの重要性である。今回の事例で、旋回角測定用センサーの技術方式の情報源としては、車輪速センサーは独自のアイデア、光ファイバースセンサーは社内の独自技術、GPS は競合メーカーの動向、振動ジャイロは他分野（カメラ）の動向であった。一般には、Exploration（探索：幅広く候補技術を探す）と Exploitation（活用：既存技術を深める）のどちらを重視すべきかについての議論<sup>[19]</sup>があるが、住友電工は適切に Exploration を行っていた。また、企業のダイナミック・ケイパビリティの研究においても、情報のアンテナを高くしておく重要性が指摘されている<sup>[20]</sup>。

第三に、要素技術の選定基準に関して、当該技術の性能とコストのみではなく、製品に組み込まれた時の製品の

競争力（全体と要素の関係）で選ぶべきことである。今回の事例で、1991 年システムに高価な光ファイバージャイロを導入したのは、製品に対する市場ニーズに応えるためであった。一方で、要素技術の選定に併用する補完技術が影響することもある（要素間の関係）。1989 年システムでマップマッチング技術を活かすためにデジタル地図に詳細な道路情報（2 千 5 百分の 1 地図）を入力したり、第 2 世代で GPS を用いたために光ファイバージャイロに代わって振動ジャイロを採用して旋回角センサーの精度を下げたりと、補完技術の影響も見られた。

第四に、代替技術を補完的に用いる可能性である。地磁気センサーと車輪速センサーは旋回角測定用として競合するが、それぞれの異なる欠点を補うために 1989 年システムで補完的に用いており、第 2 世代の GPS と自立航法との関係も同様であった。

第五に、要素技術の入手方法の多様性である。今回の事例では、自社開発の他に、情報機器などのハードを他社から購入し、振動ジャイロを他社に開発依頼するとともに、結果的に実現しなかったが、マップマッチング技術のベンチャー企業からの技術導入や経路計算ソフトの大学からの技術移転も検討していた。

第六に、研究開発前の検討のみならず、要素技術を開発して全体システムを試作した後のテストと改良も重要で、研究開発計画ではこのプロセスも予定しておくべきことである。必要な補完技術は、全て研究開発計画に入れるべきだが、抜けが生じる可能性がある。また、要素技術全体を組み合わせた時に全体システムの設計性能が出ない恐れ

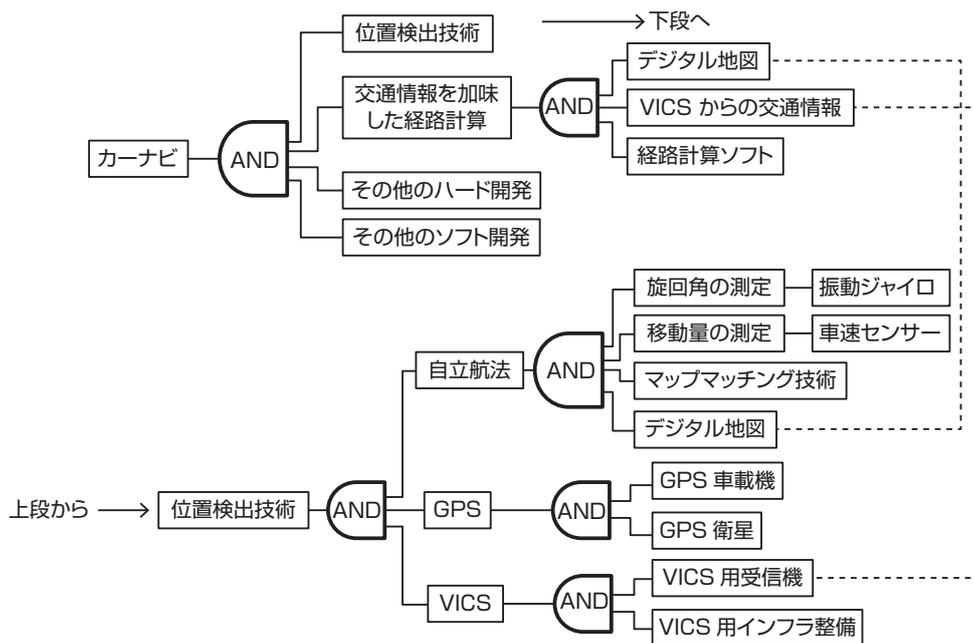


図13 第3世代カーナビの技術アーキテクチャ

もある。今回の事例では、試作したカーナビで実車走行実験を行って、課題を見つけて改良し、またテストするとの試行錯誤を繰り返すことで性能を上げていた。

これらのうち、第一、第二、第三の視点が特に重要と考えられるが、技術アーキテクチャ分析によって要素技術が一意に定まるわけではない。例えば、第一の視点において、製品機能を要素技術にブレークダウンする場合、一つの要素技術が抽出されるとは限らず、複眼的に検討するべきと考えられる。

## 5.2 長期的な技術アーキテクチャの革新

今回の事例を、カーナビ・ビジネスが誕生してドミナント・デザインが生まれるまでの長期的な過程として考えて、この間の技術アーキテクチャの革新を図14に示す。

図14の技術アーキテクチャの革新には二つのタイプがある。一つは、製品の機能を拡大し、それに必要な要素技術を付加するタイプである。カーナビが自車の現在位置を地図上に示すだけの第1世代から、行き先までの経路案内も行う第2世代になる際に、経路計算ソフトが必要になり、デジタル地図も一方通行、右折禁止などの交通規制情報が必要となった。さらに、経路案内に渋滞、工事などの交通情報を加味する第3世代にするために、カーナビと外部（インフラ側）との間でリアルタイムの情報を送受信する

VICSが必要となった。これは図14では「ADD ↓」の記号で示している。もう一つのタイプは、技術進歩に伴って、技術シーズや技術方式が置き換わる技術アーキテクチャの革新である。例えば、旋回角センサーは、車輪速センサーと地磁気センサーの併用、光ファイバージャイロと地磁気センサーの併用、振動ジャイロと変わった。これは、図14では「OR ↓」の記号で示している。

カーナビの技術アーキテクチャの革新の特徴は、技術進化の方向が製品の性能レベルと市場の要求水準との関係で変化していることである。具体的には、旋回角センサーの選定において、カーナビ初期には、地磁気センサーに加えて車輪速センサーを用いたり、高価な光ファイバージャイロを用いたりして、コストより性能を重視したが、GPSを使った第2世代では、性能が劣っても小型で安価な振動ジャイロを選択し、性能よりもコストを重視している。これは、ハードディスク・ドライブ産業において、当初8インチ・ドライブが主流だった市場が5.25インチ・ドライブや3インチ・ドライブへと下位の技術方式にシフトした「破壊的イノベーション」<sup>[21][22]</sup>に類似している。

また、研究開発の事前検討において、長期で考える場合（図7）と短期で考える場合（図9）とでは、検討内容に差があると考えられる。住友電工がカーナビの研究開発に

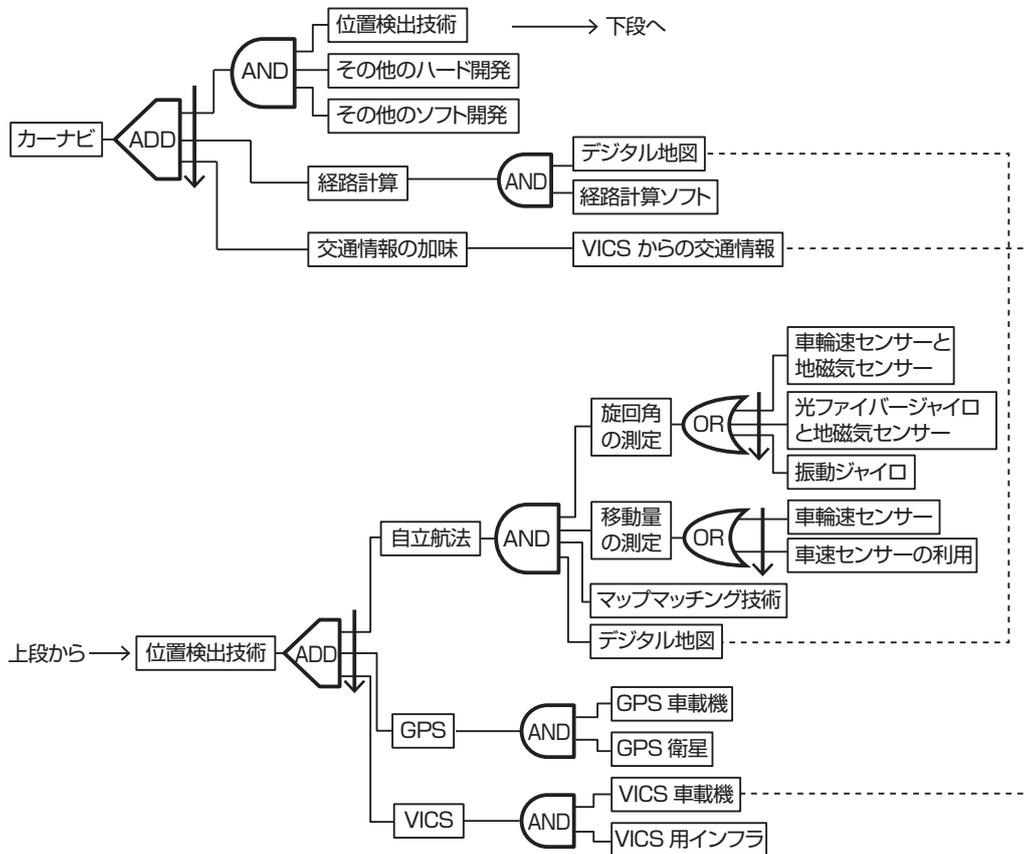


図14 カーナビの技術アーキテクチャの革新

着手した1983年当時、GPSの構想は出されていたが、そのインフラ（十分な数のGPS衛星）は整っておらず、その利用は非現実的だった。近接無線の技術方式も知られていたが、VICSのためのインフラ整備は具体化しておらず非現実的だった。このため、短期の研究開発プロジェクトの研究開発計画では、図9のように、現実的な自立航法とそのためのセンサーに絞って検討することが合理的だった。しかし、長期で考える場合、カーナビでは、ボトルネックとなっている技術や社会条件にブレークスルーが生じた時に、技術アーキテクチャが一気に革新された。図7は、このような候補を含めて広汎な代替技術を記載した技術アーキテクチャ図である。一つの仮説として、図7を基に、ボトルネックとなっている要素技術と、それが解消された時の技術アーキテクチャの革新の関係について、事前のシミュレーション（頭の体操）を行うことが有益だと考える。その際に、ブレークスルーの内容はブラックボックスのままでも差し支えない。これによって、長期的な技術変化の中でのリスクとチャンスに敏感になり、その後の変化に有利に対応できる可能性がある。

今回の事例では、図15に示すように、技術アーキテクチャの革新に伴って、企業の競争力の源泉に変化が見られた。具体的には、他社から購入するGPS受信機と振動ジャイロで現在位置が検出できるようになった後、住友電工のセンサー技術は競争優位の源泉ではなくなり、ソフトの開発力が企業競争の鍵となった。産業の誕生期の後、多くの企業が参入して競争が激化する成長期を経て、成熟期へと移行する時、そこでの成功者は当初のリーダー企業とは限らない<sup>[23]</sup>。もし、上記の仮説によって、新ビジネスに着手する前に、技術アーキテクチャの革新を見通すことができるならば、長期の技術マネジメントに有益と考えられるが、これは今後の研究課題である。

## 6 結論

今回、システム製品の要素技術に着目した技術アーキテクチャの図示と分析の手法を提案し、住友電工のカーナビのイノベーション事例に適用した。この図示の手法は技術アーキテクチャを客観的に示し、過去のイノベーションにおける要素技術の変化を表現することができることを示し

た。例えば、今回の事例において、位置検出には多くの要素技術が関係していて全体像の理解は難しいが、図7のように構造化して図示することで要素技術間の関係が明確になる。これによって研究開発プロジェクトの研究開発課題の事前検討が容易になると考えられ、これが技術アーキテクチャ分析の基本的な機能である。

また、今回の事例から、短期の研究開発プロジェクトの事前検討のポイントについての多くの教訓を得るとともに、製品の世代交代を含む長期の研究開発マネジメントに利用する方法についても一つの仮説を提示することができた。技術アーキテクチャは、研究者・技術者が自ら設計し、選択すべき問題なので、今後、この手法が研究開発計画の検討に利用されることが期待される。例えば、カーナビの発展形態としてのITS<sup>用語14</sup>や、介護などの生活の場や農林水産業で用いるロボットなどにおいて、製品にどのような機能をもたせ、そのためにどのような要素技術を研究開発すべきかを検討する上で、本手法は有益と考える。

さらに、研究者・技術者と経営者とが技術方式選択の戦略や将来の製品・技術の発展可能性（ロードマップなど）などの技術戦略を意見交換する上においても、技術アーキテクチャ図を描き、短期的には非現実的と思われる代替技術を含めて要素技術と製品とをつなぐ多様なルートを図示することが有益なツールになるとと思われる。

経営者との意見交換では、技術戦略のみならず、市場規模や収益性を踏まえた事業戦略の検討が重要だが、その検討にも技術アーキテクチャ分析が役立つ可能性がある。すなわち、収益性は、事業化段階でのユーザー企業、サプライヤー企業との価格交渉力や競合他社の新規参入といった業界構造に依存するが、技術方式選択の戦略や要素技術や部品の入手方法といった技術戦略が将来の業界構造を左右する可能性がある。このため、技術アーキテクチャ分析、技術戦略、将来の業界構造、事業戦略を関連させて、一体的に検討するフレームワークが考えられ、これは今後の研究課題である。この他、技術アーキテクチャは、要素技術発展の技術経路やコア技術戦略などにも関係していると考えられ、今後の研究課題である。このため、今後、多くの事例で技術アーキテクチャ分析の研究を積み重ね、知見を蓄積していくことが重要である。

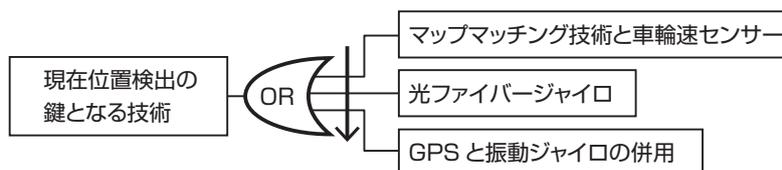


図15 現在位置検出の鍵となった要素技術の変化

## 用語の説明

- 用語 1：自立航法：ナビゲーションのための技術方式の一つで、移動体（車など）に搭載した機器のみで現在位置を検出する。そのため、通常、移動体（車など）の旋回角と移動量を測定して出発時の位置と方角に加えて現在位置を検出する推測航法（デッドレコニング）を用いる。
- 用語 2：他律航法：ナビゲーションのための技術方式の一つで、自立航法とは異なり、地上などの基地から発信する情報を移動体を受信して現在位置を検出する。
- 用語 3：近接無線：他律航法の一つで、移動体が基地局に近づいた時に基地局からの無線情報を受信して現在位置を検出する。
- 用語 4：ジャイロコンパス：高速で回転する物体が回転軸を一定に保とうとする性質を用いて方位を知る装置。
- 用語 5：レーザージャイロ：複数のミラーでリング上の光路を持つレーザー発振器を構成し、回転が加わった時にレーザーの伝播速度が変わる性質を用いて回転の角速度を測定する装置。
- 用語 6：マップマッチング技術：自立航法などで測定して作成した走行軌跡と道路の地図情報とを照合して、その差を測定誤差として補正する技術で、測定誤差が累積することを防ぐ。
- 用語 7：車速センサー：車のスピード表示のために、トランスミッションの歯車の回転速度を測定するセンサー。全ての車に取り付けられている。
- 用語 8：車輪速センサー：左右の車輪ごとに、その回転速度を測定するセンサー。高級車に取り付けられている。
- 用語 9：光ファイバージャイロ：光ファイバーを巻いて、両端からレーザーを入射し、回転が加わった時にレーザーの伝播速度が変わる性質を用いて回転の角速度を測定する装置。
- 用語 10：振動ジャイロ：回転体にかかるコリオリ力が振動体にもかかる原理を利用し、円柱などにピエゾ素子で振動を加え、回転した時のコリオリ力をピエゾ素子で測定する装置。
- 用語 11：VICS：Vehicle Information and Communication Systemの略で、渋滞、工事、交通規制などの交通情報をリアルタイムでカーナビに提供するシステムで、警察や道路管理者が有する交通情報を道路に設置された光ビーコンや電波ビーコンの施設を通じて送信する。
- 用語 12：光ビーコン：カーナビ用としては主に一般道路に設置されていて、近赤外光を用いてVICS情報をカーナビに送信する施設。
- 用語 13：電波ビーコン：カーナビ用としては主に高速道路に設置されていて、電波を用いてVICS情報をカーナビに送信する施設。
- 用語 14：ITS：高度道路交通システム（Intelligent Transport

Systems）の略で、人と自動車と道路との間で情報の受発信を行うことで、渋滞、環境対策、安全対策などさまざまな課題を解決するシステム。これまで、カーナビ、VICS、ETCなどが実用化されているが、車車間通信などを用いた安全運転支援、道路管理の適正化による物流の効率化などさらなる高度化が研究されている。

## 参考文献

- [1] 藤本隆宏, 武石彰, 青島矢一編: ビジネス・アーキテクチャ, 有斐閣 (2001).
- [2] W. J. Abernathy and J. M. Utterback: Patterns of industrial innovation, *Technology Review*, 80 (7), 40-47 (1978).
- [3] J. M. Utterback: *Mastering the Dynamics of Innovation*, Harvard Business School Press (1994) [大津正和, 小川進監訳: *イノベーション・ダイナミクス*, 有斐閣 (1998)].
- [4] R. N. Foster: *Innovation: The Attacker's Advantage*, Summit Books (1986) [大前研一訳: *イノベーション - 限界突破の経営戦略*, TBSブリタニカ (1987)].
- [5] R. M. Henderson and K. B. Clark: Architectural innovation: The reconfiguration of existing system and the failure of established firms, *Administrative Science Quarterly*, 35 (1), 9-30 (1990).
- [6] M. L. Tushman and P. Anderson: Technological discontinuities and organizational environments, *Administrative Science Quarterly*, 31 (3), 439-465 (1986).
- [7] K. T. Ulrich: The role of product architecture in the manufacturing firm, *Research Policy*, 24 (3), 419-440 (1995).
- [8] R. Sanchez: Strategic product creation: Managing new interactions of technology, markets, and organizations, *European Management Journal*, 14 (2), 121-138 (1996).
- [9] R. Sanchez, and J. T. Mahoney: Modularity, flexibility, and knowledge management in product and organization design, *Strategic Management Journal*, 17 (S2), 63-76 (1996).
- [10] 藤本隆宏: *能力構築競争*, 中公新書 (2003).
- [11] 松田醇: カーナビゲーションシステム, *テレビジョン学会誌*, 50 (6), 678-685 (1996).
- [12] 藤島啓: 振動ジャイロスコープセンサのひらいた新世界, *電学誌*, 115 (8), 507-510 (1995).
- [13] 池田博榮, 小林祥延, 平野和夫: いかにしてカーナビゲーションシステムは実用化されたか - 開発マネージメントと事業化について -, *Synthesiology*, 3 (4), 292-300 (2010).
- [14] 三藤邦彦: カーナビゲーションと地図情報, *計測と制御*, 30 (9), 775-780 (1991).
- [15] 今江理人: 全世界測位システム(GPS)とその応用, *電学論B*, 118 (3), 227-230 (1998).
- [16] 西口浩: GPSをめぐる最新動向, 諸外国の取組み方, GPS運用方針に関する米国動向, *計測と制御*, 36 (8), 535-540 (1997).
- [17] 平野和夫: カーナビゲーションにおける位置決め技術, *精密工学会誌*, 65 (10), 1389-1393 (1999).
- [18] 谷本雅顕: 自動車用ナビゲーションシステム, *電学誌*, 115 (7), 416-419 (1995).
- [19] J. G. March: Exploration and exploitation in organization learning, *Organization Science*, 2 (1), 71-87 (1991).
- [20] D. J. Teece: *Dynamic Capabilities and Strategic Management: Organizing for Innovation and Growth*, Oxford University Press (2009) [谷口和弘, 蜂巣旭, 川西章弘, ステラ・S・チェン訳: *ダイナミック・ケイパビリティ戦略 イノベーションを創発し, 成長を加速させる力*, ダイアモンド社 (2013)].
- [21] C. M. Christensen: *The Innovator's Dilemma*, Harvard

Business School Press (1997) [伊豆原弓訳: イノベーションのジレンマ, 翔泳社 (2001)].

[22] C. M. Christensen and M. E. Raynor: *The Innovator's Solution*, Harvard Business School Press (2003) [櫻井祐子訳: イノベーションへの解, 翔泳社 (2003)].

[23] D. J. Teece: Profiting from technological innovation: Implications for integration, collaboration, licensing and public policy, *Research Policy*, 15 (6), 285-305 (1986).

## 執筆者略歴

能見 利彦 (のうみ としひこ)

1981年京都大学大学院工学研究科修士課程修了、2005年東北大学博士(工学)取得。1981年通商産業省入省。産業技術政策をはじめ幅広く通商産業政策に従事。技術調査室長、神戸大学教授などを歴任し、現在、産学官連携推進研究官。経済産業研究所(RIETI)コンサルティングフェローを兼務。所属学会は、研究・技術計画学会、産学連携学会、組織学会、日本MOT学会。この論文では、技術アーキテクチャ分析を提案し、カーナビに適用するとともに、全体とりまとめを担当した。



池田 博策 (いけだ ひろさか)

1964年九州大学工学部応用化学科卒、2010年三重大学工学博士取得。1964年住友電気工業(株)入社、自動車用ワイヤーハーネス開発、カーエレクトロニクス、ナビを統括。1999年常務取締役、1995年(株)オートネットワーク技術研究所社長、2008年九州大学イノベーション人材養成センター特任教授、2014年より九州大学産学官連携本部アドバイザー。この論文では、カーナビ開発の事実関係とマネジメント上の考え方を担当。



## 査読者との議論

### 議論1 全体について

コメント(小林 直人:早稲田大学研究戦略センター)

この論文は、住友電工が研究開発および実用化を行ったカーナビゲーションシステムを対象に、主に要素技術の組み合わせ方を分析し、新製品開発の方法や戦略に関わる新たな知見を論述したものであるが、要素技術統合の方法論は、まさに構成学の基本をなすものであり、その意味でシンセシオロジーに相応しい論文といえましょう。

コメント(景山 晃:産業技術総合研究所イノベーション推進本部)

この論文は、カーナビゲーションシステムの研究開発の経緯と方法を事例として取り上げ、技術経営論の視点から改めて分析・整理して図示することで、技術アーキテクチャの組み立てを方法論として汎用化する試みの論文と理解します。査読者による指摘を受けて合理性と緻密性をブラッシュアップした論文に仕上がっており、産業界等において、新製品の研究開発計画の確度を高める波及効果を期待できるものと判断します。

### 議論2 論理構成の緻密化について

質問・コメント(景山 晃)

シンセシオロジーの論文では下記の(A)および/または(B)のような論述が求められます。

(A) 一つの機能を果たそうとするときに複数の候補技術がある場合、どのような着想、仮説、検討を経て用いる技術を絞り込んだのかの思考・検討プロセスを記述する。

(B) ある目的を達成するために異なる技術領域の複数の技術が必要な場合に、どのような思考、検討を経て要素技術群を組み合わせたのかを記述する。

今回の論文では、「AND」、「OR」、「ADD」という論理構成で、住友電工が研究開発と事業展開してきたカーナビゲーションシステムの研究開発を例に、システム製品の研究開発の際に求められる要素技術の組み合わせ方を技術アーキテクチャとして体系化することに挑戦していますが、一部に論理の飛躍がありますので、再度検討してください。

また、1980年代から1990年代にかけての約15年間のカーナビゲーションシステムの開発経緯を考慮すると、時間軸を考慮した論の構成が必要と思います。すなわち、時間の経過とともに新しい技術の芽が登場してきたり、他産業におけるイノベーションや技術改良によりコスト面等で利用可能性を期待できる変化などがあります。このような技術アーキテクチャの時間変化を示すのに、著者が導入した論理記号ADDは大変有効と思います。この論文において、ADDの効果をさらに明確に示すことはできませんか。

回答(能見 利彦)

「ADD」の記号に関して、ベースとなる技術とその後付加される技術とを区別するために、ADD記号に↓を付けるように修正しました。この「ADD ↓」の記号では、↓の上部に書いたベースとなる技術に加えて、下部に書いた技術が付加されることを意味し、時間の経過によって、技術が付加されることを表現します。また、時間の経過に伴う技術の変化には、「ADD ↓」の他に、新しい技術が古い技術に置き換わる場合もありますので、これを表すために新たに「OR ↓」の記号を追加しました。これは、↓の上部に書いた技術から下部に書いた技術への置き換わることを意味します。これら「ADD ↓」と「OR ↓」を用いて、第5章で新しく図14の技術アーキテクチャ図を作成し、カーナビが進化する過程で要素技術がどのように変化したかを図示しました。

またカーナビの技術アーキテクチャの15年間の変化について、図14で図示するとともに、現在位置検出技術が市場ニーズよりも劣っていた初期ではコストよりも性能を重視して技術アーキテクチャが変化しましたが、GPSの導入によって現在位置検出の能力が高まった後は、性能よりもコストを重視するようになったことなどの分析を新たに書き加えました。さらに、長期的な研究開発マネジメントとして、非現実的と思われる代替技術をも含めて候補となる技術方式を幅広く記載した技術アーキテクチャ図(図7)を作成して、ボトルネックとなっている要素技術にブレークスルーが生じた時に、技術アーキテクチャがどのように変化するかを事前検討することで、技術の変化に対応するとの仮説を提示しました。

### 議論3 技術アーキテクチャについて

質問・コメント(小林 直人)

第1章「はじめに」で「要素技術の組み合わせ方を「技術アーキテクチャ」として分析する」と書かれていますが、この語はこの論文で初めて使われる言葉でしょうか。そうであるならば、もう少し説明を詳しくした方がよく、すでに同じ意味で他の論文で使われているならば出典を明示するのがよいと思います。この論文の中心をなす極めて重要な概念だと思えます。

回答(能見 利彦)

「アーキテクチャ」はシステム・エンジニアリング等でよく使われ、近年は経営学でも「製品アーキテクチャ」や「ビジネス・アーキテクチャ」のように使われていますが「技術アーキテクチャ」は初めて用いる用語です。このため、「アーキテクチャ」および「技術アーキテクチャ」を第1章および第2章で詳しく説明しました。また、他の研究での幅広い利用例のうち、Henderson & Clarkの「アーキテクチャル・イノベーション」が類似しているため説明を詳しくするとともに、それとの違いも説明しました。

コメント（景山 晃）

技術アーキテクチャ形成の方法論仮説をもう少し具体的に説明することは可能ですか。例えば、

- (1) まず、仮説を含めて技術アーキテクチャの図を作ってみる。
- (2) そこから AND 技術、OR 技術、さらに中長期的には ADD 技術を明確にする。
- (3) 加えて、技術経営方法として、自社開発、他社からの導入・購入、他社との共同開発の選択。

これらを方法論の一つとして実施すると、必要な技術の見える化、開発プロジェクト内での情報と価値観の共有、各種判断の妥当性のチェック等が可能となるように思います。

回答（能見 利彦）

長期的な技術アーキテクチャの革新を検討する上では、この論文でも書いたように、何らかのボトルネックがあって非現実的な代替技術も図示して、検討対象に加えておくことは大切だと思います。イノベーションの世界では、予想外の新技术が開発されたり、社会条件が変わったりすることがあるので、それによって選択すべき技術方式が変わることもあります。

また、要素技術と製品をつなぐルートは多様ですので、要素技術の進歩に伴って、そのルートが変化することは良くあることです。こうした多様なルートを俯瞰的に見る上で、技術アーキテクチャ図が地図のような役割を果たすことを期待しています。これは、製品の第1世代、第2世代と性能・機能をステップアップさせていく技術経路または技術ロードマップを検討する上で有益だと思います。

さらに、将来、新しい技術が開発された時の影響、すなわち自社ビジネスにとってのリスクとチャンスを検討する上でも、広範に代替技術を記述した技術アーキテクチャ図は有益だと思います。こうした図を用いて、経営者と研究者・技術者と意見交換し、事業戦略と研究開発戦略とを一体的に検討することは大切だと考えています。

#### 議論4 今後の展開の可能性について

コメント（景山 晃）

第5章の最後のところで、研究開発計画の事前検討等に有益であろうと述べていますが、一歩踏み込んだ「仮説としての例」を示すことはできませんか。この論文の中ではカーナビゲーションシステムほどに十分な検証は難しいとしても、適用できそうな事例として二、三挙げていただければ、読者は一層深く理解でき、技術アーキテクチャ図を作成してみようという動機付けになると思います。

回答（能見 利彦）

今回分析したカーナビは、今後、ITSとしてさらなる発展を遂げようとしています。ITSの研究開発においても、全体システムにどのような機能を持たせるのか、そのためにはどのような要素技術が必要になるかを事前分析する上で、技術アーキテクチャ分析は役立つのではないかと考えます。また、ロボットについて、今後、介護など生活の場や農林水産業の場で利用しようとの機運が高まっていますが、その研究開発においても、ロボットにどのような機能を持たせるのか、その機能をブレイクダウンした技術課題は何か、それを実現する要素技術にはどのような技術シーズが必要かを検討する必要があります。技術アーキテクチャ分析が使えるのではないかと考えます。このため、これらの例示を第6章の結論に書き加えました。

#### 議論5 カーナビの世代論について

コメント（小林 直人）

説明の中に、カーナビの第1世代は「自己位置確認」、第2世代は「目的地までの経路表示」、第3世代は「付加情報を踏まえた経路表示」

となっています。これは初めからそのような世代があることが意識的に計画されていたのか、それとも技術の発展とニーズの変化によって開発目標が変化し、結果的に世代特性が出てきたのか、をご教示ください。

回答（池田 博榮）

住友電工のカーナビ開発においては、当初から「第3世代カーナビ」までを意識し、目標にした開発を進めました。参考文献 [13]「いかにしてカーナビゲーションシステムは開発されたか」に記載しているように、1973年からの大型プロジェクト「自動車総合管制システム」で「交通情報で車を空いている道路に誘導することの有効性は実証された」ことより、これを実用化することを目標にしておりました。

このために必要なカーナビ開発、要素技術開発、社会システム開発を並行して進め、製品化が可能な順に、時間軸上にステップ1、2、3と分けて、実用化していきました。実際、当時の警察庁、建設省、郵政省等に働きかけて、「財団法人日本デジタル地図協会」や「VICSセンター」が設立され、道路交通情報が流されるようになりました。こうしたカーナビのインフラ開発に汗をかいた企業でありながら、そのメリットを事業にフィードバックできなかったことも、カーナビ事業から撤退した一つの要因になったといえます。

#### 議論6 今後のカーナビの世界展開について

コメント（小林 直人）

日本はカーナビに関して2004年度にはほぼ100%の世界シェアを持っていたものの2007年度には20%程度までに急落しています。その理由の一つは、圧倒的な低価格の簡易ポータブルナビ（PND）が普及し、高性能で高価な車据付型を生産する日本メーカーのシェアが激減したためとされています。ここでは、性能とコスト（価格）の選択肢の中で後者が選択されたことになりました。一方で、今後自動運転等が視野に入ってくると多数のセンサー機能とアクション機能が求められ、カーナビはますます高度化することも考えられます。今後の日本メーカーのカーナビに関する世界展開戦略が分かりましたらお示しください。

回答（能見 利彦）

カーナビは、近年、据え置き型ナビで高機能化する方向とポータブルナビ（PND）で低コスト化する方向とに二極化しているようです。地図の上に自社の位置を示すタイプのカーナビは、従来は日本市場以外にはほとんどなかったようですが、2004年にオランダ企業が低価格のポータブルナビ（PND）を製品化して、欧米市場で爆発的に売れ、次いで中国市場でも急拡大しました。そのために、2004年から2008年頃に、販売台数ベースで日本企業の世界シェアは急低下しましたが、日本企業の販売が減少したわけではありません。日本市場でも、多数の日本企業がPNDに参入しています。一方、従来からの据え置き型ナビに関しては、カーオーディオと一体化することはもとより、音声認識技術、車載カメラ、ヘッドアップディスプレイ技術を取り入れて、高機能化が進んでいます。なお、スマートフォンにナビゲーション機能が付くようになったため、PNDの2011年の世界での販売台数は減少したようです。最近では、スマートフォンと接続して、そのナビ情報をディスプレイに映すだけの低価格品にするか、据え置き型で高価格のカーナビにするかの選択が問題になっています。

また、車メーカーは、カーナビをネットにつないでビッグデータを利用することや、カーナビの経路案内技術を用いて車の自動運転を目指す戦略を検討していますし、グーグルが、現在のグーグルマップをベースに自動運転技術に参入して世界のデファクトを取ろうとしているとの話もあります。カーナビが高機能化する中で、様々な業界、様々なメーカーが独自の戦略を考えており、今後の動きは流動的です。

# 過酸化水素を用いるクリーンで実用的な酸化技術

## — 新規触媒の開発とファインケミカルズへの展開 —

今 喜裕、田中 真司、佐藤 一彦\*

酸化反応は全化学プロセスの3割以上を占めると言われる最重要な反応だが、同時に環境負荷の大きなプロセスとしても知られている。我々は反応後に水しか排出しない過酸化水素に注目し、過酸化水素を用いるクリーンな酸化反応の開発に取り組んだ。その結果、ハロゲンフリー、有機溶媒不要、金属触媒設計等の技術要素を統合した過酸化水素酸化技術の開発に成功し、グリーン・サステイナブルケミストリーの具体例として世界で最初に示した。次に、開発した過酸化水素酸化基盤技術の実用化に挑戦した。企業との緊密な共同研究により、コスト削減やスケールアップ等の適切なマイルストーンを設置して触媒開発を進め、超長寿命絶縁膜など高機能な化学品の製造につなげた。

キーワード: 環境共生化学、酸化反応、過酸化水素、触媒調製、機能性化学品

## Clean and practical oxidation using hydrogen peroxide

### – Development of catalysis and application to fine chemicals –

Yoshihiro KON, Shinji TANAKA and Kazuhiko SATO\*

Oxidation is an important component in over 30 % of chemical processes. However, oxidation typically creates environmentally damaging waste products. Hydrogen peroxide ( $H_2O_2$ ) is a good candidate for environmentally benign oxidation because the only by-product is water. By integrating key technologies for halogen-free, organic solvent-free processes, and designing suitable metal catalysts, we succeeded in the development of  $H_2O_2$  oxidation. This achievement is the first concrete example of Green Sustainable Chemistry (GSC). Based on this new technology, we further attempted to establish  $H_2O_2$  oxidation as a practical method for the formation of fine chemicals of high performance. Novel catalysts optimized for practical usage were developed by resolving key issues such as cost reduction and scalability through joint research between AIST and various chemical companies.

Keywords: Green sustainable chemistry, oxidation, hydrogen peroxide, catalysis, fine chemicals

#### 1 はじめに

自動車、家電、OA 機器から住宅、衣類、医薬品に至るまでさまざまな身の回りの製品には化学製品が必ず含まれており、化学製品無しには我々の生活は成り立たない。化学産業は日本の重要な基幹産業であり、日本は世界トップクラスの化学製品生産国である<sup>[1]</sup>。酸化反応は全化学プロセスの3割以上を占めると言われる最重要な反応だが、反応後に酸化剤由来の廃棄物を大量に排出するため、環境を著しく汚染させるプロセスとしても知られている<sup>[2]</sup>。表1に主な酸化剤、反応後の廃棄物、活性酸素の割合とクリーンな酸化剤としての適否についてまとめる。硝酸 ( $HNO_3$ ) は化学繊維の原料で知られるアジピン酸の製造に使用される酸化剤で、反応後に水 ( $H_2O$ ) と亜酸化窒素 ( $N_2O$ ) を排出する。亜酸化窒素は温室効果ガスとして知られており、

世界中でアジピン酸が220万トン/年製造されると、亜酸化窒素は40万トン/年排出される計算になる。塩素系酸化剤 ( $NaClO$ ) や過酢酸 ( $CH_3COOOH$ ) は、電子材料や医薬品の製造に用いられ、反応後に塩素を含む化合物 ( $NaCl$ ) や酢酸 ( $CH_3COOH$ ) が目的物と同量以上排出される<sup>[3]</sup>。これら廃棄物は環境を著しく汚染するため、そのまま大気中や河川、地中に排出するわけにはいかず、各メーカーでは排出された酸化剤由来の廃棄物を回収、リサイクルして再利用するプロセスを設計している。しかし、廃棄物を漏らさない設備、処理にかかるエネルギー、作業時の暴露量低減や安全確保への労力を含めると、環境への負荷は極めて大きい。根本的解決のためには、最初から環境負荷の低い酸化剤を使用する必要がある。環境負荷の低い酸化剤として、酸素 ( $O_2$ ) は理想的だが、 $O_2$  の酸素

産業技術総合研究所 触媒化学融合研究センター 〒305-8565 つくば市東 1-1-1 中央第5  
Interdisciplinary Research Center for Catalytic Chemistry, AIST Tsukuba Central 5, 1-1-1 Higashi, Tsukuba 305-8565, Japan \* E-mail: k.sato@aist.go.jp

Original manuscript received May 19, 2014, Revisions received September 22, 2014, Accepted September 29, 2014

表1 各種製造法の比較

酸化剤または製造法	廃棄物	活性酸素の割合 (%)	クリーンな酸化剤としての適否と備考
酸素 (O <sub>2</sub> )	なし	100	◎(制御困難・触媒必要)
酸素 (O <sub>2</sub> )	水 (H <sub>2</sub> O)	50	○(制御困難・触媒必要)
過酸化水素 (H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> )	水 (H <sub>2</sub> O)	47	○(触媒必要)
硝酸 (2HNO <sub>3</sub> )	水+亜酸化窒素(N <sub>2</sub> O)	51	△(温室効果ガス排出)
塩素系酸化剤(NaClO)	塩化ナトリウム (NaCl) など	22	×(塩素系化合物排出)
過酢酸 (CH <sub>3</sub> COOOH)	酢酸 (CH <sub>3</sub> COOH)	18	×(酢酸排出)

◎: 最適、○: 適、△: 処理が必要、×: 不適

原子 2 個を共に酸化反応に使用することは机上で記載されることがあっても現実には学術の面からも未知の反応であり、酸素原子 2 個のうち、1 個を酸化反応に使用し、もう 1 個の酸素原子を水として排出する反応系を設計したとしても、狙った反応だけを進行させることや反応制御が難しく、目的とする化学品を通り越して二酸化炭素 (CO<sub>2</sub>) まで酸化されやすい欠点を持つ。

我々は、クリーンな酸化剤として過酸化水素 (H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>) に着目した。過酸化水素は無色透明な液体で、1818 年にフランスの化学者 Thénard によって発見され、現在では工業品として 60 % 以下の濃度の水溶液が流通している。過酸化水素の国内出荷量は、ここ数年では 18 万～20 万トン/年の間を安定的に推移しており<sup>[4]</sup>、身近に幅広く使用されている。例えば、家庭では液体の衣料用漂白剤や消毒薬(オキシドール)としてなじみがある。工業用途では、紙・パルプの漂白、排水処理、土壌改良や半導体の洗浄等に使用される。その構造は、水素 (H) と酸素 (O) それぞれ 2 個ずつが組み合わせられ、H-O-O-H の形をとっており、活性酸素の割合が酸素と同等 (47 %)、廃棄物は水のみである。これまでに、ヒドラジン製造、カテコール製造、オキシム製造やプロピレンオキシド製造等が工業化されており、今後ますます過酸化水素を用いた化学品合成が増えていくと予想される (図 1)。しかし、過酸化水素はそれ自身の酸

化力が低く、さまざまな化学反応に適用するには最適触媒による活性化を必要とする。過酸化水素がクリーンな酸化剤として一般的に広く使われるようになるためには、基礎化学品のみならず、精密化学品や電子材料・医薬品製造にも適用できる新規触媒を基盤技術として開発しなければならない。

## 2 環境低負荷な過酸化水素酸化技術開発の背景

ここでは、環境共生化学 (グリーン・サステナブルケミストリー) を背景とした我々の過酸化水素酸化技術開発開始の経緯について記す。産業と環境の社会動向について図 2 の左側に、過酸化水素酸化の技術動向を図 2 の右側に示す。図 2 の左側に示すように、環境汚染は 19 世紀の後半から確認されており、1950 年～1980 年代にかけて、さまざまな化学品製造プロセスの発展に伴い、空気・水・土など地球環境の汚染問題が深刻化し、産業界で廃棄物を削減・処理して出すことが義務付けられるようになってきた。1990 年代に入ると、国際的に地球環境を保全する動きが活発化し、1991 年に Anastas がグリーンケミストリーを 12 箇条と共に明確化<sup>[5]</sup>、1997 年には各国の二酸化炭素の削減目標を明記した京都議定書が採択された。環境にやさしい化学品の製造方法について国際的に活発な議論が進められ、一つの解答として環境低負荷な化学プロセスの

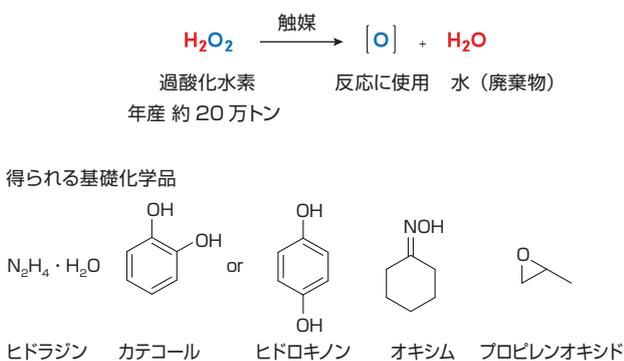


図 1 基礎化学品製造における過酸化水素酸化技術

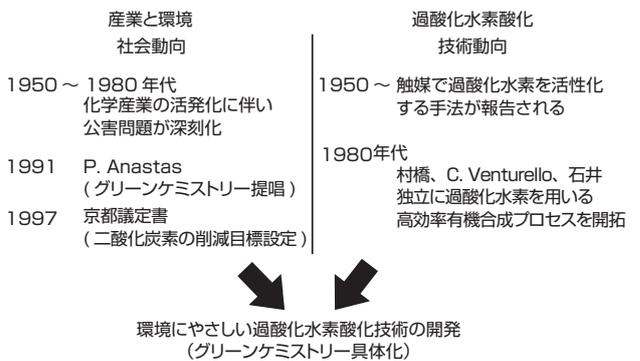


図 2 環境にやさしい過酸化水素酸化技術開発の経緯

構築という方向性が提示されている。一方で、具体的にどのような技術を開発すれば環境低負荷な化学プロセスになりうるのか、についての指針はこの時点で見いだされていない。次に図2の右側を見てみると、環境保全が活発化した時期とおよそ同時期に、過酸化水素の酸化技術が学術的にも開発されていることがわかる。触媒によって過酸化水素を活性化させる報告は1950年頃から見られ、1980年代になると、狙った化合物をより能動的に合成する選択性の高い触媒技術や汎用性の高い触媒技術が次々と報告されている。例えば1983年にVenturelloらがタングステン酸を含む触媒を用いた過酸化水素酸化反応を、1988年には石井らがタングストリン酸と4級アンモニウム塩という二成分からなる過酸化水素酸化反応を報告している<sup>[6]–[8]</sup>。しかし、これら触媒反応は過酸化水素の使用によりクリーンな反応を示唆しているものの、プロセスとして積極的に環境低負荷な実践的方法を提示したのではなく、触媒活性を高めるためにハロゲン系化合物や有機溶媒を使用していた。単に過酸化水素を使用するだけでは持続可能な化学反応としては不十分で、原料–製造–精製–洗浄まで含めたプロセスすべてにおいてクリーンでなければならない。我々はこのような考えのもと、過酸化水素酸化技術を環境低負荷に行うことを目標に設定し、具体的にハロゲンフリーかつ有機溶媒不使用な条件下で高収率かつ高選択的に目的物を合成できる触媒を製造できれば、実効性の高い環境低負荷なプロセスになりうると思え、触媒開発を含む酸化プロセス基盤技術開発を開始した。

### 3 環境低負荷な過酸化水素酸化技術を可能にする新規触媒の開発

還元反応で世界的に知られる野依良治教授（現理化学研究所理事長）のもとで、我々はあえて酸化反応の開発に取り組み、5年間の論文や学会報告をできない試行錯誤の時期を経て、新規触媒を開発した。具体的な研究の流れは、作業仮説を設定→実験による仮説の確認→考察による問題点の抽出→再度作業仮説の設定、を繰り返し、目的物を高収率に得ることができる触媒が見つかるまで繰り返した。数百回にわたる実験をとおして試行錯誤と考察を繰り返すことで、過酸化水素による酸化反応のキーポイントが明確になり、要素技術として①ハロゲンフリー技術、②有機溶媒不使用技術、③金属触媒設計技術、を抽出した。各要素技術の組み合わせにより起こりうる反応性の低下を避けるための触媒設計を再度行うことで反応の真の活性種を見いだすことができ、持続可能な過酸化水素酸化技術の開発に成功した<sup>[9]</sup>。以下触媒開発について、各要素技術の統合という観点から、これまでの技術開発を再度

考察し、高効率な新規触媒開発の指針の一つとして提案する。

#### 3.1 従来の知見を基にしたタングステン触媒の設計

過酸化水素酸化技術については、第2節に示したように1950年代から触媒による過酸化水素の活性化について基礎研究が活発に行われた。これまでの知見から、鉄、コバルト、マンガン等の金属とは異なり、タングステンは過酸化水素を分解させないため、タングステンを触媒に用いると過酸化水素の利用効率が高いことがわかっている。また、活性種の構造については、Venturelloらの先行研究により、タングステンと酸素2個からなる三角形を基本単位として（図3、触媒A）、その二核や四核の錯体が提案されている<sup>[10]</sup>。さらに、過酸化水素酸化反応は、有機相（原料）と水相（過酸化水素水）の二相系反応のため、単純な攪拌では混じらず、反応を効率よく進めるためには相間移動触媒の一種である4級アンモニウム塩の使用が有効であることが知られている。我々は以上の先行研究による知見をいかに、タングステン金属による触媒と相間移動触媒の組み合わせをベースにした触媒開発を行うことにした。

#### 3.2 従来法におけるタングステン触媒の反応機構とハロゲン溶媒の効果

従来法における問題点は、ハロゲン溶媒など有機溶媒の使用、ハロゲン化4級アンモニウム塩の使用、の2点があげられる。しかし当時、過酸化水素酸化技術においては、ハロゲン溶媒が反応の効率と選択性を高めるために必要であることが、常識として知られていた<sup>[11]</sup>。その理由を反応機構の紹介とともに説明する。4級アンモニウム塩は陽イオン種（カチオン種）と陰イオン種（アニオン種）の塩になることで中性状態になり安定している。タングステン触媒も、過酸化水素と直接結びついて活性アニオン種を形成したのち、ナトリウムカチオンとの塩を作る（図3、触媒

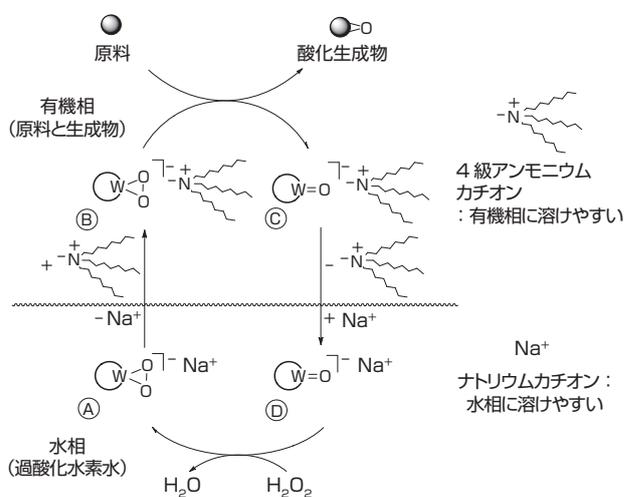


図3 タングステン触媒による過酸化水素酸化技術の反応機構

A)。その後、ナトリウムカチオンから4級アンモニウムカチオンへのカチオン種の交換により、有機相に溶けやすい4級アンモニウム塩の力を借りて活性アニオン種を有機相へと移動させる（触媒 B）。有機相で反応後、酸素原子が一個とれたタングステンアニオン種と4級アンモニウムカチオンとの塩（触媒 C）は、今度は4級アンモニウムカチオンからナトリウムカチオンへの交換により、水に溶けやすいナトリウムカチオンと共に水相に戻り（触媒 D）、その後、過酸化水素と接触して活性アニオン種が再生される（触媒 A）。このように触媒 A → B → C → D のサイクルが繰り返されて反応が進む。その中でも、反応を効率よく進めるためには、水から有機相への移動（触媒 A から B への移動）がスムーズに起こることが最も重要とされている。ハロゲン溶媒は、4級アンモニウム塩との親和性が有機溶媒の中でも特に高いため、水から有機相への移動に最適な溶媒と言われている。また、ハロゲン溶媒は水と混じりにくいため、反応相（有機相）と触媒活性化相（水相）が相互混入せず、触媒 B から触媒 C、および触媒 D から触媒 A のそれぞれの経路を高効率に進めると言われている<sup>[12]</sup>。しかし、この研究では環境低負荷なプロセス開発を最上位の目標とするため、ハロゲン溶媒を含む有機溶媒全般を使用することができない。ハロゲン溶媒を含む有機溶媒を一切使用しない不利を大幅に凌駕する高効率な新規触媒を開発する必要があった。

### 3.3 ハロゲンフリーかつ有機溶媒不使用なタングステン触媒技術の開発

従来のタングステン触媒を用いて、単純に有機溶媒だけを除くと、2-オクタノールから2-オクタノンへの酸化反応で、収率は90%から11%に低下し、反応はほとんど進行しなくなった。単に有機溶媒を除くだけにも関わらず、従来、有機溶媒の最適な選択を主要技術としてきた有機合成において、有機溶媒を使用できないことは従来の知見が全く通用しない反応系であり、新しいコンセプトの開拓が必要だった。この解決策として我々は、反応は原料と活性種が接触しなければ起こらないという大前提をベースに、接触到最も強く影響する相間移動触媒の改良を検討した。相間移動触媒に用いる4級アンモニウム塩は4級アンモニウムカチオンと塩化物イオン（アニオン種）によるイオン対で構成

されており、反応機構に示す通り（図3）、4級アンモニウムカチオンはタングステン活性種と対になって反応に積極的に関与しているが、塩化物イオンは反応機構に直接関与していない。そこで最初に、4級アンモニウムカチオンの改良を検討したが、アルキル鎖を2倍、3倍に伸ばして有機溶媒への親和性を高める試みでは反応性の向上がほとんど確認できなかった。次に、塩化物イオンに着目した。反応機構に出てこないため、塩化物イオンの変更は反応性向上にほとんど寄与しないと考えられてきたが、この技術開発では環境負荷低減のために、塩化物イオンに代わるハロゲンフリーなアニオン種の探索を積極的に行うことにした。

アニオン種の効果について実験と考察を進めるうちに、活性種の構造にむしろアニオン種が積極的に影響を与える可能性があることがわかってきた。すなわち、タングステンの活性種は水相の酸性の強さ（pH）によって3種類の構造をとり、そのうち、最も反応活性が高いのはA2型で、この構造はpH 0.4-3.0の時に存在することを見いだした（図4）。反応中のpHを0.4から3の間に保ち続けることができれば、反応は極めて効率よく進むという仮定を基に、実際に、2-オクタノールの酸化反応でアニオン種の効果を検証したところ、塩化物イオンの場合は収率が11%だったのに対し、硫酸水素イオンを用いると収率97%と、アニオン種の変更が明確に反応性を大きく向上させるという結果がえられた。反応中のpHを、塩化物イオンと硫酸水素イオンのそれぞれについて測定すると、塩化物イオンではpHが反応開始後すぐに4以上と変化してしまったのに対し、硫酸水素イオンの場合はpHが2から3と理想的な状態を保ち続けることが確認できた。

有機溶媒の不使用とハロゲンフリー技術を確立するために開始した4級アンモニウム塩のアニオン種の検討が、結果的にタングステン触媒の真の活性種を詳細に解明することにつながった。触媒設計を行う際には、初期に設定した目標や条件を変更することなく、そのうえで、実験結果がうまくいかなかった場合にも各実験結果を正確に評価し、その奥に隠れている本質的な原理を探索し、基礎原理と結びつけて反応を一段深く理解することにより解決策を見いだすことができる。本件も有機溶媒不使用・ハロゲンフリーという要素技術を設定し途中で変更することなく、触媒探

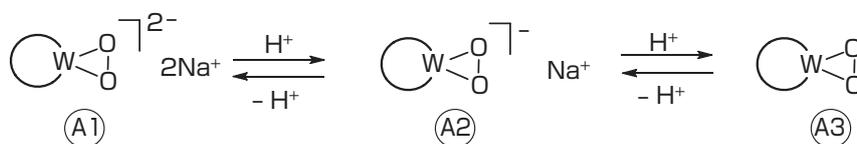


図4 タングステン触媒活性種 A の pH による 3 形態

索を継続することで、pH によるタングステン活性種の構造の変化に気づき、タングステン活性種について一段深い理解に到達したことにより、従来に無い高活性な触媒を開発するに至った。

### 3.4 開発した触媒をエポキシ化反応に適用するための作業仮説の見直し

開発した触媒の活性は極めて高く、各種アルコールの酸化反応やシクロヘキセンからアジピン酸への高効率合成を可能にした<sup>[13][15]</sup>。また、触媒活性の指標となる触媒の回転数（一個の触媒で何個の原料を酸化させたか）を調べたところ、回転数は7万回を超え、従来のハロゲン溶媒を用いる方法よりも2ケタ高い触媒活性を示した。しかし、この触媒を用いてエポキシ化反応を行ったところ、アルコールの場合とは異なり、1-オクテンの反応において、収率5%と極めて低い反応性しか示さなかった。そこで、開発した触媒をエポキシ化反応に適用するようにさらに改良した。すでに、図3に示した活性種AからBへの経路は最適化されているため、反応が進行しにくい原因は他の段階にあると考えた。種々実験を行って調査した結果、活性種Bの酸素が原料のオレフィン部分から攻撃されにくいことがわかってきた。そこで、我々は、活性種Bの酸素が原料と接触しやすくなるように、タングステンの二核錯体構造に、さらにリンと窒素を組み合わせた触媒を再度設計した（図5）。すなわち、アミノメチルホスホン酸を触媒成分の一つに反応点活性化触媒として加えることで、N-HとO-Wの間に水素結合を構築でき、反対側のW-O上の酸素が電子不足になって、オレフィンから攻撃を受けやすくなることを考えた。実際に1-オクテンの酸化反応において、アミノメチルホスホン酸を加えて反応を行ったところ、触媒を一成分追加しただけにも関わらず反応性が劇的に向上し、収率94%でエポキシ化合物が得られた。

### 3.5 触媒開発のポイント

我々は、タングステン触媒をベースに、硫酸水素の4級アンモニウム塩とアミノメチルホスホン酸を組み合わせる工

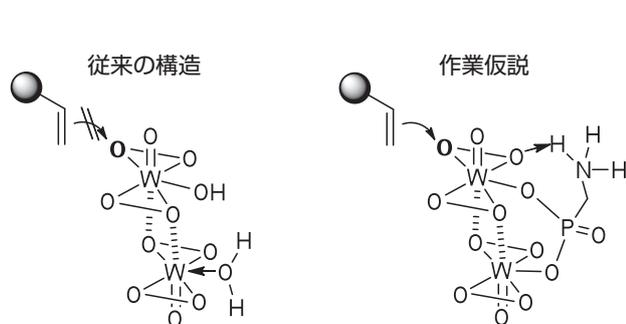


図5 エポキシ化用タングステン触媒活性種の作業仮説

夫により、ハロゲンフリーかつ有機溶媒不使用な環境低負荷酸化技術を開発することに成功した。ハロゲン溶媒は必須、4級アンモニウム塩のアニオン種は反応に関与しない、などの常識に囚われず、真に反応の核が何かを探索し、それを攻略する触媒の設計を最小限の変更によって行い、不確定要素を極力排除しながら触媒の改良を重ねてゆく戦略により、高効率触媒を開発できたと考えている。開発した技術は、これまで理論として提唱されるのみであったグリーン・サステイナブルケミストリーの分野に、どのような有機合成が環境負荷低減のために有効かを具体的に提示した世界で初の論文であり、グリーン・サステイナブルケミストリーに新たな研究の潮流を生んだ。

## 4 基盤技術を用いるアジピン酸合成法の実用化検討

化学品は種々あるが、その中で化学繊維、室内装飾品、自動車部品等に必要不可欠な6,6-ナイロンの原料として知られるアジピン酸に着目した。現在稼働している工業的製造法のほとんどは、ベンゼンから誘導されるシクロヘキサノールやシクロヘキサノンの硝酸酸化によるものである（図6）。硝酸酸化では亜酸化窒素が共生物として排出されるため、過酸化水素に置き換えるメリットは大きいと考えた。我々は30%過酸化水素水を酸化剤とし、3.4項にて開発したタングステン触媒系を用いることにより<sup>[13][14]</sup>、工業化を見据えた企業との共同研究を開始した。工業化へ向けて、有機溶媒を使用せず、また触媒を再使用可能な点は大きなメリットとなった。しかし、コストが問題となった。原料や触媒の使用については、原料は同等、触媒は使用量が少ないため、コスト面に大きな影響を与えなかった。一方で既存の製造法は使用する酸化剤が硝酸のため、過酸化水素よりも安い。酸化剤のコストが原因で、従来法よりも高コストプロセスになることが明らかになったことに加え、新規にプラントを建設する費用が上乗せされるため、工業化を断念した。

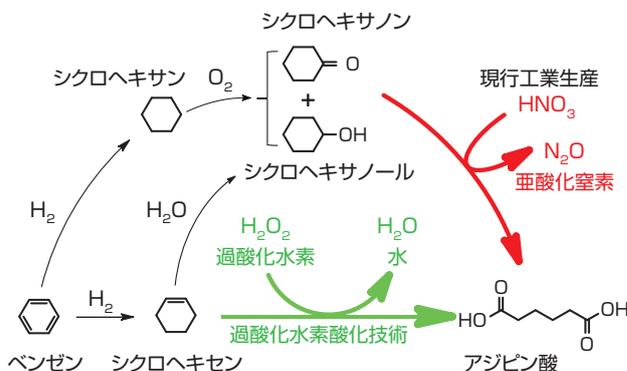


図6 過酸化水素酸化技術によるアジピン酸の製造と従来法の比較

## 5 実用化研究で考慮すべき要素技術と統合システムの設定

アジピン酸での失敗は、実用化する過程では触媒技術のみならずコストやスケールアップ等の、さまざまな要素を考慮する必要があることを示している。この反省を踏まえ、実用化研究で考慮すべきマイルストーンあるいは要素技術を設定した(図7)。これら要素技術を各個に解決することは当然ながら、要素技術間の統合を行いながら一つずつ順にクリアしていくことで実用化研究が進む。

我々の研究の根幹は過酸化水素を酸化剤に利用しうる新規触媒の創出にあるが、触媒を創出しただけでは実用化につながらず、ターゲット化合物の選定、スケールアップ、コストの見積もりに関する検討・研究が不可欠である。これら検討・研究を推進するためには企業との共同研究が不可欠であり、相互の緊密な連携によって実用化への道が開ける。以下、各要素技術の重要性について、アジピン酸の例を交えながら考察し、実用化研究を進めるための指針として示す。

## 5.1 ターゲット化合物の選定

製造する製品は、単に製法の代替ではなく、従来品を凌駕する強み、性能を持っていなければ市場競争力が無い。すでに製造方法が成熟し稼働実績が長い製品製造プロセスを代替することは、新規開発技術が従来技術をはるかに凌駕する進歩とメリットが無ければ難しい。例えば、アジピン酸はすでに硝酸酸化法で安定的に数十年以上生産されており、排出される亜酸化窒素は完全回収して再度硝酸に変換し、無駄なく使用するシステムが組み上がっている。従来法が成熟しているため、新規法が参入できる可能性が極めて低い。

さらに環境負荷低減技術としてターゲット化合物を選定する際には、E-因子を考慮する必要がある。図8には、化学品の製造量とE-因子の相関を示す。E-因子とは目的物を1kg作る際に排出される廃棄物の量で、この値が0であることが理想である。図8に示す通りE-因子は、付加価値の高い製品の製造時ほど、製造工程が複雑でかつ多段階に渡るために大きくなる<sup>[16][17]</sup>。医薬品や電子材料は

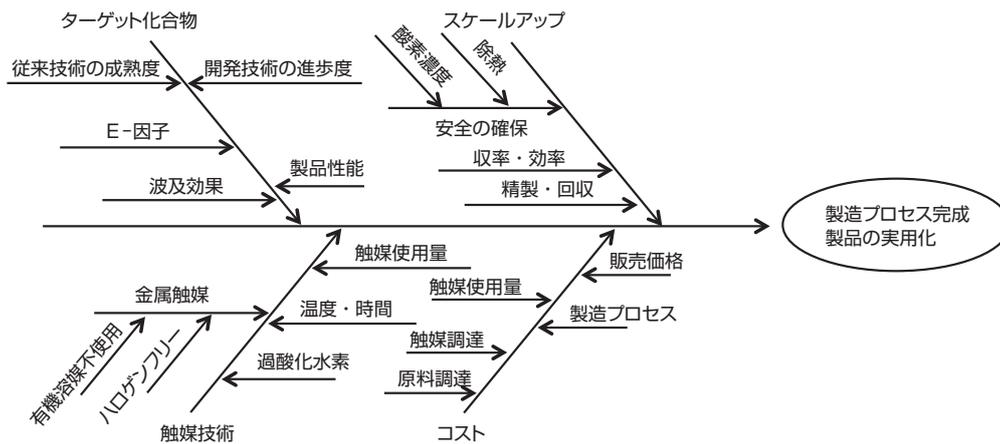


図7 実用化研究で考慮すべきマイルストーン

$$\text{E-因子} = \frac{\text{廃棄物の Kg 数}}{\text{目的物の Kg 数}}$$

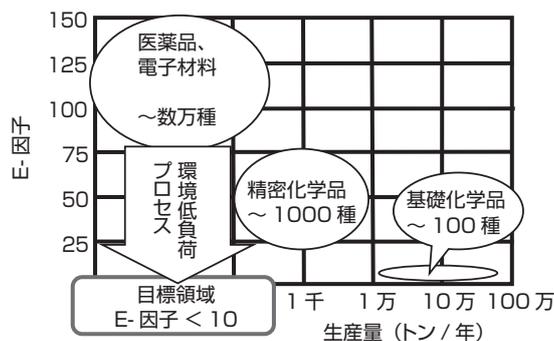


図8 化学産業のE-因子

市場価格が基礎化学品に比べて高く、廃棄物の処理に多少費用がかかっても利益が得られるため、E- 因子の大きさは見過ごされてきた。この結果、医薬品や電子材料は一品種あたりの生産量は小さくても種類が多いため、それらから生じる廃棄物の総量は石油化学産業全体の半分以上を占めるとも言われている<sup>[2]</sup>。したがって、E- 因子が大きく廃棄物の多い医薬品や電子材料の中間体や原料、いわゆる機能性化学品の製造方法を、環境にやさしい方法に変換することは、E- 因子を劇的に小さくできるとともに、廃棄物の総量（または絶対量）を低減する効果を期待できる。アジピン酸は基礎化学品であり、すでにプロセスが成熟していることもあって E- 因子はもともと低い。E- 因子からターゲット化合物を選定するならば、E- 因子が 100 から 150 に達し、廃棄物の多い医薬品や電子材料の中間体や原料、いわゆる機能性化学品の製造方法を、E- 因子が 10 以下の製法に変える場合に意義が大きい。

ターゲット化合物を選定する上で、波及効果や付加価値について考慮することも極めて重要である。新規技術の開発とその実用化には労力と時間がかかるため、得られた新技術が類似製品製造にも適用できる、性能が高く材料のシェアをかなり高い割合で取れる、といったことを想定してターゲット化合物を選定することは研究開発の段階において必須といえる。単に環境低負荷な技術に従来技術を置き換えるのではなく、環境低負荷な製造法であり、かつできた製品の性能が高いことが今後強く求められる。後述するが、ハロゲンフリー技術は電子材料の性能を飛躍的に高める可能性を秘めており、それによる新しい価値を創出できる可能性があるため、有力な要素技術である。

## 5.2 触媒技術

触媒技術については、3 項で詳述済みのため、概要を示す。我々は、過酸化水素を酸化剤とし、有機溶媒を使用

せずにハロゲンフリーな条件下、金属触媒をベースとした新規触媒の設計により、高効率、高選択的な酸化技術を所持している。開発技術は触媒回転数において既存触媒をはるかに凌駕する上、環境負荷が低い。具体的にはアルコール酸化やアジピン酸の製造にはタングステンとアンモニウム塩から成る二成分の触媒を、エポキシ化にはさらに一成分反応点活性化触媒を組み合わせた三成分の触媒を用いる。触媒技術をプロセスとして完成させるには、さらに、反応温度および時間の最適化、原料や触媒の添加方法の調整、触媒使用量の極小化が必要とされる。さらに重要な点は、我々の技術は過酸化水素酸化の基盤技術であり、種々の原料に適用できるが、公知になっている技術をそのままターゲット反応に用いても高効率な反応とならない点である。ターゲット反応、原料の構造によって、最適な触媒は各々異なるため、基盤技術であるタングステン酸・4 級アンモニウム塩・リン化合物から成る三成分の触媒系のコンセプトは活かしつつも、希望する目的物製造に特化した金属触媒、相間移動触媒、反応点活性化触媒をピンポイントに見いださなければならない。その際には、過酸化水素酸化の基盤技術を開発した知見と経験に裏打ちされた、反応の仕組みを基礎原理から解明し反応促進のために最も効果の大きな因子を取捨選択する能力が初めて、最も早く目的物の製造に最適な触媒の発見につながる。すなわち、触媒の基盤技術の開発を通じて獲得している基礎原理や反応機構の知見をプラットフォームとして保持・深化させながら、目的物の合成に最適な触媒系の発明・発見に活かしていくことが開発期間の短縮や経済的な競争力を獲得する上で重要である。

## 5.3 コスト

コストを考慮する上では、企業との共同研究が欠かせない。製造プロセスにおける従来法と新規法の客観的な比

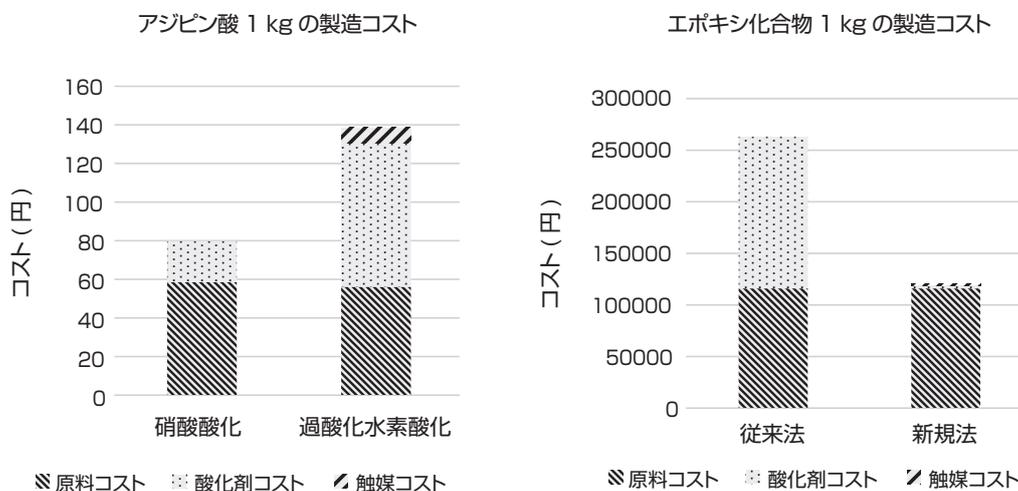


図9 製造コストの比較

較を行い、一般的にみて明確に環境低負荷な製法がコストに反映されていることを主張できる技術を開発することは、過酸化水素による環境低負荷酸化技術の実用化に必須である。具体例として、アジピン酸製造と絶縁膜の原料であるエポキシ化合物の製造（後述）のコスト比較を示す（図9）。アジピン酸の場合、取扱量は多いが製品としての付加価値がさほど高くないため、酸化剤の価格差がそのままコストに反映される。製品価格が安い化学品の製造へ過酸化水素酸化技術を適用することは酸化剤の価格の面から難しい。一方で、比較的製品価格の高い機能性化学品用エポキシ化合物の製造においては、製造技術の難易度が上がるものの、触媒技術とスケールアップ技術を開発することで、過酸化水素酸化技術で製造するメリットを出すことができる（新規法は6.項で詳述）。現実には、ここで示した計算結果がすべて製造現場の実情を反映したものではなく、数値の間違ひがあることも多い。しかし、リアルに実用化研究を進めるうえで、明らかにコストに見合わないテーマを除外し、そのうえで実施したいテーマの現状コストと、実用化可能なレベルでの目標値との差を、実用化研究開始時からある程度認識しておくことが企業との共同研究を進めるうえで必要になる。

#### 5.4 スケールアップ

製造時の問題点を抽出する意味で、スケールアップの検討は欠かせない。過酸化水素酸化技術は過酸化水素の分解により酸素が発生することが知られている。製造時の安全性を確認するため、反応中の酸素濃度をモニターし、さらに反応容器の発熱量を確認し、規定値以下に抑える検討が必要とされる。我々が開発した過酸化水素酸化技術は一つの容器の中に、原料、触媒、過酸化水素水のすべてを投入して攪拌させるバッチ式の反応器で行うため、スケールアップを行うと、発生した反応熱の除熱と、有機相と水相の界面の減少による反応点の低下が避けられない。これらマイナス要因が収率や反応速度に与える影響を検討し、場合によっては触媒開発を再度実施する必要がある。また、所定量の製品を安定的に製造するために、精製プロ

セスの検討や触媒の回収再利用検討が必要になる。

## 6 過酸化水素エポキシ化技術を利用した超長寿命絶縁膜製造

### 6.1 ターゲット化合物の設定

過酸化水素酸化による絶縁材料に有用な脂環式エポキシ化合物製造プロセスの開発を昭和電工株式会社と共同で行った<sup>[18]-[20]</sup>。絶縁材料は大型液晶ディスプレイから携帯電話まで、あらゆる電子部品に使用されている。液晶パネル等で配線に用いられるフィルム状基板に、直接チップを搭載して制御基板を作成するため、微細配線上を被覆する絶縁材料として、塗布可能で硬化処理が容易なエポキシ樹脂が用いられている（図10）。電子部品の高機能化、軽量化は今後ますます進むが、そのためにはプリント基板のフレキシブル化と配線の細線化（ピッチ幅がさらに狭くなる）が必須技術であり、その上を被覆し回路を保護する材料にも、従来以上の高い絶縁性能と柔軟性が求められるようになってきた。従来の製造技術では、塩素系化合物の使用が不可欠であり、大量の塩素系廃棄物が発生するだけでなく、製品中に残存する微量の有機塩素化合物が、微細配線をショートさせ長期絶縁性を損なうという問題点があった。我々は、上記性能を満足するエポキシ化合物を製造する技術として、新規触媒による過酸化水素酸化技術を開発した。

### 6.2 触媒開発、コスト削減とスケールアップ

我々が持っている過酸化水素用触媒基盤技術を基に、エポキシ化合物の特性を考慮した触媒を開発した。スケールアップ検討およびコストの検証を行い、最終的にユーザーからの要望に応える形で、触媒の再使用技術と過酸化水素添加方法の最適化により触媒使用効率を10倍にし、触媒コストを初期目標値からさらに1/10にした（図9）。また、反応容器、攪拌の工夫、反応温度の厳密な制御等により、20 kg スケールでの塩素フリー選択的エポキシ化技術の開発に成功した（収率71%、選択率90%）。この段階は対象とする化学製品と製造装置に特化したプロセス

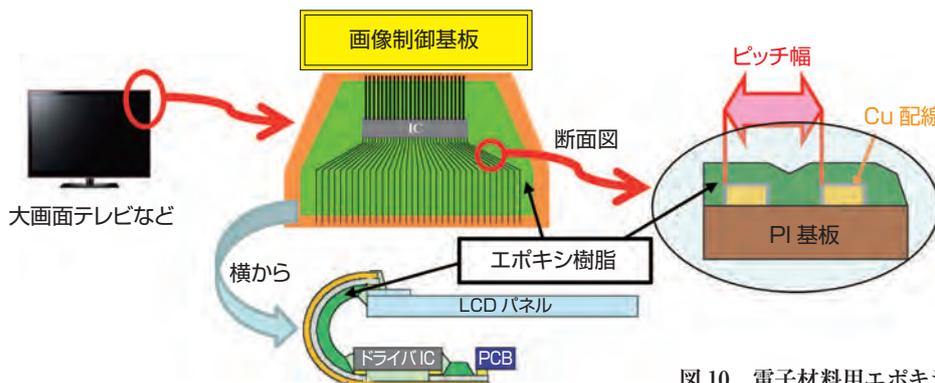


図10 電子材料用エポキシ樹脂の開発

の最適化であるため、時間と労力がかかる一方で、得られた知見を論文や特許にすることはできない。しかし、企業と一丸となって製造プロセスとしての目標値を達成することで、初めて実用化が見えてくることを実感した<sup>[21]</sup>。

### 6.3 絶縁膜の作成と評価

得られたエポキシ化合物をオリゴマー化し、硬化剤と組み合わせることで、超長寿命絶縁膜を完成させた(図11)。絶縁膜としての性能評価のため、高温高湿(85℃、85%Rh)下での絶縁耐久性の試験を実施した。図12に示した通り、従来品ではショートし、絶縁性が保たれていない。一方で、今回開発した樹脂を塗布したものは10万時間相当経過後も、劣化は全く観測されず、従来よりも二桁以上高い絶縁性能を示し、しかも長期間その絶縁性を維持することができた。この製品は、液晶ディスプレイの薄型化など、電子機器の小型軽量化を可能にし、新規採用世界シェアは70%に達する。

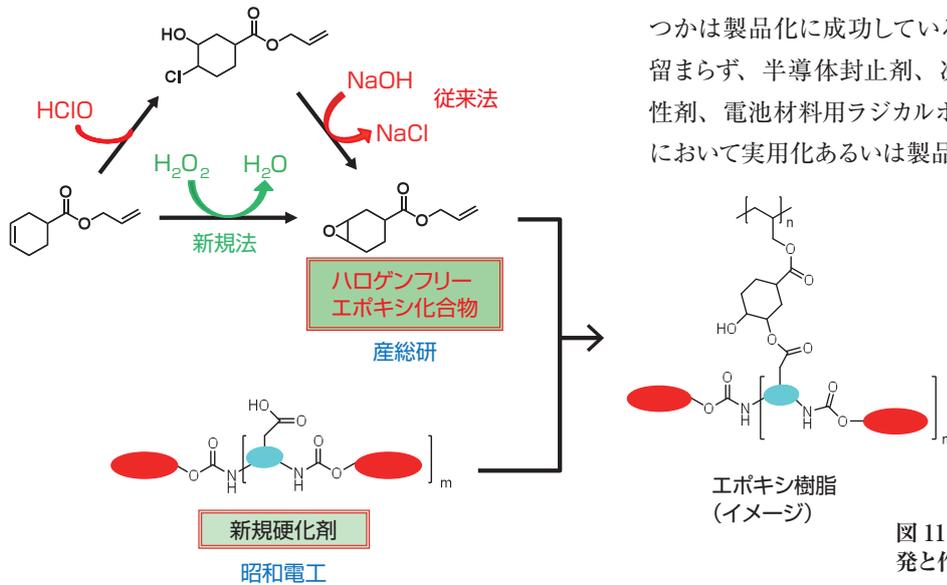


図11 過酸化水素による酸化技術開発と作成したエポキシ樹脂の製造

### 7 今後の展開

今回開発した過酸化水素酸化技術は絶縁膜の製造に留まらず、酸化技術を使用するあらゆる機能性化学品製造に寄与するポテンシャルを秘めている。我々は、基盤技術として、環境低負荷な過酸化水素による酸化を可能にする触媒技術を有している。今後、さまざまな製品について過酸化水素酸化技術を駆使して実用化する際に、我々が得ている科学および技術の知見・経験を用いることで、反応の本質をゼロベースから開始するグループよりも早くつかむことができるため、より短期間で目標を達成できる。我々は現在も基盤技術の開発を継続して行っており<sup>[22]・[24]</sup>、例えば一つの分子内にたくさんのエポキシを作る技術、ポリマーを直接エポキシ化する技術、多数の反応点を持つ中からエポキシだけを合成する技術を開発している<sup>[3]</sup>。基礎研究から製品化への研究、製品化を見据えた応用研究から新規な基礎研究へとスパイラルに研究が継続しており、数年前に開発した触媒反応が現在実用化のステップへと進み、いくつかは製品化に成功している。現在、超長寿命絶縁膜に留まらず、半導体封止剤、次世代接着剤、高機能界面活性剤、電池材料用ラジカルポリマーなど多様な製品の製造において実用化あるいは製品化段階まで進んでいる<sup>[25]・[26]</sup>。

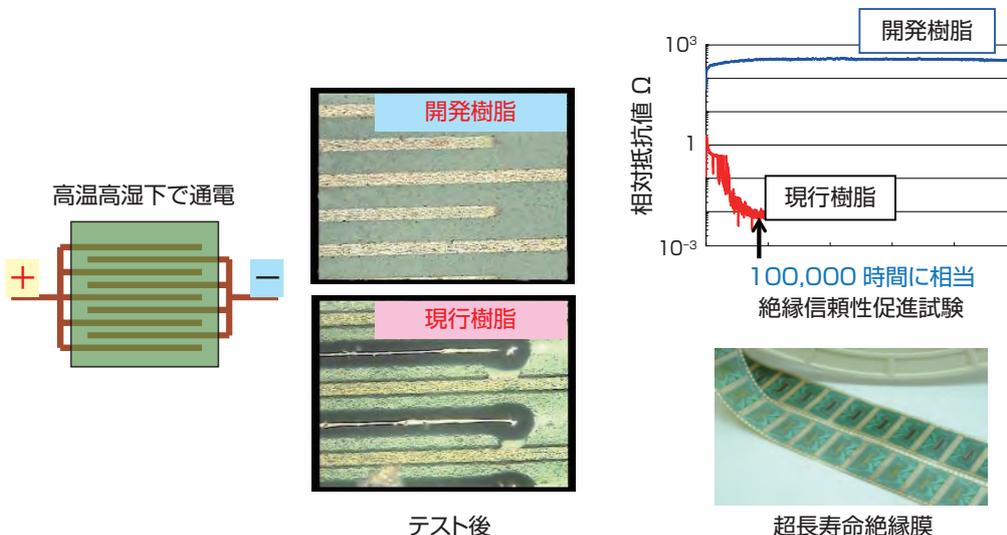


図12 作成した絶縁材料の性能評価

## 8 まとめ

日本の化学産業は、出荷額約 40 兆円、付加価値額約 15 兆円、従業員数約 88 万人を擁する一大産業である。特に、機能性化学品の世界シェアは高く、自動車、情報・通信分野等の高度組立産業において、材料の供給を中心に、必要不可欠な役割を果たしている。一方で、同産業は二酸化炭素排出量において国内産業分野の約 16 %、国内製造業の産業廃棄物排出量において約 13 %を占めている。今後の化学産業のあり方として、環境低負荷な製造技術は必須である、との認識が強まっている。例えば、1999 年に日本でも日本化学会でグリーンケミストリー研究会が発足したことをきっかけに 2000 年には産学官連携でグリーン・サステイナブル ケミストリー ネットワーク (GSCN) が設立された。近年ではさらにクリーンな化学品製造法についての意識が高まり、2002 年の環境開発サミット (WSSD) ヨハネスブルグ実施計画 (WSSD2020) において「製造業における廃棄物量の抜本的な削減」が規定されている。

各企業がそれぞれ独自のノウハウを持って機能性化学品を製造している点が日本の化学産業の強みである。したがって、十分に学術の理解があり、基盤技術として最高水準のものを持っていないと共同研究にもなりえず、基盤技術の実用化への貢献は難しい。我々は要素技術として過酸化水素を高選択的に活性化する世界最高水準の技術と学術基盤を持っているため、企業との共同研究を通して化学製品の明確な設定や製品化研究を進めることができ、実用化につながった。また、こうして培った実用触媒開発力は過酸化水素酸化に限らず、新規触媒開発と実用化に共通する能力である。現在新たな課題として、砂から有機ケイ素原料の触媒による直接製造 (砂の資源化)、二酸化炭素から触媒による化学品製造、空気中の酸素と窒素から直接化学品製造 (空気の資源化) についても挑戦している。

## 謝辞

過酸化水素エポキシ化技術を用いる超長寿命絶縁材料の製品化開発は、昭和電工株式会社との共同研究で行われたものであり、同社の内田博氏に感謝申し上げます。今回取り上げました過酸化水素酸化技術は著者の佐藤が名古屋大学に在職したときにシーズを発見し、そののち産総研にて共著者の今、田中と共に基盤技術、実用化技術へと深化させたものであり、名古屋大学の野依良治先生、学生諸氏、および産総研の島田広道、田中正人、碓井洋子、大越雅典の諸氏に感謝申し上げます。また、この研究の一部は、新エネルギー・産業技術総合開発機構 (NEDO) の支援を受けて行ったものであり、ここに感謝申し上げます。

## 参考文献

- [1] 日本化学工業協会編, *Chemical Industry of JAPAN 2013* (2013).
- [2] 佐藤一彦, 碓井洋子: 過酸化水素水を用いる環境に優しい酸化反応の開発, *触媒*, 46 (5), 328-333 (2004).
- [3] Y. Kon, T. Chishiro, H. Uchida, K. Sato and H. Shimada: Development of oxidation systems using hydrogen peroxide for synthesis of fine chemicals, *J. Jpn. Petrol. Inst.*, 55 (5), 277-286 (2012).
- [4] 今喜裕, 佐藤一彦: 過酸化水素関連技術の現状と将来展望, *化学と工業*, 65 (11), 864-865 (2012).
- [5] P. T. Anastas and J. C. Warner: *Green Chemistry*, Oxford University Press (1998) [日本化学会, 化学技術戦略推進機構 (訳編), 渡辺正, 北島昌夫訳: *グリーンケミストリー*, 丸善 (1999)].
- [6] G. B. Payne and P. H. Williams: Reactions of hydrogen peroxide. IV. Sodium tungstate catalyzed epoxidation of  $\alpha$ ,  $\beta$ -unsaturated acids, *J. Org. Chem.*, 24 (1), 54-55 (1959).
- [7] C. Venturello, E. Alneri and M. Ricci: A new, effective catalytic system for epoxidation of olefins by hydrogen peroxide under phase-transfer conditions, *J. Org. Chem.*, 48 (21), 3831-3833 (1983).
- [8] Y. Ishii, K. Yamawaki, T. Ura, H. Yamada, T. Yoshida and M. Ogawa: Hydrogen peroxide oxidation catalyzed by heteropoly acids combined with cetylpyridinium chloride. Epoxidation of olefins and allylic alcohols, ketonization of alcohols and diols, and oxidative cleavage of 1,2-diols and olefins, *J. Org. Chem.*, 53 (15), 3587-3593 (1988).
- [9] K. Sato, M. Aoki, M. Ogawa, T. Hashimoto and R. Noyori: A practical method for epoxidation of terminal olefins with 30 % hydrogen peroxide under halide-free conditions, *J. Org. Chem.*, 61 (23), 8310-8311 (1996).
- [10] C. Venturello, R. D'Aloisio, J. C. J. Bart and M. Ricci: A new peroxotungsten heteropoly anion with special oxidizing properties: synthesis and structure of tetrahexylammonium tetra(diperoxotungsto)phosphate(3-), *J. Mol. Catal.*, 32 (1), 107-110 (1985).
- [11] R. Noyori, M. Aoki and K. Sato: Green oxidation with aqueous hydrogen peroxide, *Chem. Commun.*, 1977-1986 (2003).
- [12] W. P. Weber and G. W. Gokel: *Phase Transfer Catalysis in Organic Synthesis*, Springer-Verlag, (1977).
- [13] K. Sato, M. Aoki and R. Noyori: A "green" route to adipic acid: direct oxidation of cyclohexenes with 30 percent hydrogen peroxide, *Science*, 281 (5383), 1646-1647 (1998).
- [14] 佐藤一彦, 野依良治: 過酸化水素水を用いる実用的酸化反応-アジピン酸の環境調和型合成法-, *化学と工業*, 52 (9), 1166-1169 (1999).
- [15] K. Sato, M. Aoki, J. Takagi and R. Noyori: Organic solvent- and halide-free oxidation of alcohols with aqueous hydrogen peroxide, *J. Am. Chem. Soc.*, 119, 12386-12387 (1997).
- [16] R. A. Sheldon: Organic synthesis; past, present and future, *Chem. Ind.*, 23, 903-906 (1992).
- [17] 佐藤一彦: グリーンケミストリーを担う過酸化水素酸化技術, *学術の動向*, 14 (3), 60-63 (2009).
- [18] 佐藤一彦: 過酸化水素水を用いる環境調和型酸化反応, *産総研TODAY*, 4-3, 21 (2004).
- [19] 内田博: ハロゲンフリーエポキシ材料, *ペトロテック*, 34 (2), 101-105 (2011).
- [20] 今喜裕, 佐藤一彦: 環境共生化学を指向したノンハロゲン酸化プロセスの開発, *ペトロテック*, 34 (2), 91-95 (2011).
- [21] 佐藤一彦: 私の産学官連携, *有機合成化学協会誌(巻頭言)*, 70 (9), 895 (2012).
- [22] Y. Usui, K. Sato and M. Tanaka: Catalytic dihydroxylation of olefins with hydrogen peroxide: An organic-solvent- and

metal-free system, *Angew. Chem. Int. Ed.*, 42, 5623-5625 (2003).

- [23] Y. Kon, Y. Usui and K. Sato: Oxidation of allylic alcohols to  $\alpha, \beta$ -unsaturated carbonyl compounds with aqueous hydrogen peroxide under organic solvent-free conditions, *Chem. Commun.*, 42, 4399-4400 (2007).
- [24] Y. Kon, H. Yazawa, Y. Usui, K. Sato: Chemoselective oxidation of alcohols by a  $H_2O_2$ -Pt black system under organic solvent- and halide-free conditions, *Chem. Asian J.*, 3 (8-9), 1642-1648 (2008).
- [25] 今喜裕, 佐藤一彦: テルベンを安全かつ高効率にエポキシ化, *産総研TODAY*, 12-12, 12 (2012).
- [26] 今喜裕: 塩素フリーの高純度エポキシ化合物, *産総研TODAY*, 13-11, 17 (2013).

## 執筆者略歴

今喜裕 (こん よしひろ)

2005年東北大学大学院理学研究科化学専攻博士課程後期修了、博士(理学)取得。その間、日本学術振興会特別研究員DC2。同年、産業技術総合研究所環境化学技術研究部門研究員。2013年、同所触媒化学融合研究センター主任研究員、現在に至る。研究分野は、触媒化学、特に酸化反応、環境共生化学。受賞歴として、2008年、第16回化学・バイオつくば賞、2011年産業技術総合研究所理事長賞、2014年第3回GSC奨励賞を受賞。この論文では主として新規触媒の開発、酸化プロセスの確立、共同研究の実施、論文および特許作成を行った。



田中 真司 (たなか しんじ)

2013年大阪大学大学院基礎工学研究科機能物質化学領域博士課程修了、博士(理学)取得。その間、2009年ウィーン工科大学、2011年スイス連邦工科大学チューリッヒ校にて訪問研究員。2013年産業技術総合研究所触媒化学融合研究センター特別研究員、2014年同所触媒化学融合研究センター研究員、現在に至る。研究分野は触媒化学、錯体化学。2013年日本化学会第93春季年会学生講演賞を受賞。2014年日本学術振興会第6回HOPEミーティング出席。この論文では資料調査および論文作成を行った。



佐藤 一彦 (さとう かずひこ)

1985年千葉大学理学部化学科卒業、1990年東北大学大学院理学研究科博士課程修了。同年名古屋大学理学部助手、2000年工業技術院物質工学工業技術研究所主任研究員(招聘研究員)、2001年産業技術総合研究所グリーンプロセス研究ラボ主任研究員、2005年同所環境化学技術研究部門精密有機反応制御グループ長、2008年同所環境化学技術研究部門主幹研究員、2011年同所企画本部総括企画主幹、2013年より同所触媒化学融合研究センター長。専門は有機合成化学、環境にやさしい酸化反応に興味を持ち過酸化水素酸化技術の研究を進めたのち、現在はケイ素化学技術を含む化学全般。2012年~2022年経済産業省「未来開拓研究」プロジェクト「グリーン・サステナブルケミカルプロセス基盤技術開発(革新的触媒)」(有機ケイ素機能性化学品製造プロセス技術開発)プロジェクトリーダー。1989年環太平洋国際化学会議優秀講演賞、2002年有機合成化学協会奨励賞、2008年第16回化学・バイオつくば賞、2010年第8回産学官連携功労者表彰(日本経済団体連合会会長賞)、2011年産業技術総合研究所理



事長賞、2014年第3回GSC奨励賞等を受賞。この論文では主としてテーマ設定、環境にやさしいプロセスの設計、新規触媒反応の創出および共同研究やプロジェクトのマネージメントを行った。

## 査読者との議論

### コメント 全体

(清水 敏美: 産業技術総合研究所、景山 晃: 産業技術総合研究所イノベーション推進本部)

この論文は、著者らがグリーン・サステナブルケミストリーの典型的な具体例として世界に先駆けて示した過酸化水素酸化技術について、基盤研究としての新規触媒の開発から、最終的に製品化を目的としたベンチプラントサイズでの製造と製品開発まで、その要素技術の構成と統合に関する研究シナリオが述べられています。化学工業における触媒技術の重要性および新規触媒技術が工業的に実用される際に必要な他の視点や技術の重要性に言及した統合化学技術に関する論文としてシンセシオロジ誌に相応しい論文です。

### 議論1 シナリオ、要素技術の組立てについて

コメント(清水 敏美、景山 晃)

初稿において、著者らは目標達成のシナリオとして、1) 対象化合物の設定、2) 新規触媒の開発、3) 酸化プロセスの確立、4) コスト削減、5) ベンチプラントサイズでの製造と製品の評価、の5つの要素技術を挙げています。これらは当該過酸化水素酸化技術を実用化・工業化レベルに上げるために重要な技術要素ですが、この論文の核心は新しい触媒の研究開発であります。1) ~ 5) を並列に示すと、5つの要素が等価であるような印象を読者に与えます。例えば、「この研究の根幹は過酸化水素を酸化剤として工業的に利用し得る新規触媒の開発にあるが、触媒を創出しただけで工業化できるわけではなく、1)、3)、4)、5) に関する検討・研究が実用化する際には不可欠である。この論文では、これらの各要素技術の統合的な研究開発について述べる」などのシナリオ、要素技術の説明の組立てが必要と考えます。また、革新的な触媒開発にとって、どのような作業仮説を立て、その結果、どのような事実が得られ、どのように課題解決を行ったのかの具体的な時系列ストーリーをハロゲンフリー技術、有機溶媒不要技術、触媒の回収再利用技術、金属触媒設計技術、相間移動触媒設計技術等の観点から記述する組立ても考慮が必要だと思います。さらに、当初注力したアジピン酸合成への適用検討とエポキシ樹脂脂合成への転進に関する説明がわかりにくいので検討が必要です。

回答(今喜裕)

初稿における要素技術5項目を再考し、撤廃しました。そのかわり、有機溶媒不使用技術、ハロゲンフリー技術、金属触媒設計技術を過酸化水素による酸化技術を可能にする触媒基盤技術の要素技術と位置づけ、3章を新たに作成しました。そこでは基盤技術の開発について、作業仮説、実験による実証、考察、を繰り返す触媒開発の基本的な研究開発スタイルに則って、誤解を生じないように注意して時系列に従い記載しました。さらに、実用化研究で考慮すべき要素技術と統合システムの設定として5章を作成しました。そこでは、過酸化水素を用いる触媒技術が基盤技術として根幹にあり、その技術を実用化するために、ターゲットの設定、コスト、スケールアップという3種類のマイルストーンが存在する、という論旨にしました。また、全体の論旨の組立てを再考し、新たに設けた3章で触媒の基盤技術について、4章でアジピン酸の例、5章でアジピン酸の失敗を踏まえたマイルストーンの設定をそれぞれ説明し、読者の理解が進むように時系列をそろえました。

### 議論2 コスト比較について

質問・コメント(清水 敏美)

酸化反応の対象となる好適化合物の選択、製造を実施する際の反応プラントの設計、さらには工業化に向けて、種々のコスト計算は必

要不可欠です。新規に開発した触媒を用いて基礎化学品や機能性化学品の製造を実施する場合、原料コスト、触媒コスト、酸化剤コスト、設備投資コスト、廃棄物処理コスト、さらには最終製品価値等がコスト計算に必要と考えられます。今回、新たな適用が従来法に比較して後退したアジピン酸製造と、逆に前進した超長寿命レジスト（あるいはエポキシ化合物）の製造において、その内訳（金額、あるいは相対比率等）がどのような構成であったかは興味あるところです。例えば、内訳を含む棒グラフで図示することにより、著者が述べようとする製造実用化の際のコスト問題解決に関して読者の理解が進むと考えます。

回答（今 喜裕）

ご指摘に従いまして、できるだけ明確なコスト比較を図9として加筆しました。図9においては、アジピン酸の失敗が、過酸化水素に比べて硝酸が圧倒的に安く、酸化剤のコストの差にあることが明確になっています。一方で、エポキシ樹脂の成功の要因として、原料を含めて機能性化学品自体が高付加価値品であること、かつ酸化反応の技術の難易度が飛躍的に増加したため硝酸では酸化できないこと、そのため従来法の酸化剤（図11に従来法として記載）では極めて酸化剤が高コストであること、が挙げられます。5章において、過酸化水素を用いてエポキシ樹脂の製造を可能にする画期的触媒技術の開発により、従来法よりも圧倒的に安い過酸化水素のコストが強みとなり、実用化につながったことを考察しました。

質問・コメント（景山 晃）

220万トンのアジピン酸の生産に伴って生じる亜酸化窒素の排出量はどれくらいかを示すことは、グリーン・サステナブルケミストリーの観点から重要です。また、酸化剤としての硝酸のコストおよび排出される亜酸化窒素の処理費用に対して、過酸化水素のコストを指標として示すことはできないでしょうか。おおよそのコスト比較の記述が欲しいところです。

回答（田中 真司）

アジピン酸製造に伴う亜酸化窒素の排出量は1999年時点で40万トンです（1章に記載）。また、コストについて、主に製造プロセスに係わる化合物コストの観点から算出し、5.3項に加筆しました。

### 議論3 2種類の触媒の関連について

質問（景山 晃）

1種類目の触媒（金属触媒）と2種類目の触媒（相間移動触媒）とは独立に開発できるという考え方は、触媒技術の領域では一般的なのでしょうか。もしそうであれば、著者だけが、2つの機能が異なる触媒の相互作用が生じ得ることに気がついていたというアピールになります。金属触媒と相間移動触媒を検討する際には、これらの相互作用を考慮しながら触媒の化学構造や立体構造を設計する必要があります、といった記述はできないでしょうか。また、この相互作用はスケールアップした際に影響を及ぼすのでしょうか。

回答（今 喜裕）

ご指摘頂きました通り、我々の開発した触媒は2つの機能が異なる触媒の相互作用が生じうることに気づき、触媒活性の向上のために触媒の相互作用を積極的に活用しました。改訂稿では3章に触媒技術開発の項を設け、事実と照らし合わせながら時間軸に沿って順に記載しました。相互作用と触媒構造の関連については3章に加筆しました。スケールアップ時における触媒成分の相互作用の影響は出ますが、そもそもの2種類の触媒の説明が不正確でしたので、スケールアップ時における触媒の見直しの必要性という観点から、5.2項および5.4項に記載しました。

### 議論4 対象化学品の選定について

コメント（景山 晃）

初稿において、「適切な機能性化学品をターゲットに選択し、……」とありますが、「適切な」の判断基準について記述をお願いします。図8に示されたE-因子はその一つと考えますが、判断基準となるE-因子の概数値を教えてください。この点は、当該技術の適用範囲を判断する際にさわめて重要なポイントであり、かつ、筆者だけが記述できるオリジナリティーとなるように思います。また、この判断基準には、E-因子だけでなく、後述の塩素系酸化剤を用いることに付随する生成物のマイナスの機能を防止・抑制できる付加価値という要素も含まれると思います。

回答（今 喜裕）

「適切な」の判断基準は、製品の付加価値があり、売れる可能性のあること、E-因子を大幅に低くする可能性を理論上有していること、その際の指標として、従来法のE-因子よりも1桁以上低くなること、開発技術に波及効果が見込めること、だと考えています。5.1項において詳述しました。

### 議論5 エポキシ化触媒について

コメント（景山 晃）

エポキシ化触媒に関する記述はこの論文のハイライト部としますので、触媒の化学構造、オレフィンからエポキシ化合物を得る反応式等を示してください。また、本件の統合システムを構築するために検討・最適化した各要素技術の内容をある程度、詳細に示してください。初稿ではごく一般論の記述しかなく、具体的に何をどうしたのかが不明です。要素技術の数が多いので、魚骨（Fish Bone）図を活用する表現法も有効と思います。また、「もう1種類の触媒」とありますが、第3の触媒についても金属触媒、相間移動触媒に対応して、その機能を表す表現を用いてください。

回答（今 喜裕）

エポキシ化の反応式をアジピン酸の記述に合わせて図11として記載しました。実用化を目指す際のマイルストーンおよび要素技術を整理するために、魚骨図を元にした表現を図7に記載し、5章で説明をしました。

アルコール酸化やアジピン酸製造のための2種類の触媒と、エポキシ化のためのさらに1種類の触媒の追加はわかりにくい部分と捉えています。そこで、3章に過酸化水素での酸化を可能にする触媒基盤技術をまとめて記載しました。なお、第3の触媒は、その機能から「反応点活性化触媒」という表現を用いました。

### 議論6 今後の展開について

コメント（景山 晃）

今後の展開を図る際、著者らは、ゼロから始める場合と比較して、おおよその候補触媒を絞り込むことができる等の知見と方法論を得ていると思います。したがって、効率よく最適触媒群を見つけ出す方法論“Methodology”について記述してください。すなわち、著者らが得ている科学および技術の知見・経験を用いることで、ゼロベースから開始するより速やかに目的を達成できる可能性が高いことを示すような記述としてはいかがでしょうか。

回答（今 喜裕）

効率よく最適触媒を見つけ出す方法論として、ご指摘の通り、多数の知見・経験を有していることを基本に、基盤技術を明確に持っているために過酸化水素を用いる触媒技術を世界で最も詳しく原理まで理解していること、その理解を基に最小限の改良を基盤技術に施すことで、目的反応のための「特化した」触媒を最も速やかに開発できると考えています。この考えを3～5章と7章に記載しました。なお、このようにして蓄積した触媒に関する知見・経験は、過酸化水素酸化技術にとどまらず、実用触媒開発に共通するものであります。

# 有害物質規制に対応するための プラスチック認証標準物質の開発

— RoHS指令対応の重金属分析用および臭素系難燃剤分析用に —

日置 昭治\*、大畑 昌輝、松山 重倫、衣笠 晋一

RoHS指令は日本の産業界へ大きなインパクトを与えた。規制対応の製品を製造するためには原料・素材の評価が重要であるが、特にプラスチック標準物質が当時世界的にほとんどなく、産総研計量標準総合センター (NMIJ) では産業界の求めに応じて迅速にプラスチック標準物質を開発した。まずはどのような標準物質を作るべきかを考えて開発プランを設計した。候補標準物質に特性値を付与するために、分析法 (均質性評価法、分解法、定量法) の開発が重要で色々な試行錯誤を行った。また、世界的に通用するものにするために、メートル条約下の相互承認協定に関わるデータベースへの校正・測定能力の登録を目指した。国内外への頒布の状況や、開発から今日までの活動を紹介する。

**キーワード:** 有害物質規制、RoHS 指令、プラスチック、認証標準物質、重金属分析、臭素系難燃剤分析

## Development of plastic certified reference materials (CRMs) to cope with restrictions on hazardous substances

– CRMs for analysis of heavy metals and brominated flame retardants regulated by RoHS directive –

Akiharu HIOKI\*, Masaki OHATA, Shigetomo MATSUYAMA and Shin-ichi KINUGASA

The RoHS directive had a significant impact on Japanese industry. Complying with this directive requires evaluating the raw materials, especially plastics, that are used in electrical and electronic equipment. However, few plastic reference materials (RMs) were appropriate for evaluation. In response to industry requests, we undertook rapid development of plastic RMs. First, we considered the development of RMs that were needed. To assign property values to candidate RMs, methods important for the homogeneity evaluation, digestion and determination were developed by various trials and errors. We aimed to register our calibration and measurement capabilities to the key comparison database in order to make our CRMs acceptable worldwide. In this paper we introduce our activities up until now including the distribution of CRMs inside and outside Japan.

**Keywords:** Restrictions of hazardous substances, RoHS Directive, plastics, certified reference materials (CRMs), analysis of heavy metals, analysis of brominated flame retardants

### 1 はじめに—欧州規制であるRoHS指令に始まる動き

欧州指令 (EU Directive) の一つである RoHS 指令 (Restrictions of the use of certain Hazardous Substances in electrical and electronics equipment、日本語では、電気・電子機器中の特定有害物質の使用禁止令)<sup>1)</sup> が 2006 年 7 月から発効することになり、この規制をクリアしないと電気・電子機器の EU への輸出ができなくなるということで国内で大きな問題となった。これは電気・電子機器に関する規制ではあるが、原料・素材から部品が作られ、それらが組み立てられて最終製品ができるので、産業界全体を巻き込んでだれもが無視できない規制となった。対象の特定有害物質

は、カドミウム (Cd)、水銀 (Hg)、鉛 (Pb)、六価クロム (Cr (VI))、ポリ臭化ジフェニール (PBB)、ポリ臭化ジフェニルエーテル (PBDE) であり、規制の閾値 (許容される上限値) は、Cd が 100 mg/kg、残りが 1000 mg/kg である。PBB と PBDE は臭素系難燃剤と呼ばれる物質群であり、それらの構造式は図 1 のとおりで、臭素の数と位置によって各々多くの異性体がある。総量規制ではないので、濃度の高い部品が 1 個あるだけでも問題になるという、ある意味で理不尽なところがある濃度の規制である。

この指令の目的は、電気・電子機器に使用する有害物質の使用制限に関する EU 加盟国の法規制の格差をなくすこ

産業技術総合研究所 計量標準総合センター 〒305-8563 つくば市梅園 1-1-1 つくば中央第 3  
National Metrology Institute of Japan (NMIJ), AIST Tsukuba Central 3, 1-1-1 Umezono, Tsukuba 305-8563, Japan \* E-mail: akihioki@aist.go.jp

Original manuscript received August 20, 2014, Revisions received October 20, 2014, Accepted November 11, 2014

とや、使用者の健康の保護、廃電気・電子機器の処理・処分者の健康の保護、環境負荷や資源負荷の削減、資源回収を進めるためである。なお、RoHS 指令は一つの規制に過ぎないが、背景に環境に関する大きな流れがある中で動きと考えるべきである。さらに、電気・電子機器にも限らないが、それらの目的に沿って各国において有害物質の使用規制や、製品の品質表示、廃棄製品の回収等を求める法律が制定されてきており、将来を考えれば有害物質や特定物質を使わないことが基本原則になっている。したがって、製品中の有害物質や特定物質の含有量測定の実要求は将来的に増加する方向にある。

なお、2011年にRoHS指令は改正され（通称RoHS2あるいは新RoHS: 2013年1月3日以降、新指令に置き換わった）<sup>[2]</sup>、対象範囲等を巡っては規制が強化されているが、規制対象の化合物と濃度の閾値は変わっていない。RoHS指令の他に、関係のある規制として、WEEE指令（電気・電子機器廃棄物の回収とリサイクルに関する指令）<sup>[3]</sup>、ELV指令（使用済み自動車に関する指令）<sup>[4]</sup>や、REACH規則（化学品の登録・評価・認可および制限に関するEU規則）<sup>[5]</sup>という包括的な化学物質に関する網も被せられている。また、通称日本版RoHSと呼ばれJ-Mossとも略されるJIS C 0950:2008も制定され、特定物質の含有の表示を規定している。この論文においては、電気・電子機器をEUに輸出できる条件を満たすための一助となることを目指して産業界を支援すべく動いた産総研計量標準総合センター（NMIJ）における標準物質開発について、特にRoHS指令に対する利害関係者の動きとも絡めて述べる。なお、開発初期の状況は環境新聞のインタビュー記事でも紹介された<sup>[6]</sup>。

## 2 研究シナリオの設定

### 2.1 RoHS指令のインパクトと産業界からの要請

ある意味で発端と言える象徴的なことは2001年10月に発生した出来事である。日本のある大手企業の製品がプラスチック部材中に規制を超えるカドミウムが含まれている

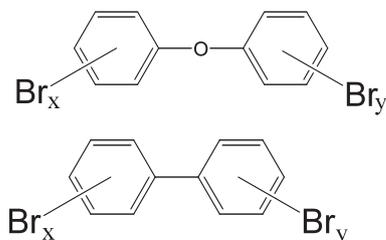


図1-a PBDE (polybrominated diphenyl ether : 上) および PBB (polybrominated biphenyl : 下)  
xとyはBrの数を表すが、その数と位置によって数多くの異性体がある。

としてオランダ当局から輸入を禁止された。直後から当該企業に留まらず、対応方法について模索が始まった。すなわちオランダに限らずEU全体の統一的な規制として導入されようとしていたRoHS指令への対応が急務として浮上してきた。規制そのものは電気・電子機器に対するものであるが、最終製品の製造メーカーやその主要業界団体のJEITA（一般社団法人電子情報技術産業協会）等の問題であるばかりでなく、それらのための部品やさらに上流の素材・原料のメーカーを含めたサプライチェーン（部品供給網）全体の大問題として認識されたということである。設計から出荷までの源流管理を目指し、社内体制の整備、取引先への調査票の記入要請、専用分析機器の導入等をいち早く整えるべく動いた企業もあったが、ごく一部であり、指令への対応力が企業の生き残りにも関係してくることになった。このような情勢の中で、最終的には原料なり製品なりを試験しなければ適否が分からないわけであるので、関係する試験所や分析機器メーカーも含めた問題となり、日本の産業界全体に激震が走り、日本としては政府も含めて歴史的な大問題として対処が求められることとなった。そのような中、2003年の初夏にRoHS指令に対応して行う分析に使うことのできるプラスチックCRM（認証標準物質）の開発ができないかという話がNMIJへ寄せられた。ここで研究シナリオ全体を先に示すと図2のようになる。寄せられた要望は研究グループの有する得意分野のポテンシャルに合致し、それをベースとして課題を解決するための研究開発を開始した。

当時、計測標準研究部門無機分析科無機標準研究室では、金属やセラミックス等の材料系の標準物質を開発していた経緯もあり、関連の無機分析の経験も豊富にもっていた。特にICP-OES（誘導結合プラズマ発光分光分析法）やICP-MS（誘導結合プラズマ質量分析法）という原子スペクトル分析は主要な分析方法として研究対象としていたし、ICP-MSを同位体希釈法と併用する手法も扱っていた。また、計量標準の開発・維持・供給を主要な任務として、国際対応のために不可欠なSI（国際単位系）へのトレーサ

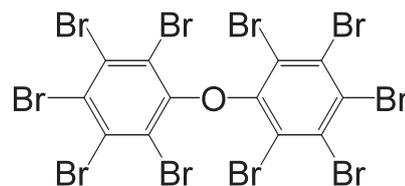


図1-b PBDEの一つであるDBDE (decabrominated diphenyl ether)

ビリティを常に念頭において研究してきた経緯もあった。トレーサビリティとは、値付けの連鎖を通じて上位標準へたどることができることを指し、それを形容詞として用いる場合にはトレーサブルを用いる。食品の履歴を示すトレーサビリティと区別するために、正式には計量計測トレーサビリティと呼ばれ、計量トレーサビリティや計測トレーサビリティとも呼ばれる。また、先端材料科高分子標準研究室(当時)は、プラスチック中の共存有機物の定量に多くの経験を有していた。

サプライチェーンにおいては原料段階からのデータの伝達も重要でありその体制作りも急務ではあったが、最終的な責任が発生することを考えれば、RoHS 指令に適切に対応するためには最終製品中の対象物質が閾値以下であることを確実にする必要があり、製品を EU に供給する側としては、それを実証するための精確な分析が求められるわけである。今回の問題に対処するためには、特に、国際的に認められる分析方法が必要であった。自身の分析法やその分析結果が適切かつ精確であることを客観的に示すことは簡単なことではないが、適切な計量標準にトレーサブルな CRM を試験室自身が分析して、認証値 (CRM に伴って発行される認証書に記載された含有量等の値) どおりの結果が出ることを示すことは、一般的かつ有力な内部精度管理 (分析値が適切に得られているかどうかを自身で確認すること等) のやり方の一つである。

今回の問題に関しては、2003 年当時には適切な CRM が乏しかった。EU の規制を制定する当局側は環境分野ではより高い理想に基づいて決定する傾向があるとされており、実際、RoHS 指令は理念が先行して制定された規制である。すなわち、指令の制定過程において規制への適否を検証する具体的な方法は置き去りにされており、適切な CRM の利用可能性の有無は全く考慮されていなかった

と言える。そんな中でも、当時 PE (ポリエチレン) 樹脂中の重金属等の認証値が付与された二つの CRM (IRMM (欧州標準物質・計測研究所) の BCR-680 と BCR-681) が存在していた事実は述べておかなければならない。ただし、これらは必ずしも RoHS 指令を想定して作られた CRM ではなく、規制物質に関する濃度水準は RoHS 指令に対応するものではなかったし、規制対象 6 物質のうちの臭素系難燃剤には全く対応していなかった。

さらに標準物質を使う前提としての分析法に関しては、国際的な規格が存在していなかったため、それを急いで制定するという動きも進められた。この動きには日本からも積極的な関与があった。IEC 62321:2008<sup>[7]</sup> が 6 種類の規制物質の濃度定量に関する IEC の最初の規格であったが、IEC 62321:2008 の初期の規格制定過程における共同実験のための試料として、NMIJ で開発中であった候補標準物質 (IEC 62321:2008 中に NMIJ CRM 8112-a、NMIJ CRM 8113-a として明記されている) を提供し、規格制定にも貢献した。なお、当該規格は 2013 年の定期見直しにおいて、内容の更新を行うとともに、将来的な RoHS 規制の多様化への対応を考慮して、以下のようなファミリー型規格へ再編された。すなわち、IEC 62321-1:2013 (手引及び概要)、IEC 62321-2:2013 (分解、分離及び機械的サンプルの調製)、IEC 62321-3-1:2013 (スクリーニング-蛍光 X 線分光法による鉛、水銀、カドミウム、総クロム及び総臭素)、IEC 62321-3-2:2013 (スクリーニング-燃焼によるポリマー及び電子部品内の総臭素-イオンクロマトグラフィ)、IEC 62321-4:2013 (CV-AAS、CV-AFS、ICP-OES 及び ICP-MS によるポリマー、金属及び電子部品内の水銀)、IEC 62321-5:2013 (AA、AFS、ICP-OES 及び ICP-MS によるポリマー及び電子部品内のカドミウム、鉛及びクロム並びに金属内のカドミウム及び鉛) である。

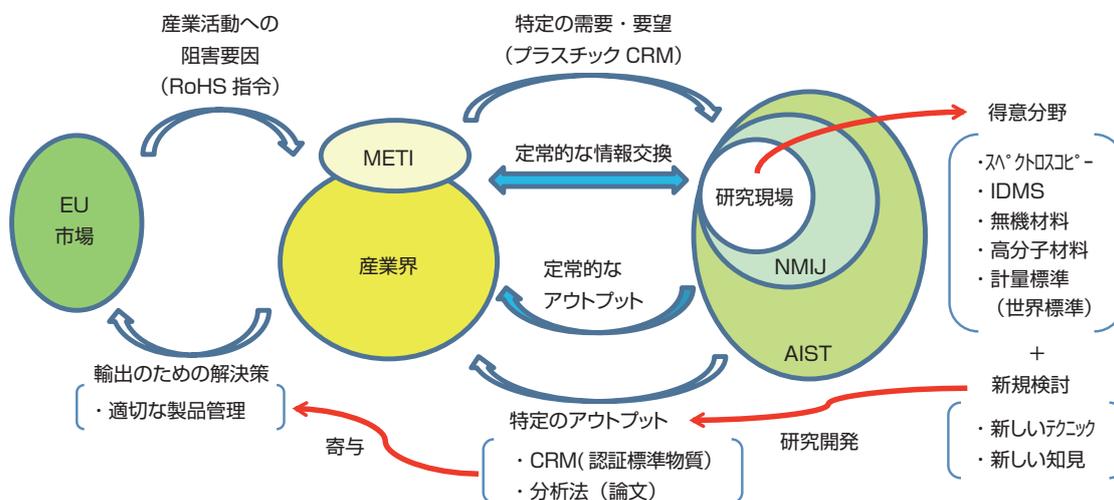


図2 研究シナリオの概要

なお、電気・電子製品に関わる製造や輸出に関わる問題を所管するMETI（経済産業省）においても問題意識は大きく、そのサポートもあり、2年間（2005年－2006年）のNEDOプロジェクト（環境配慮設計推進に係る基盤整備のための調査研究）を実施することができ、それに伴って短期間にいくつものCRMをNMIJが開発することができた。また、新しいRoHS2の動きに対してもMETIは工業会との合同勉強会を開く等の積極的な動きが見られる。

## 2.2 なぜプラスチックであったか

先に述べた通り、RoHS指令の対象物質は、Cd、Hg、Pb、Cr(VI)、PBB、PBDEであり、規制値は、Cdが100 mg/kg、残りが1000 mg/kgであるが、プラスチック中のこれらの物質の分析に多くの関心が寄せられて、プラスチックをマトリックスとするCRMが求められた。特にプラスチックCRMが求められた背景としては、電気・電子機器中にはプラスチック部品が多く使われていること、歴史的に着色や難燃化の目的で規制対象物質がプラスチックに意図的に混入されてきたことがあること、現在では意図的な混入はほとんどないとしてもリサイクル過程での古いプラスチックの混入が考えられること、プラスチックをマトリックスとするCRMがほとんどなかった実情を挙げることができる。

また、市場のグローバル化、ボーダレス化に伴って、化学標準においてもトレーサビリティ要求が高まってきており、トレーサビリティを要求される場面では、試験所等における分析値に対して国際相互承認できる分析証明書が必須となる。したがって、メートル条約下のCIPM（国際度量衡委員会）の計量標準に関する国際相互承認協定（CIPM MRA）に対応できるトレーサビリティのとれたCRMの供給が重要である。開発した標準物質は、広範に使われているプラスチック種であるABS（アクリロニトリル-ブタジエン-スチレン）樹脂、PP（ポリプロピレン）樹脂、PVC（ポリ塩化ビニル）樹脂、PS（ポリスチレン）樹脂であるが、電気・電子機器中で使われているプラスチックのほとんどがこれらの樹脂のいずれかである。

重金属分析用CRMの基材としては、電気・電子機器での使用量の多いPE樹脂またはABS樹脂を考えましたが、曲がりなりにも存在しているBCRの標準物質がPE樹脂製であったので、最初のCRMとしてはABS樹脂を選択した。その後、PP樹脂、PVC樹脂のCRMも作製した<sup>[8]</sup>。臭素系難燃剤が主に使用されていたのは、テレビの躯体等であり、基材はPS系のプラスチック〔ABS樹脂、HIPS（ハイインパクトポリスチレン）樹脂、PS樹脂〕が多かったので、臭素系としてはこれらの中から選ぶこととした。PS系の素材のうち最初に何を選択するかに関しては、分析時の

使いやすさを一番に考えた。重金属は元素としての分析であるので試料を全分解することができるが、臭素系難燃剤は分子としての分析となるので全分解は適用できず、適切な抽出法が必要であった。ABS樹脂、HIPS樹脂は溶媒に溶解させた際に不溶成分が生じることが知られていたため、ともかく最初は、均一溶液となるPS樹脂を選択した。その後PVC樹脂も作製した。

## 2.3 国際比較からCMC登録へのシナリオ

NMIJとしては、プラスチックのインパクトが大きいので、これに的を絞って、できるだけ速やかにCRMの開発・供給を目指して動き出した<sup>[9][10]</sup>。同時に、開発したCRMがCIPM MRAに対応した計量標準となり、それらを用いた分析結果が海外においても認められる必要があった。CRMのCIPM MRAへの対応は、具体的には、製造におけるマネジメントシステム（ISO/IEC 17025やISOガイド34のような規格やガイドに基づく運営体制）を構築し、その技術能力がpeer reviewと呼ばれる海外の複数の専門家による審査で認められ、さらに国際比較（4.3節で後述）の証拠も存在してCMC（校正・測定能力）の一部であるCRM作成能力を、KCWG〔基幹比較とCMC登録に関するCCQMのWG（ワーキンググループ）の一つ〕へ申請し、その後の審査を経てBIPM（国際度量衡局）のKCDB（基幹比較データベース）<sup>[11]</sup>に掲載されるようにすることである。CRMの開発を開始するとともに、開発に伴って、CMC登録も意識した活動を行った。詳細は後述する。

## 2.4 標準物質の素材（マトリックス）、分析対象成分、濃度、形状の決定の過程

一般に重金属と臭素系難燃剤は分析法が異なるので、別々のCRMとすることとした。ただし、重金属分析用の方には、将来の可能性を残すために、NMIJ CRM 8112-a以降の重金属分析用の第2シリーズからは臭素系難燃剤も含めることとした。臭素系難燃剤は化合物としての規制であるが、簡便に全臭素を量り、それが十分に低値であれば問題はないことを確認できる。化合物として1000 mg/kgの場合の最小のBr量は規制対象の中ではモノプロモジフェニルエーテルの場合であるので（詳細は後述）、それを考慮して添加化合物をDBDE（デカプロモジフェニルエーテル；BDE-209とも表す）とするとともに添加量を決めた。CRMに添加する重金属化合物については色々な可能性があったが、プラスチックと均質に混ぜるためには微粉末が望ましいと考え、入手可能なものを探した。また、出来上がったCRMの取り扱い上の簡便さを考え、想定製の製剤としては毒物及び劇物取締法の対象とならないクロム酸鉛（ $\text{PbCrO}_4$ ）と酸化カドミウム（ $\text{CdO}$ ）を選んだ〔重金属分析用の第2シリーズからはアセチルアセトナトクロム（III）も用いた〕。

なお、同様の観点で重金属分析用の第2シリーズから加えたHgは硫化水銀(II) (HgS)を選んだ。

濃度は規制値の前後のもの（高濃度と呼ぶ）およびそれと比べて1/10程度と低い濃度のもの（低濃度と呼ぶ）の2種類とした。重金属分析用の第1シリーズではCdを100 mg/kg強、Pbを1000 mg/kg強としたためCr(VI)は約250 mg/kg（低濃度側はその1/10）となった。規制の適否の判定ということでは、CRM中の濃度は規制値を下回っていた方が判定しやすいということで、重金属分析用の第2シリーズ以降は下回るように設計した。

標準物質中に含まれる臭素系難燃剤の濃度に関しては、閾値を念頭に置いたときにどのようにするのがよいかを検討し、以下のようなこととした。規制対象のPBB、PBDEのうち、最もBr含有率（質量分率）の低いのはモノプロモビフェニルエーテル（分子量249.1）で32%である。したがって、非破壊の蛍光X線(XRF)分析法によるBr測定を用いて簡易スクリーニングを行う場合には、それだけがBr化合物として含まれていることを仮定して判断すれば、PBB、PBDEとして1000 mg/kgの規制を確実に守ることができる。臭素系難燃剤としてDBDEを用いるならば、Br含有率（質量分率）32%に相当するのはDBDE 385 mg/kgの場合である。DBDEのみをBr化合物として添加しているNMIJ CRMでは、これよりも幾分低い濃度の設計とした。すなわち、DBDEの認証値317 mg/kgのNMIJ CRM 8108-a(ポリスチレン)、その後継ロットでDBDEの認証値312 mg/kgのNMIJ CRM 8108-b(ポリスチレン)、DBDEの認証値333 mg/kgのNMIJ CRM 8109-a(ポリ塩化ビニル)を開発した。なお、添加

する臭素系難燃剤としてDBDEを選んだのは、DBDEの純品を入手しやすく、CRMの認証値を正確に決定する上で有利なためである。さらに、DBDEの認証値886 mg/kgのNMIJ CRM 8110-a(ポリスチレン、高濃度)も開発した。これは検量線を引く場合の直線性の検証等に用いることができる。

形状は、湿式分析を前提とするペレット状(0.01 g ~ 0.03 g程度の小さい棒あるいは丸い粒)のほか、XRF分析法による非破壊分析の要望も強かったのでディスク状(直径3 cm、厚さ2 mm)との2種類とした(臭素系難燃剤分析用はディスク状のみ)。ディスク状の直径は一般的なXRF分析装置の試料ホルダーの大きさである。プラスチックの場合、XRF分析法による分析結果には厚さへの依存性があるので、分析したい試料の厚みが様々であることを考え、薄めの2 mmとした上で、必要であれば複数枚を重ねて使ってもらうこととした<sup>[12]</sup>。製造方法としては、混練および射出成型(NMIJ CRM 8105-aと8106-aの第1シリーズではホットプレス法)を採用した(図3)。

## 2.5 協力機関と製造方法

候補標準物質の作製のために候補標準物質の作製に協力してもらえる協力機関が必要であった。まず、2003年12月に有限会社高分子技研に予備的検討を依頼した。実際に現場に向いて綿密な打ち合わせを行った後、混練にも立ち会って、細かいやりとりを行いながら実施した。その後、重金属分析用の第2シリーズ(NMIJ CRM 8102-a、8103-a、8105-a、8106-a)からは、製造ロットを大きくする必要等があったために別の協力機関を模索し、2005年9月に(財)化学物質評価研究機構とともに予備混練を実

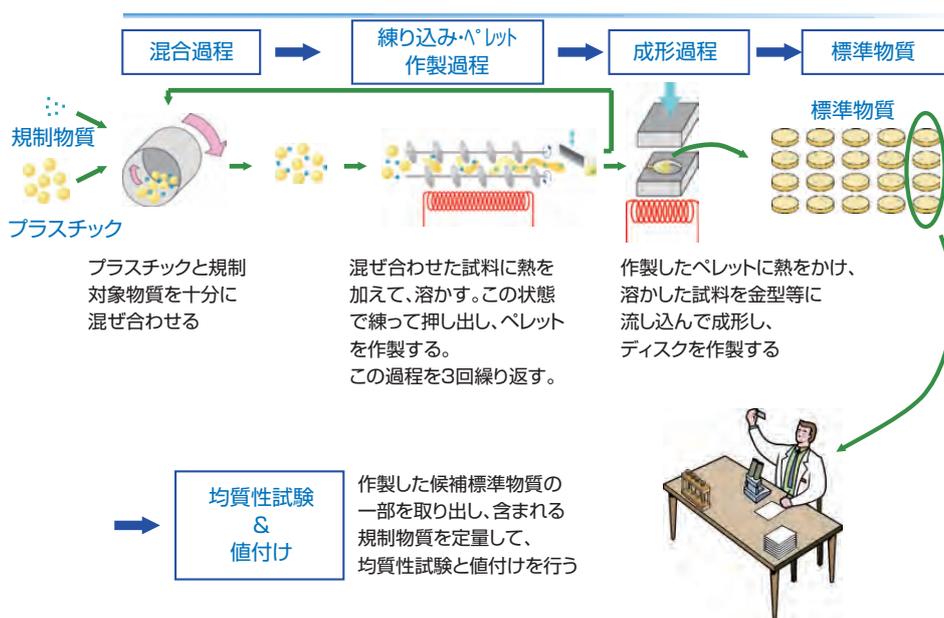


図3 プラスチック標準物質の製造プロセス (例)

表1 適用を試みた酸とマイクロ波酸分解過程での実績<sup>[13]</sup>

分解に用いた酸（括弧内は量を示す）	分解達成度	コメント
95 % H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> (4 mL)	×	高粘性のブランク溶液となってしまった
95 % H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> (4 mL) + 70 % HNO <sub>3</sub> (4 mL)	◎	
95 % H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> (4 mL) + 60 % HNO <sub>3</sub> (4 mL)	◎	
60 % HNO <sub>3</sub> (8 mL)	×	
60 % HNO <sub>3</sub> (5 mL) + 30 % H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> (3 mL)	×	
60 % HNO <sub>3</sub> (5 mL) + 60 % HClO <sub>4</sub> (3 mL)	△	完全分解を達成するためには3回のマイクロ波加熱過程と2回のマイクロ波乾燥過程が必要であった
60 % HNO <sub>3</sub> (5 mL) + 60 % HClO <sub>4</sub> (2 mL) + 48 % HF (1 mL)	△	
60 % HNO <sub>3</sub> (5 mL) + 30 % H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> (2 mL) + 48 % HF (1 mL)	×	
70 % HNO <sub>3</sub> (8 mL)	○	完全分解を達成するためには、一度に使用する分解容器は通常の10から5へ減らさねばならなかった

試料：0.1 gのABS樹脂ペレットCRMs； 分解装置：ETHOS PLUS and ETHOS 1, Milestone。

◎：1回のマイクロ波加熱過程で完全分解が達成された。

○：1回のマイクロ波加熱過程で完全分解が達成された（ただし一度に使用できる分解容器数が限られる）。

△：マイクロ波加熱過程とマイクロ波乾燥過程の両方を用いることで完全分解が達成された。

×：1回のマイクロ波加熱過程では完全分解が達成されなかった。

施した。やはり毎回現場での立ち会いを行い、均質性を最大限に実現すべく、作業者とのコミュニケーションを図った。

製造方法そのものは普遍的なものであるが、均質性を確実にするために、3回の混練とした。3回の混練で均質性が十分であることを検証するための予備混練も行った。混練機や周囲からの汚染があって不均質になっては困るので、混練機の清掃にも通常の混練では行われない程度まで注意を払った。

具体的には、重金属分析用については以下のとおりである。市販の原料樹脂ペレットと粉末状の添加化合物（酸化カドミウム、クロム酸鉛、アセチルアセトナトクロム(III)、硫化水銀(II)、DBDE等）を混合し、混練押出機で混合物をペレット化した。ペレット全体を攪拌・混合し、改めて混練押出機でペレット化した。この再ペレット化の過程をもう一度繰り返して、高濃度側の候補標準物質を製造した。このペレットに対して市販の原料樹脂ペレットを改めて混合し、混練押出機で攪拌・混合・再ペレット化の過程を三度繰り返して、低濃度側の候補標準物質を製造した。なお、これらの候補標準物質を原料として、ホットプレス法または射出成型法によってディスク状の候補標準物質を製造した。PVC樹脂の場合は、市販のPVCレジンに可塑剤DINP（フタル酸ジイソニル）と安定剤等を加えて作製したベースレジンに、粉末状の酸化カドミウム、クロム酸鉛、アセチルアセトナトクロム(III)、硫化水銀(II)を混合し、混練押出機で混合物をペレット化した。このペレットに対して攪拌・混合・再ペレット化の過程をさらに二度

繰り返した。臭素系難燃剤分析用については、重金属分析用（高濃度側）と同様にペレット化したものを用いて、射出成型法によってディスク状の候補標準物質を製造した。

### 3 分析法の開発

迅速なCRMの開発が求められていたが、製造に続いて分析が重要であった。最低限必要な予算とそれまで培ってきた技術的背景は有していたものの、それだけで直ちに分析できるというものではなかった。特に分解法の検討が重要で、個別の試料で事情が異なるので、さまざまな試行錯誤を行った（表1）<sup>[13]</sup>。また、CRM化のためには、複数の分解法、定量法を使わなければならない、最良の方法が得られていても、それ以外の方法の開発や信頼性を高める努力が必要であった。なお、クロムについては六価クロムの規制であるが、プラスチック中の六価クロムを正確に分析する手法が存在せず、その確立も困難であると考えられたので、総クロムを定量することを想定した。総クロムの濃度が1000 mg/kg以下であれば、六価クロムの濃度は当然それ以下である。

#### 3.1 均質性の評価方法

均質性は標準物質にとっては極めて重要であり、その評価方法は候補標準物質の作製段階から考慮した。混練を行った後に瓶詰めする際には、瓶詰順を記録し、均質性評価のための分析を行う瓶はすべての瓶から層別ランダムサンプリングによって選択した。ユーザーが購入した1瓶から1回だけサンプリングすることを想定した瓶内、瓶間(ディ

表2 NMIJ CRM 8103-a（高濃度）のCrの均質性試験の測定例（単位は mg/kg）\*1

瓶	1巡目		瓶	2巡目	
	Cr-52 からの濃度	Cr-53 からの濃度		Cr-52 からの濃度	Cr-53 からの濃度
H001-1	273.18	272.06	H001-2	274.95	274.67
H027-1	272.65	272.22	H054-2	273.59	273.34
H054-1	272.89	271.62	H108-2	274.89	273.91
H081-1	273.33	272.87	H162-2	274.69	274.34
H108-1	273.07	271.53	H027-2	273.42	272.92
H135-1	271.91	271.50	H081-2	273.13	272.93
H162-1	272.29	271.96	H135-2	274.41	272.67
H189-1	274.62	273.12	H189-2	275.09	273.05
H216-1	273.29	273.82	H216-2	273.76	273.26
H270-1	272.54	273.26	H243-2	274.08	272.11
H243-1	272.42	273.37	H270-2	273.92	272.82
H275-1	273.91	273.04	H275-2	274.54	273.28
平均値	273.01	272.53	平均値	274.21	273.28
実験標準偏差	0.74	0.81	実験標準偏差	0.65	0.72

\*1 検量線は標準液を用いたものであり、試料のマトリックス効果のために、表の値は認証値とは異なる値になっている

スクにあつてはディスク面内、ディスク間）の均質性評価を試みた。なお、均質性評価のための分析においては、定量値である必要はなく、迅速に試料間の比較を行うことを優先し、濃度に比例する値であれば十分であると考えた。

NMIJ CRM 8103-a（高濃度）のCrを例として、均質性評価法を以下に示した。評価のためには、瓶詰め順に番号付けした試料からおよそ25番ごとに12個の瓶を選んだ。均質性評価のための測定法は次のとおりである。12瓶から各0.10 gを1回ずつサンプリングし、確立した方法にしたがって試料分解した後ICP-MSで定量した。測定はクロムの2同位体（Cr-52とCr-53）について行った。サンプリングからの操作を2巡繰り返して行った。なお、均質性をより正確に反映させるために、測定においては絶対的な値は問わないこととした。

測定結果を表2に示す。1巡目のCr-52の12個の測定値の分散(0.74<sup>2</sup>)は、瓶間の分散の他、測定誤差の分散と瓶内の分散を合わせたものになっていると考えることができる(繰り返しのない測定)。認証値としてはある1瓶から1回サンプリングしたときの値を表示するので、ここから得られる標準偏差が均質性を表すと考えた。なお、2巡および2同位体の四つの分散の平均をもとに均質性を求め、より適切な値となるようにした。均質性に関する相対標準不確かさは0.27%であり、均質性に問題がないことを確認することができた。

ディスクの均質性評価については<sup>[14]</sup>、例えば、NMIJ CRM 8115-a（低濃度）の場合には、作製したすべてのディスクから作製順におよそ均等間隔で16枚を選び、XRF分

析法を用いてCd、Cr、Hg、Pbの測定を行い、各元素に対応する強度のばらつきから均質性に起因する不確かさを求めた。また、XRF分析法を用いてディスク面内のPbの均質性の評価を行い、各元素のディスク間の均質性に起因する不確かさに加味した。これらは最終的にはCRMの認証値の不確かさに含まれている。

### 3.2 分解法の検討と定量法の開発・評価

CRMの値付けのためには、一次標準測定法の要件を満たすとして認められている方法[本件に適用可能であるのは事実上IDMS(同位体希釈質量分析)法のみ]とさらに別の一つ以上の十分に吟味した方法の組み合わせを用いることとした。NMIJ CRMとしては、信頼性を確保するために一般的に採用している考え方である。IDMS法はいつでも適用できるわけではないが、可能な限りは欠くことのできないものである。

具体的には、重金属系について採用した方法は以下のとおりである。いずれの種類のパレット、ディスクの場合においても、硫酸・硝酸マイクロ波分解を行った上での同位体希釈ICP-MSによる定量を採用した。パレットの場合においては、その他にマイクロ波分解(硫酸・硝酸を用いる方法、硝酸・過塩素酸を用いる方法、70%硝酸を用いる方法の3通りのいずれか)、および開放系乾式灰化分解(硝酸・過酸化水素を用いる方法、硝酸を用いる方法の2通りのいずれか)を利用する二つの方法も採用した。それらの際の機器分析法としては、原理の異なるICP-MSおよびICP-OESを上記の分解法のいずれかと組み合わせて用いた。結果として、相互に独立の複数の方法を用いて定量値

を求め、信頼性の向上に努めた。これらの方法の決定の前提としては、先に示した分解法<sup>[13]</sup>を検討したほか、分解液をICP-MSによって測定する際の、マトリックスとしての酸の影響などを検討した<sup>[15]</sup>。

一方、臭素系難燃剤の分子としての定量においては、重金属の元素としての定量とは異なり、元の分子が壊れないように、アナライト（分析対象成分）とマトリックスの両者の化学的性質を見極めて適切な分解法、分離法、定量法を考えなければならない<sup>[16]</sup>。

臭素系難燃剤については、溶媒としてはPSを溶解させるテトラヒドロフラン（THF）、トルエン、クロロホルム等を検討候補とした。これらの溶媒に対するDBDEの溶解性を検討した結果、すべて1 mg/mL以上溶解することが判明した。このうちTHFは安定剤を添加していない溶媒を使用すると、THFの微量の分解生成物によってDBDEが分解する可能性があった（古い溶媒ではガスクロマトグラフ分析中に実際に分解が生じた）ため、トルエンとクロロホルムを使用してPSを溶解させることとした。

臭素系難燃剤の定量法は同位体希釈法と標準添加法による値付けとした。このうち同位体希釈法は前述のとおり原理的に可能である限りは欠かさずに行うべき手法である。標準添加法は、溶解した標準物質溶液にPSの貧溶媒（対象となる溶質の溶解度が低い溶媒のことで、メタノールを選択）を加えてPSを析出させ、上澄み液部分を採取した後、濃縮してDBDEの含有量を測定した。この際、回収率の問題が生じるが、標準物質にいくつかの異なる量のDBDEを添加した上で前処理を行い、この複数の溶液を用いて標準添加法によって含有量を求めた。この方法は実施に手間はかかるが、回収率が多少低くても問題とならない値付け法である。

なお、臭素系難燃剤としてのPBDE、PBBにはたくさんの異性体があるので、すべての種類の個別の化合物を加えて個別の特性値を定めるのは困難である。質量あたりの臭素量が多いと難燃剤としての効果が大きく、そういうものが多用されてきたので、CRMの添加物として単一分子当たりの臭素量が最大のDBDEを選ぶこととした。DBDEの定量時の不純物の影響<sup>[17]</sup>などを調べた。

## 4 計量計測トレーサビリティと認証値の信頼性など

### 4.1 計量計測トレーサビリティの必要性

RoHS指令に対応する試験に必要な標準物質の欠如が叫ばれたので、いくつかの民間企業や日本分析化学会においてもある種の標準物質が作成され、NMIJで開発の標準物質と並行して世の中に供給され、NMIJの計測標準の役割とは別に一定の役割を果たしたという事実はまず述べ

ておかなければならない。

しかし、RoHS指令に対応する分析値が国際的に通用するためには、ISO/IEC 17025等に基づく認定を認定機関から取得している試験所によるものであることが重要になっている。ISO/IEC 17025に対応する試験所は、プラスチックCRMの開発開始時には、現在に比べれば少なかったものの存在していて、試験所認定の要件としてトレーサビリティの要求があり、それを実証あるいは検証するためにはCRMの重要性が高かった。そこで使うCRMは世界的に通用するものである必要があり、その役割をNMIJ CRMが担うことを期待されていたと言えるし、それは現在も変わっていない。

金属標準液については、トレーサビリティの確保のために、JCSS（計量法に基づく計量標準供給制度）の校正用標準液あるいはその一次標準としてNMIJが供給している標準液を直接用いた。臭素系難燃剤については、JCSS標準液は存在しないので、DBDEの純度をHPLC法を用いて独自に決めた。

NMIJにおいては、ISO/IEC 17025およびISOガイド34に基づくマネジメントシステムを構築しており、NITE/IA Japan（独立行政法人製品評価技術基盤機構認定センター）からASNITE認定を受けている。認定範囲の中へ順次開発したCRMの内容を加えてきている。

### 4.2 国内の共同実験

19の試験所および分析関係機関（Crについては18機関）の参加協力を得て、重金属含有ABS樹脂標準物質（高濃度[NMIJ CRM 8103-a]と低濃度[NMIJ CRM 8102-a]の2水準）のCd、Cr、Pbの共同分析を実施した（2004年12月～2005年2月）。各中央値（メジアン）および中央値からのばらつきから算出した分布全体の標準偏差の推定値を参考情報としてNMIJ CRMの認証書にも記載した。これらの値は認証値とともに表3に示した。試料分解に用いられた酸は、硝酸、硝酸・過酸化水素、硝酸・硫酸、硝酸・過塩素酸、硝酸・硫酸・過酸化水素、硝酸・ふっ化水素酸・ほう酸、硝酸・硫酸・過塩素酸・塩酸、発煙硝酸・硝酸・過塩素酸、硫酸、硫酸／過酸化水素、硫酸・硝酸／過酸化水素とさまざまであり、他に乾式灰化／アルカリ融解／塩酸抽出を用いた機関もあった。測定法は、ICP-OES、ICP-MS、フレイム原子吸光法、電気加熱原子吸光法であった。機関によってまちまちの種類の酸や測定法を用いて得られた値がどのような分布をもっているのかは、当該標準物質の使用者にとっては分析の現実を知ることになるので有用な情報であると考えられた。また、参加した試験所および分析関係機関にとっては、いわば技能試験のような役割を果たしたと考えられる。我々はもちろん自

表 3-a NMIJ CRM 8102-a 重金属分析用 ABS 樹脂ペレット (Cd, Cr, Pb 低濃度) の場合

	認証値*1 質量分率 (mg/kg)	拡張不確かさ*1 質量分率 (mg/kg)
Cd	10.77	0.20
Cr	27.87	0.35
Pb	108.9	0.90

\*1 NMIJ 単独の値付け

	共同分析の中央値 質量分率 (mg/kg)	分布全体の標準偏差の推定値 質量分率 (mg/kg)
Cd	10.31	0.53
Cr	26.64	1.64
Pb	106.6	5.5

表 3-b NMIJ CRM 8103-a 重金属分析用 ABS 樹脂ペレット (Cd, Cr, Pb 高濃度) の場合

	認証値*1 質量分率 (mg/kg)	拡張不確かさ*1 質量分率 (mg/kg)
Cd	106.9	1.40
Cr	269.5	4.5
Pb	1084	9.6

\*1 NMIJ 単独の値付け

	共同分析の中央値 質量分率 (mg/kg)	分布全体の標準偏差の推定値 質量分率 (mg/kg)
Cd	105.4	4.4
Cr	267.4	13.0
Pb	1080	31

信を持って値付けを行っていたし、複数の方法での結果の一致も確認していたが、万一現場の分析値と明らかな食い違いがあれば無用の混乱を引き起こすことにもなるので、我々自身にとっても慎重を期すという形となった。

### 4.3 メートル条約下の物質質量諮問委員会への国際比較の提案

#### 4.3.1 日中韓標準物質ネットワーク会議での国際比較

日中韓標準物質ネットワーク会議 (ACRM 会議) が日中韓の 3 つの NMI (計量標準研究所) の間で構成されており、その中に技術分野毎の WG が組織されている。WG の一つである WG3 は RoHS 指令に特化した議論を対象としており、現在著者の一人の日置がコンビーナーを務めている。ここでは各国で開発の CRM の候補標準物質の段階で試料を交換し、数件の比較を行ってきた。重金属分析用では NMIJ の ABS 樹脂候補標準物質 2 種類 (後の NMIJ CRM 8112-a と NMIJ CRM 8113-a) (2006 年)、中国 NIM (中国計量科学研究院) の PP 樹脂候補標準物質 2 種類 (2007 年)、韓国 KRISS (韓国標準科学研究院) の PP 樹脂候補標準物質 2 種類 (2007 年) の比較測定が行われた。臭素系難燃剤分析用では、トルエン溶液中の DBDE 濃度の比較 (2008 年)、PE 中の DBDE 濃度の比較 (2009 年)、HIPS 中の DBDE 濃度の比較 (2010 年) と

いう 3 つの比較測定が企画された。これらの比較試験を通じて、お互いの技能を確認するとともに、時には技能向上に役立てることができた。

#### 4.3.2 メートル条約下の物質質量諮問委員会の国際比較

メートル条約下では計量分野毎に技術諮問委員会が組織されており、化学計量分野においては CCQM である。CCQM に設置されている WG として IAWG (無機分析ワーキンググループ) や OAWG (有機分析ワーキンググループ) がある。ACRM 会議での比較や議論を受けて世界レベルの比較を行おうという機運が高まり、日本 (NMIJ)、中国 (NIM)、韓国 (KRISS) の三ヶ国共同で CCQM/IAWG のパイロット研究を提案し採択された。この CCQM-P106 (PP 中の Cd, Cr, Hg および Pb の定量) は、NMIJ からの積極的な働きかけも功を奏して、結果的に IAWG におけるベンチマークの位置付けを与えられ、参加国の同意の下で事実上基幹比較と同じように CMC 登録の証拠として使えることになった。結果は文献 18 に公表されている。結果の一例を図 4 に示した。

臭素系難燃剤分析用については、CMC 登録までは目指していないが、CCQM/OAWG の CCQM-P114 (PP 中のいくつかの PBDE および PBB の定量) において同等性が示されている<sup>[19]</sup>。結果を図 5 に示した [NMIJ は Lab. No. 4, DBDE (BDE-209) のみ参加]。

### 4.4 CIPM MRAに基づくpeer reviewとBIPMのデータベースへのCMC登録

① ISO に基づくマネジメントシステムの下で CRM を開発し、② peer review を受け、③ CCQM の国際比較 CCQM-P106 (一般に基幹比較が必要であるが、今回の

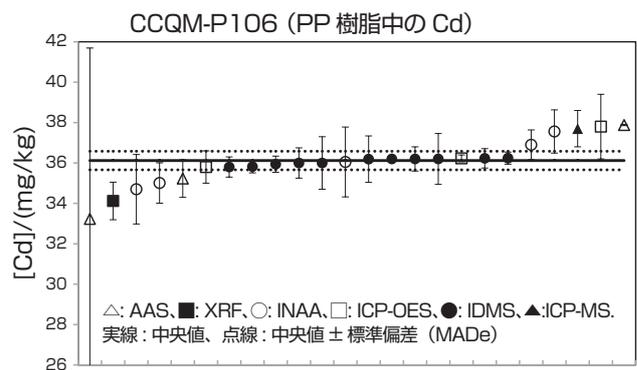


図 4 PP 樹脂中の 4 金属の定量に関する国際比較 CCQM-P106 の Cd の結果

横軸は参加機関別を表し、日本の NMIJ は右から 9 番目である。AAS: 原子吸光分析法、XRF: 蛍光 X 線分析法、INAA: 機器中性子放射化分析法、ICP-OES: 誘導結合プラズマ発光分光分析法、IDMS: 同位体希釈質量分析法、ICP-MS: 誘導結合プラズマ質量分析法。各点のバーの長さの半分は拡張不確かさ (包含係数はほとんどの結果について 2)<sup>[18]</sup>。

件では実質的に基幹比較と同じ扱いとなったパイロット研究)に参加して良好な結果を示した。これらの①～③の3要件を満たし、BIPMのKCDBへCMC申請を行い、KCWGの審査を経て、プラスチック中の重金属分析のCMCが登録された。KCDBにCMC(図6)が掲載されていることがCIPM MRA上の一つの到達点であり、ここに掲載の標準を介しての計量計測トレーサビリティが世界

に通用するということである。

## 5 CRMの頒布とその後の展開

### 5.1 頒布状況

完成したNMIJ CRMの荷姿のいくつかの例を図7に示した。重金属分析用および臭素系難燃剤分析用プラスチック標準物質の年度毎の頒布数を図8に示した。重金属分

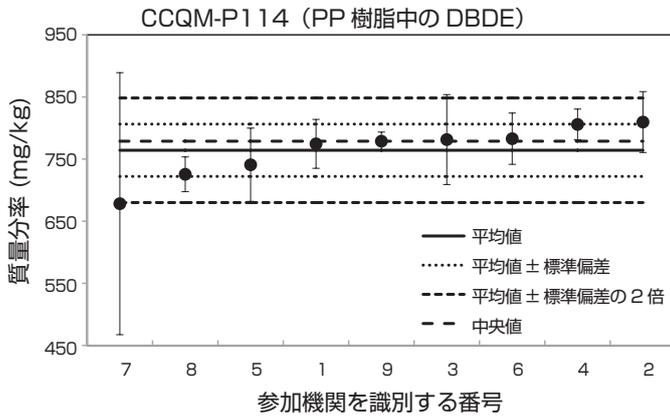


図5 臭素系難燃剤DBDEの定量に関する国際比較CCQM-P114の結果(NMIJの機関番号は4)各点のバーの長さの半分は拡張不確かさ(包含係数はほとんどの結果について2)<sup>[19]</sup>。

### 校正測定能力(CMC)

物質質、先進材料、日本、NMIJ(産総研計量標準総合センター)

拡張不確かさは、最小の量の値に対する不確かさから最大の量の値に対する不確かさに渡る範囲として示されている。

NMI Service Identifier	Measurement Service Sub-Category	Matrix	Measurand		Dissemination Range of Measurement Capability			Range of Expanded Uncertainties as Disseminated					
			Analyte or Component	Quantity	From	To	Unit	From	to	Unit	Coverage factor	Level of confidence	Is the expanded uncertainty a relative one?
8101-1	Polymers and plastics	ABS resin	cadmium	Mass fraction	1	10000	mg/kg	4	0.5	%	2	95 %	Yes
8101-2	Polymers and plastics	ABS resin	chromium	Mass fraction	1	10000	mg/kg	4	0.5	%	2	95 %	Yes
8101-3	Polymers and plastics	ABS resin	mercury	Mass fraction	1	10000	mg/kg	4	0.5	%	2	95 %	Yes
8101-4	Polymers and plastics	ABS resin	lead	Mass fraction	1	10000	mg/kg	4	0.5	%	2	95 %	Yes

Range of Certified Values in Reference Materials			Range of Expanded Uncertainties for Certified Values						Mechanism(s) for Measurement Service Delivery	Comments
From	To	Unit	From	To	Unit	Coverage factor	Level of confidence	Is the expanded uncertainty a relative one?		
1	10000	mg/kg	4	0.5	%	2	95 %	Yes	NMIJ CRM 8102-a, 8103-a, 8105-a, 8106-a, 8112-a, 8113-a, 8115-a, 8116-a	Pellet and disk forms Approved on 19 June 2014
1	10000	mg/kg	4	0.5	%	2	95 %	Yes	NMIJ CRM 8102-a, 8103-a, 8105-a, 8106-a, 8112-a, 8113-a, 8115-a, 8116-a	Pellet and disk forms Approved on 19 June 2014
1	10000	mg/kg	4	0.5	%	2	95 %	Yes	NMIJ CRM 8112-a, 8113-a, 8115-a, 8116-a	Pellet and disk forms Approved on 19 June 2014
1	10000	mg/kg	4	0.5	%	2	95 %	Yes	NMIJ CRM 8102-a, 8103-a, 8105-a, 8106-a, 8112-a, 8113-a, 8115-a, 8116-a	Pellet and disk forms Approved on 19 June 2014

国際度量衡局(BIPM)の基幹比較データベース(KCDB)(2014年7月)<sup>[11]</sup>

図6 KCDBへ掲載されたCMC登録の例(重金属分析用)

析用および臭素系難燃剤分析用プラスチック標準物質の年度毎の頒布数は、2013年度までの累計で1102ユニットおよび600ユニットである。一般に、RoHS指令対応のプラスチックCRMのようなCRMは日々の試験で使うようなものではないので、各物質の頒布数は購入機関数にかなり近いと予想される。国内のみならず、海外からの需要も大きく、重金属分析用では平均で18%、臭素系難燃剤分析用では平均で12%が海外への供給である。

### 5.2 安定性モニタリングとそれに基づく有効期限の延長

NMIJのプラスチックCRMは開発時の安定性試験<sup>[20]</sup>に続いて、頒布開始後の安定性モニタリングを行っている。CRMには一般に認証書の有効期限が設定されているが、安定性モニタリングの結果に基づいて、有効期限の延長を行っており、図9に示したように多くのものが延長されてきた。ところが、実は残念な例が一例あるので報告しなければならない。

NMIJ CRM 8113-aとNMIJ CRM 8116-a(4金属、高濃度、ABS)の安定性モニタリングにおいて、拡張不確

かさを超える濃度変動が観測された。はじめは測定ミスを疑ったが、最終的に判明したのは、基材のABSの中の酸素の増加ということで、さかのぼって特性値を変更することとなり、ユーザーの皆さまには迷惑をお掛けすることになってしまった。なお、乾燥条件については、開発時に十分に検討されており、確立されていた。特性値の変化は、各々対応する低濃度品NMIJ CRM 8112-aとNMIJ CRM 8115-aでは起きていなかったし、他のプラスチックCRMでも見られず、Hg含有の高濃度側のCRMについて見られた現象である。何らかの形で酸素が基材に取り込まれ、基材の質量が増加することによって重金属の濃度の低下が起きたと結論することができた。この低下は現在では概ね収束していると判断している。詳細は別途発表の予定である。

### 5.3 今後の関連CRMへの展開

有害物質規制に対応する標準物質開発の分野において、この論文で示したプラスチック以外への展開としては、鉛フリーはんだ(チップ)、フタル酸エステル含有プラスチック



図7 RoHS指令対応のNMIJ CRMの例

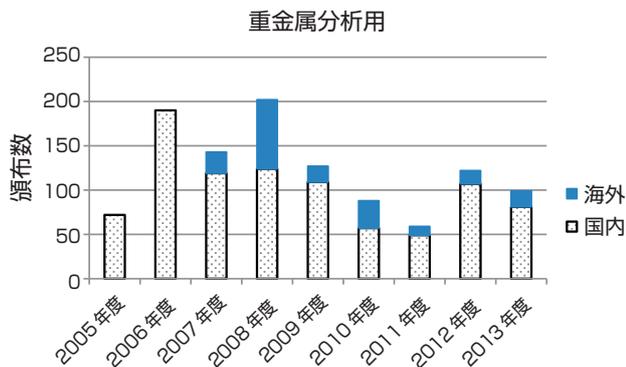


図8-a 重金属分析用の頒布総数の年次推移

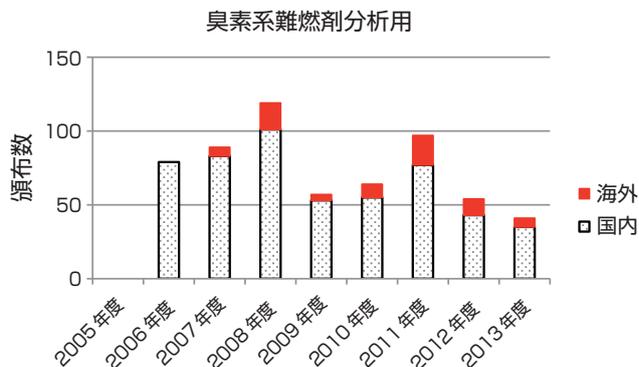


図8-b 臭素系難燃剤分析用の頒布総数の年次推移

ク、ビスフェノール A 含有プラスチック、臭素分析用プラスチック (PP) の CRM の開発がある。また、ガラスについては現在検討中である。

RoHS 指令においては規制対象物質の追加に関しては言及がなかったが、新 RoHS 指令においては、その可能性がある。今後、臭素系難燃剤では PS 中の DBDE、ヘキサプロモシクロドデカン (HBCDD: 新 RoHS 指令の対象物質の追加候補)、テトラプロモビスフェノール A (TBBPA) を各 100 ppm 程度加えた標準物質 (1 種類) の作製を予定している。他にフタル酸エステル含有 PVC、ビスフェノール A 含有ポリカーボネートを作製中である。

RoHS 指令対応のプラスチック標準物質の開発に関しては、産業界等からの強い要望があって開始したものであるが、標準物質を含む計量標準全般のニーズに関しては、NMIJ が運営している NMIJ 計測クラブや NMIJ セミナーをはじめとするさまざまなチャンネルからの情報を日常的に得ている。一方、系統的な調査も行っており、直近の大規模なニーズ調査としては、2013 年前半に METI 知的基盤課 (当時) の主導によって行われ、NMIJ も中心的に参画したものがあつた。調査結果とそれに基づく標準の整備計画は、METI のホームページに「計量標準に関する新たな整備計画及び利用促進方策」<sup>[21]</sup> として掲載されている。NMIJ としては、限られた人的・物的資源の中で対応することになるので、何に取り組むかの決定が極めて重要である。上記の調査を含めた情報の中から社会ニーズを見極

め、いち早く対応できる組織でありたいと考えている。

## 6 おわりに

NMIJ CRM に関して、比較的初期の開発動向と現時点での状況は文献 22 と 23 に詳しい。RoHS 指令への対応を受けて、今後も生じるかも知れないこういう事例に世界はどう対応して行ったら良いのだろうか。EU で起きがちな理念先行もやむを得ない側面もあるが、規制策定の議論の中で必要な CRM があればそれらも含めて議論されるべきであろう。規制作成段階に現場を知る人間が入り、規格も並行して作成するのが望ましい。日本全体としてみれば RoHS 指令には結果的に割合素早く対応できたと思われるが、RoHS 指令が産業界に相当の混乱を引き起こしたのも事実である。RoHS 指令は EU 規制であり、いわば単なる国内法のような位置付けではあるものの、世界中に大きなインパクトを与えるので、十分に世界に開かれている必要がある。なお、臭素系難燃剤についてのリスクの観点では、例えば生体蓄積性を恐れるかあるいは難燃剤不使用による火事を恐れるかといったような価値観の違いも背景にあることにも留意する必要がある。

今後色々な国からさまざまな規制が出てきたときに、計量標準研究所としてどう対処するかが問題になる。必ずしも何にでも対応できるわけではないが、極力早めに動きを察知して、産業界等の関係機関と連携して、新規開発の必要な CRM があれば早めに対処を開始するということである。

CRM No.	樹脂種	Level	Cd	Cr	Pb	Hg	DBDE	形状	04	05	06	07	08	09	10	11	12	13	14	15	16
8102-a	ABS	Low	◎	◎	◎			Pellet	■	→	→	→	→	●	→	→	→	→	●	→	→
8103-a	ABS	High	◎	◎	◎			Pellet	■	→	→	→	→	●	→	→	→	→	●	→	→
8105-a	ABS	Low	◎	◎	◎			Disk		■	→	→	→	●	→	→	→	→	●	→	→
8106-a	ABS	High	◎	◎	◎			Disk		■	→	→	→	●	→	→	→	→	×		
8112-a	ABS	Low	◎	◎	◎	◎		Pellet			■	→	→	→	→	●	→	→	→	→	→
8113-a(02)	ABS	High	◎	◎	◎	○		Pellet		■	→	→	→	→	△	□	●	→	→	→	→
8115-a	ABS	Low	◎	◎	◎	◎		Disk			■	→	→	→	→	●	→	→	→	→	→
8116-a(02)	ABS	High	◎	◎	◎	○		Disk			■	→	→	→	△	□	●	→	→	→	→
8123-a	PVC	High	◎	◎	◎	◎		Pellet					■	→	→	→	→	→	●	→	→
8133-a	PP	High	◎	◎	◎	◎		Pellet				■	→	→	→	→	→	→	●	→	→
8136-a	PP	High	◎	◎	◎	◎		Disk					■	→	→	→	→	→	●	→	→
8108-a	PS						◎	Disk			■	→	→	→	×						
8108-b	PS						◎	Disk						■	→	→	→	→	→	●	→
8109-a	PVC						◎	Disk						■	→	→	→	→	●	→	→
8110-a	PS						◎	Disk					■	→	→	→	→	→	●	→	→

◎: 認証値、○: 参考値

■: 開発、●: 有効期限延長、△: 認証値変更、□: 再認証、×: 完売 (開発は西暦年度、他は西暦年)

図 9 開発年次と延長等の状況

参考文献

[1] Directive 2002/95/EC of the European Parliament and of the Council of 27 January 2003, on the restriction of the use of certain hazardous substances in electrical and electronic equipment, *Official Journal of European Union*, L 37, 19-23 (2003).

[2] Directive 2011/65/EU of the European Parliament and of the Council of 8 June 2011, on the restriction of the use of certain hazardous substances in electrical and electronic equipment, *Official Journal of European Union*, L 174, 88-110 (2011).

[3] Directive 2002/96/EC of the European Parliament and of the Council of 27 January 2003 on waste electrical and electronic equipment (WEEE), *Official Journal of European Union*, L 37, 24-38 (2003).

[4] Directive 2000/53 EC of the European Parliament and of the Council of 18 September 2000 on end-of life vehicles, *Official Journal of European Union*, L 269, 34-42 (2000).

[5] Regulation (EC) No 1907/2006 of the European Parliament and of the Council of 18 December 2006 concerning the Registration, Evaluation, Authorisation and Restriction of Chemicals (REACH), *Official Journal of European Union*, L 396, 1-849 (2006).

[6] RoHS指令対応に関するインタビュー記事, *環境新聞*, 2004年8月25日号.

[7] IEC 62321 Ed. 1.0: Electrotechnical products - Determination of levels of six regulated substances (lead, mercury, cadmium, hexavalent chromium, polybrominated biphenyls, polybrominated diphenyl ethers), (2008).

[8] M. Ohata and A. Hioki: Development of PVC and PP resin pellet certified reference materials for heavy metal analysis with respect to the RoHS directive, *Anal. Sci.*, 29 (2), 239-246 (2013).

[9] 日置昭治, 大畑昌輝: 重金属分析用ABS樹脂標準物質, *産総研TODAY*, 5 (10), 34-35 (2005).

[10] 松山重倫: 臭素系難燃剤含有ポリスチレン標準物質, *産総研TODAY*, 6 (9), 36-37 (2006).

[11] BIPMの基幹比較データベース: <http://kcdb.bipm.org/AppendixC/>, 2014年7月.

[12] 倉橋正保, 城所敏浩, 大畑昌輝, 松山重倫, 衣笠晋一, 日置昭治: 試料厚さをパラメータに残した単色X線励起FP法によるプラスチック試料中の有害元素の定量分析, *X線分析の進歩*, 40, 203-217 (2009).

[13] 大畑昌輝, 日置昭治, 倉橋正保: RoHS指令対応重金属分析用ABS樹脂ペレット認証標準物質の開発, *分析化学*, 57 (6), 417-426 (2008).

[14] 大畑昌輝, 城所敏浩, 倉橋正保, 日置昭治: 蛍光X線分析法による重金属分析用ABS樹脂ディスク認証標準物質の評価, *分析化学*, 59 (10), 903-910 (2010).

[15] M. Ohata, A. Hioki and K. Chiba: Examination on matrix-dependent mass-discrimination effect for inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS): difference between shielded ICP and unshielded ICP, *J. Anal. At. Spectrom.*, 23 (9), 1305-1310 (2008).

[16] 松山重倫, 衣笠晋一, 大谷肇: 臭素系難燃剤含有プラスチック認証標準物質の開発, *分析化学*, 60 (3), 301-305 (2011).

[17] S. Matsuyama, S. Kinugasa and H. Ohtani: Influence of impurities on determination of decabrominateddiphenyl ether in plastic materials by gas chromatography/mass spectrometry, *Inter. J. Polym. Anal. Charact.*, 17 (3), 199-207 (2012).

[18] L. Ma, L. Feng, A. Hioki, K. H. Cho, J. Vogl, A. Berger, G. Turk, S. Macleod, G. Labarraque, W. F. Tong, D. Schiel, C. Yafa, L. Valiente, L. A. Konopelko, C. Quetel,

P. Vermaercke, J. V. L. Manzano, M. Linsky, E. Cortés, S. Tangpitayakul, L. Plangsangmas, L. Bergamaschi and R. Hearn: International comparison of the determination of the mass fraction of cadmium, chromium, mercury and lead in polypropylene: the Comité Consultatif pour la Quantité de Matière pilot study CCQM-P106, *Accredit. Qual. Assur.*, 15 (1), 39-44 (2010).

[19] R. Zeleny, S. Voorspoels, M. Ricci, R. Becker, C. Jung, W. Bremser, M. Sittidech, N. Panyawathanakit, W. F. Wong, S. M. Choi, K. C. Lo, W. Y. Yeung, D. H. Kim, J. Han, J. Ryu, S. Mingwu, W. Chao, M. M. Schantz, K. A. Lippa and S. Matsuyama: Evaluation of the state-of-the-art measurement capabilities for selected PBDEs and decaBB in plastic by the international intercomparison CCQM-P114, *Anal. Bioanal. Chem.*, 396 (4), 1501-1511 (2010).

[20] M. Ohata, T. Kidokoro and A. Hioki: Evaluation on the stability of Hg in ABS disk CRM during measurements by wavelength dispersive X-ray fluorescence spectrometry, *Anal. Sci.*, 28 (11), 1105-1108 (2012).

[21] 「新たな知的基盤整備計画及び具体的な利用促進に関する検討会」(平成25年7月9日開催)の資料: 経済産業省. [http://www.meti.go.jp/committee/kenkyukai/sangi/keiryo\\_hyojun/report\\_01.html](http://www.meti.go.jp/committee/kenkyukai/sangi/keiryo_hyojun/report_01.html), 2014年7月.

[22] 日置昭治: NMIJにおけるRoHS指令対応重金属分析用プラスチック標準物質の開発, 特集「計測標準フォーラム合同講演会(2)」, *計測標準と計量管理*, 56 (2), 2-7 (2006).

[23] 大畑昌輝, 日置昭治, 三浦勉, 松山重倫, 衣笠晋一: 環境配慮設計のためのプラスチック認証標準物質の開発 - RoHS指令対応重金属分析用プラスチック認証標準物質の開発を例として -, *プラスチック*, 64 (7), 1-6 (2013).

執筆者略歴

日置 昭治 (ひおき あきはる)

1984年名古屋大学大学院理学研究科博士後期課程化学専攻修了。同年工業技術院化学技術研究所入所。1986年理学博士(名古屋大学)。滴定法、重量分析法、電量滴定法、原子スペクトル分析法等を用いた無機分析法に関する研究に従事。現在、産業技術総合研究所計測標準研究部門無機分析科科長(計量標準システム科科長兼務)。2009年文部科学大臣表彰。この研究においては、重金属分析用標準物質の設計・製造および特性値の決定方法ならびに国際対応で主導的役割を果たした。



大畑 昌輝 (おおはた まさき)

2000年中央大学大学院理工学研究科博士後期課程応用化学専攻修了。2000年工学博士(中央大学)。2004年産業技術総合研究所入所。誘導結合プラズマ(ICP)を用いた原子スペクトル分析法による無機分析法の高度化に関する研究に従事。現在、産業技術総合研究所計量標準総合センター計量標準管理センター計量標準計画室総括主幹(計測標準研究部門無機分析科無機標準研究室兼務、主任研究員)。2009年文部科学大臣表彰。この研究においては、重金属分析用標準物質の試料分解法および定量分析法の開発で主導的役割を果たした。



松山 重倫（まつやま しげとも）

1997年大阪大学大学院理学研究科博士後期課程中退。同年工業技術院物質工学工業技術研究所入所。高分子の分子標準物質開発、低分子化合物含有プラスチック標準物質の開発に従事。現在、産業技術総合研究所計測標準研究部門計量標準システム科計量標準基盤研究室主任研究員。2009年文部科学大臣表彰。この研究においては、臭素系難燃剤分析用標準物質の特性値の決定並びに国際比較で主導的役割を果たした。



衣笠 晋一（きぬがさ しんいち）

1985年京都大学大学院工学研究科博士後期課程高分子化学専攻修了。1987年工業技術院化学技術研究所入所。1985年工学博士(京都大学)。高分子の分子特性解析をベースに、高分子標準物質、ナノ粒子標準物質、スペクトルデータベースの高度化の研究開発に従事。現在、産業技術総合研究所計量標準管理センター計量研修センター長。2009年文部科学大臣表彰。この研究においては、臭素系難燃剤分析用標準物質の設計と開発推進で主導的役割を果たした。



## 査読者との議論

### 議論1 全般

コメント（千葉 光一：産業技術総合研究所）

プラスチック認証標準物質が必要とされた社会的な背景、ニーズを捉えてから認証標準物質の開発に至る経緯、また、そのニーズを具現化するための技術開発、そして実社会への貢献としての標準物質の頒布の状況が適切にまとめられています。産総研での開発研究が社会の中で結実するまでの経過が書かれている点で、興味深い内容です。

コメント（富樫 茂子：産業技術総合研究所）

RoHS指令への緊急な対応という産業界等からの強い要請に的確に対応し、国際的に通用する重金属と臭素系難燃剤の標準物質を開発した戦略とプロセスが記述されており、シンセシオロジー論文として適切なテーマである。

### 議論2 研究シナリオの図の追加

コメント（富樫 茂子）

2章の研究シナリオについて、それまでの研究のポテンシャルを基礎に、目的達成のためにドライブしたシナリオとして図化していただきたい。その際、他の研究開発にも参考になるように、なるべく一般化できるシナリオの枠組みを作り、その中で、本課題の具体的な戦略を記述するように工夫いただきたい。

回答（日置 昭治）

ご指摘の趣旨に従って、2章の研究シナリオを図として表現しました。

### 議論3 認証標準物質（CRM）について

質問（富樫 茂子）

NMIJでは本認証標準物質（CRM）以外にも、多くのCRMを頒布していますが、この論文のCRMと他のCRMとの共通点および異なる点は何でしょうか。

回答（日置 昭治）

認証標準物質（CRM）には大きく分けて、校正用と妥当性確認用があります。当該CRMは主に後者の目的のものとして開発されました。NMIJ CRMはISO/IEC 17025とISOガイド34に適合するマネジメントシステムに基づいて生産されており、当該CRMの作製や認証値決定のための基本的な考え方は他の妥当性確認用のNMIJ CRMと同じです。一方、当該CRMは、極めて限定的な用途（RoHS指令に対応）向けながらも、世界中で同時に生じた需要に対応して迅速に設計・開発したものであり、他のCRMにも増して時宜を得た頒布を行うことができた点は大きな特徴です。当該CRMは世界的にもベストセラーの一つになり、世界各国へ頒布されています。

# マグネシウム合金連続鍛造材の鍛造プロセス開発

## — 結晶粒微細化を利用した鍛造技術 —

齋藤 尚文<sup>1\*</sup>、岩崎 源<sup>2</sup>、坂本 満<sup>3</sup>、神原 和夫<sup>4</sup>、関口 常久<sup>4</sup>

省エネルギー・省資源等の社会的要請を背景に、広範囲の工業製品において軽量化が課題となっている。マグネシウム合金は構造用金属材料の中で最も軽量であるため、この課題解決に対する有力な候補である。マグネシウム合金部材の作製法として、寸法精度、部材強度の点で優れている鍛造技術の確立が産業界から求められている。産総研および鍛造企業は双方の技術ポテンシャルを融合してマグネシウム合金連続鍛造材の鍛造プロセス開発に取り組み、現状よりも低コストで高強度のマグネシウム鍛造部材の試作に成功した。そして、特に軽量化が求められる用途では開発プロセスが実用化できる見通しを得た。この論文では技術的成果の概要を述べるとともに、研究背景、目標設定、課題解決のための要素技術、その統合プロセスと構成等を述べる。

**キーワード:** マグネシウム合金、連続鍛造材、鍛造、動的再結晶、結晶粒微細化、ヒートシンク

## Development of forging process for magnesium alloy continuous cast bars

### – Forging process utilizing grain refinement –

Naobumi SAITO<sup>1\*</sup>, Hajime IWASAKI<sup>2</sup>, Michiru SAKAMOTO<sup>3</sup>, Kazuo KANBARA<sup>4</sup> and Tunekisa SEKIGUCHI<sup>4</sup>

Reducing resource consumption and carbon dioxide emission are recognized as urgent issues. One way of addressing these issues is to reduce product weight. Magnesium alloys are considered promising candidates because of their lightness. To manufacture products using magnesium alloys, we require forging technology that afford higher size accuracy and strength. This paper introduces the results of joint research with a company for the development of a new forging process for magnesium alloys continuous cast bars. We describe the research background, goals of the project, fundamental technologies employed to address these goals, and the integrative/synthetic process.

**Keywords:** Magnesium alloy, continuous cast bars, forging, dynamic recrystallization, grain refinement, heat sink

### 1 緒言

省エネルギー・省資源等の社会的要請を背景に、輸送機器や家電製品等広範囲の工業製品において、軽量化とリサイクル促進が課題となっている。一方、マグネシウム合金は、構造用金属材料の中で最も軽量であり、リサイクル性もある。そのため、輸送機器を初めとするさまざまな産業への応用が期待されている。しかし、現状ではアルミニウム合金に比べるとその普及は進んでいない。これは、マグネシウム合金製部材が高コストになることが原因のひとつである。表1にこの研究の対象である鍛造部品に関して、マグネシウム合金とアルミニウム合金を比較した結果を示す。素材特性はアルミニウム合金とマグネシウム合金で大き

な違いはない。しかし素材のコストはマグネシウム合金がアルミニウム合金の5～6倍である。また、マグネシウム合金は塑性加工性が悪く、熱間鍛造しかできないが、アルミニウム合金はマグネシウム合金に比べて低い温度での鍛造(温間・冷間鍛造)が可能である。そのため、加工時の消費電力等もマグネシウム合金鍛造の方が大きくなる。以上の要因が重なり、マグネシウム合金鍛造品のコストは、アルミニウム合金鍛造品のコストの6～7倍になる。しかし、鍛造は高品質の部材を高い生産性で製造できる塑性加工技術である。そのため、マグネシウム合金の鍛造技術の確立、そしてマグネシウム合金鍛造部品の低コスト化が産業界から求められていた。

1 産業技術総合研究所 サステナブルマテリアル研究部門 〒463-8560 名古屋市守山区下志段味穴ヶ洞 2266-98、2 有限会社ハイプロセスリサーチ(元産業技術総合研究所サステナブルマテリアル研究部門) 〒678-1226 赤穂郡上郡町高田台 3-17-13、3 産業技術総合研究所 生産計測技術研究センター 〒841-0052 鳥栖市宿町 807-1、4 宮本工業株式会社 〒329-2441 塩谷郡塩谷町大字船生 9133

1. Materials Research Institute for Sustainable Development, AIST 2266-98 Anagahora, Shimo-shidami, Moriyama-ku, Nagoya 463-8560, Japan \* E-mail: naobumi-saito@aist.go.jp, 2. The High Process Research, Ltd. (Former, Materials Research Institute for Sustainable Development, AIST) 3-17-13 Takada-dai, Kamigori-cho, Ako-gun 678-1226, Japan, 3. Measurement Solution Research Center, AIST 807-1 Shuku-machi, Tosu 841-0052, Japan, 4. Miyamoto Industry Co., Ltd 9133 Funyu, Shioya-machi, Shioya-gun 329-2441, Japan

Original manuscript received September 26, 2014, Revisions received November 25, 2014, Accepted November 28, 2014

表1 マグネシウム合金とアルミニウム合金鍛造材の比合金鍛造材の比較

		マグネシウム合金 (AM60)	アルミニウム合金 (A6061)	
素材	比重	1.74 (純 Mg)	2.70 (純 Al)	
	素材・組織	素材	押出材	押出材
		結晶粒	20 ~ 50 μm	20 ~ 50 μm
	特性	強度	260 MPa	280 MPa
		伸び	10 %	12 %
絞り率		35 %	45 %	
加工	軽量化率* 薄肉・小型化	30 % 以上軽量化	20 % 以上軽量化	
	鍛造成形 成形法	熱間加工のみ	冷・熱間加工	
	寸法精度 熱間加工時	±1.5 ~ 2.0 mm	±1.0 ~ 1.5 mm	
価格	素材 現状比(押出材)	500 ~ 600	100	
	製品 鍛造完成品	600 ~ 700	100	

ここでは代表的な鍛造素材である AM60(Mg-6mass%Al-0.1mass%Mn) マグネシウム合金と A6061 アルミニウム合金 (Al-0.8mass%Mg-0.7mass%Si) の例を示す。

\*ここで軽量化率とは、小型の自動車部品、例えば鉄製の構造補助材をアルミニウム合金およびマグネシウム合金に材料置換することによる軽量化率。

産総研は、平成 18 ~ 22 年度に (独) 新エネルギー・産業技術総合開発機構 (NEDO) の「マグネシウム鍛造部材技術開発プロジェクト」において (一財) 素形材センターと共同で、低コスト・高信頼性マグネシウム鍛造部材の作製を目指し、マグネシウム合金連続鍛造材の鍛造技術開発を行ってきた。そしてプロジェクト終了後は、宮本工業 (株) と共同研究を実施し、開発した技術の実用化を目指して開発を進めてきた。

## 2 マグネシウム合金連続鍛造材の鍛造技術開発の背景<sup>[1]</sup>

本章では、マグネシウム合金鍛造の平成 18 年時点での現状と、それを踏まえた、NEDO プロジェクトにおけるマグネシウム合金連続鍛造材の鍛造技術開発の目標設定について述べる。

### 2.1 マグネシウム鍛造プロセスの現状

NEDO プロジェクトにおいて、マグネシウム合金鍛造技術開発の課題を明確にするため、まず実用マグネシウム合金押出材を鍛造素材として、汎用メカニカルプレスを用いて商用プロセスによる実部材の試作鍛造および試作鍛造部品の評価を行った。その結果、これらの試作鍛造部品は 400 °C 程度の高温で鍛造するため結晶粒が粗大になっており、その結果として鍛造部品に期待される成形による機械的特性の向上といった効果が出ていないことがわかった。すなわち平成 18 年時点では、マグネシウム合金の鍛造は割れなどの欠陥がない健全な成形を重視するあまり、鍛造品自体の特性改善は不十分であった。

### 2.2 鍛造技術開発の目標設定

マグネシウム合金鍛造部品の普及のためには、押出材よりも低コストの鍛造材からの直接鍛造が望まれる。また鍛造

部品に期待される、成形による機械的特性の向上を実現しなくてはならない。そこで NEDO プロジェクトでは、1) 低コスト素材 (連続鍛造材) の鍛造加工性の検証、2) 連続鍛造材の鍛造プロセスの開発、3) 400 °C よりも低い温度での鍛造の実現 (鍛造部品の結晶粒粗大化を抑制) 4) 鍛造による部品の機械的特性向上実現 (鍛造部品の結晶粒粗大化抑制による)、をマグネシウム合金の鍛造における研究開発課題として設定し、研究開発を開始した。

図 1 に、マグネシウム合金連続鍛造材を鍛造素材とすることにより見込まれるコスト低下を見積もった結果を示す。マグネシウム合金連続鍛造材より鍛造部品を作製すると、押出工程がないことなどから鍛造品の価格が現状の約 1/4 になると期待される。

## 3 マグネシウム合金連続鍛造材の易成形性化<sup>[1]</sup>

### 3.1 従来の知見に基づく課題解決方法の検討

この研究開発のポイントは、鍛造素材の易成形性化、鍛造部品の高強度化である。マグネシウム合金の鍛造は材料を加熱状態で変形させるプロセスであるが、金属材料の加熱状態での変形は粒界滑りが支配的であることが知られている<sup>[2]</sup>。また、粒界滑りにおける変形応力は粒径が微細になるほど小さくなるので、材料の結晶粒径が微細であるほど加熱状態で変形し易くなる<sup>[2]</sup>。一方、金属材料の室温での降伏応力は結晶粒が微細であるほど高くなる<sup>[3-5]</sup>。以上から、鍛造素材および鍛造部品の結晶粒微細化が、課題解決のための重要なポイントであると考えた。

金属材料を加熱状態で変形した場合、動的再結晶が生じて新しい結晶粒が発生し、初期の結晶粒は消失する<sup>[6]</sup>ことが知られている。また、マグネシウム合金は動的再結晶が生じやすく、結晶粒微細化も比較的容易に達成できる

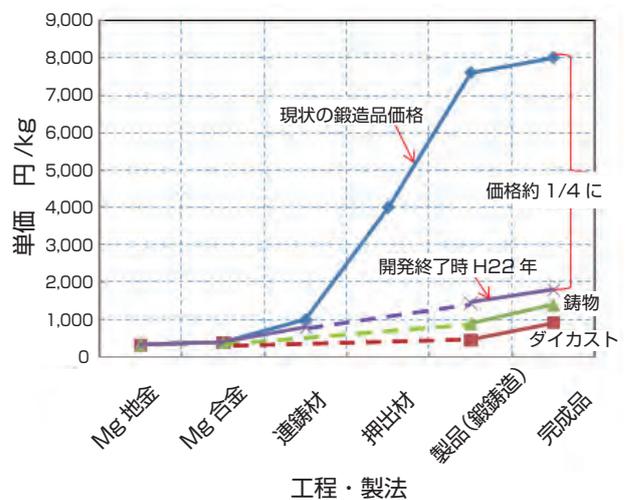


図1 マグネシウム合金製部材のコスト見積もり

という報告もある<sup>[7]</sup>。そこで、マグネシウム合金連続鋳造材の動的再結晶による結晶粒微細化挙動を調べることから研究開発を開始した。

### 3.2 マグネシウム合金連続鋳造材の動的再結晶挙動の検討

本節では、NEDOプロジェクトにおいて鍛造技術開発のための基礎的知見を得るため、産総研が主体となりマグネシウム合金連続鋳造材の動的再結晶による結晶粒微細化挙動を調べた結果について述べる。

#### 3.2.1 AZ91合金連続鋳造材の高温圧縮試験

供試材として、均質化处理（410℃に24時間加熱）したAZ91（Mg-9mass%Al-1mass%Zn）マグネシウム合金連続鋳造材（三協マテリアル（株）製）を用い、産総研で高温圧縮試験を行った。代表例として、直径10mm、高さ12mmの試験片を3種類の温度（250℃、300℃、330℃）およびひずみ速度（ $0.01s^{-1}$ 、 $0.1s^{-1}$ 、 $1s^{-1}$ ）で80%まで圧縮し、その後のマイクロ組織（結晶粒径）を調べた結果を図2

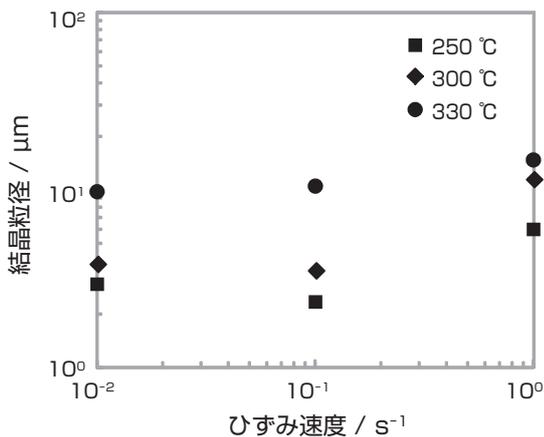


図2 AZ91（Mg-9mass%Al-1mass%Zn）マグネシウム合金連続鋳造材の高温圧縮後の結晶粒径計測結果（圧縮率80%）

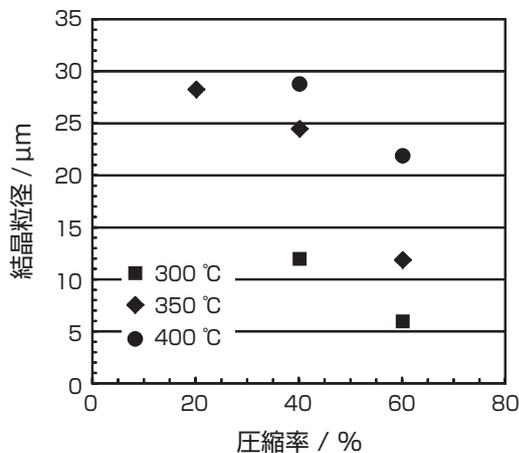


図3 AZ91（Mg-9mass%Al-1mass%Zn）マグネシウム合金連続鋳造材の据え込み圧縮率と結晶粒径の関係（変形速度：200 mm/s）

に示す。この結果より、AZ91合金連続鋳造材を300℃以下で圧縮変形させると、比較的容易に結晶粒径10μm以下まで微細化できることがわかった。

#### 3.2.2 AZ91合金連続鋳造材の据え込み圧縮試験

次に、宮本工業（株）が所有するサーボプレス機を用いて、スケールアップしたサイズのAZ91合金試験片（直径40mm、高さ48mm）の据え込み圧縮試験を行い、結晶粒微細化挙動に対する圧縮率および成形速度の影響を調べた。図3に200mm/sで変形させた場合の結晶粒径と圧縮率の関係を示す。圧縮率が高いと結晶粒は微細化するが、圧縮率60%では試料側面に割れが生じた。図4は圧縮率40%まで変形させた場合の結晶粒径と変形速度の関係である。試験温度が低いほど結晶粒は微細化するが、300℃では結晶粒径の変形速度依存性は余り見られなかった。以上より、300℃で30~40%の変形を与えれば、AZ91合金連続鋳造材の結晶粒径は10μm程度まで微細化し、割れも生じないことがわかった。

### 4 マグネシウム合金連続鋳造材の試作鍛造および鍛造部品高強度化の検証<sup>[1]</sup>

本章では、NEDOプロジェクトにおいて前章での研究成果に基づき、産総研が主体となって開発したマグネシウム合金連続鋳造材の鍛造技術の概要、および当該技術を用いて産総研で試作鍛造を行った結果について述べる。

マグネシウム合金連続鋳造材の動的再結晶挙動の解析結果から、図5に示すような鍛造プロセスを産総研が提案した。このプロセスでは、工程前半はマグネシウム合金連続鋳造材に300℃で30~40%の圧縮加工を行い、結晶粒径を10μm程度まで微細化する。この結晶粒微細化により、鍛造素材は易成形性を有する材料に変化する。そして工程後半ではこの素材を最終形状まで鍛造加工を行う。

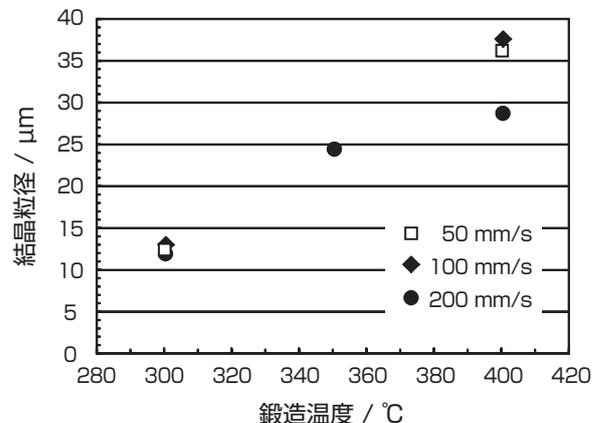


図4 AZ91（Mg-9mass%Al-1mass%Zn）マグネシウム合金連続鋳造材の加工温度と結晶粒径の関係（据え込み圧縮率：40%）

前章で示したように、マグネシウムの動的再結晶組織は加工温度や歪速度に依存する<sup>18)</sup>。したがって、ここで目指す加工を達成するためには、加工速度やスライド位置を任意に制御できるサーボプレスが有用である。そこで産総研においてサーボプレスを利用して試作鍛造を行い、上記の鍛造プロセスの妥当性を検証することにした。

図6に産総研で実施したサーボプレスによる鍛造工程を示す。予熱した鍛造素材（ブランク材）を加熱された金型に投入し、上からパンチで圧縮加工するが、ブランク材の径は金型の径よりも小さいので、最初はブランク材が横に広がり、あるところでブランク材の径と金型の径が一致する。ここまでのいわゆる据え込み圧縮加工（圧縮率約40%）が、結晶粒微細化工程になる。ここからさらにパンチで押し続けると、材料は前方と後方に押出されて最終的な形状に成形される。この加工は1工程で行われるが、前半は結晶粒微細化工程、後半は成形工程である。

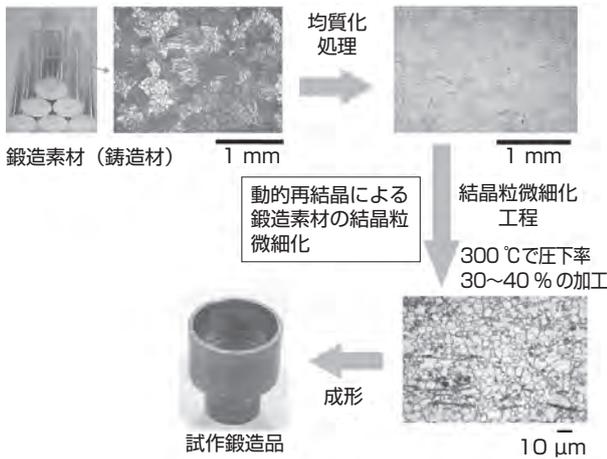


図5 マグネシウム合金連続鍛造材の鍛造プロセスの概要

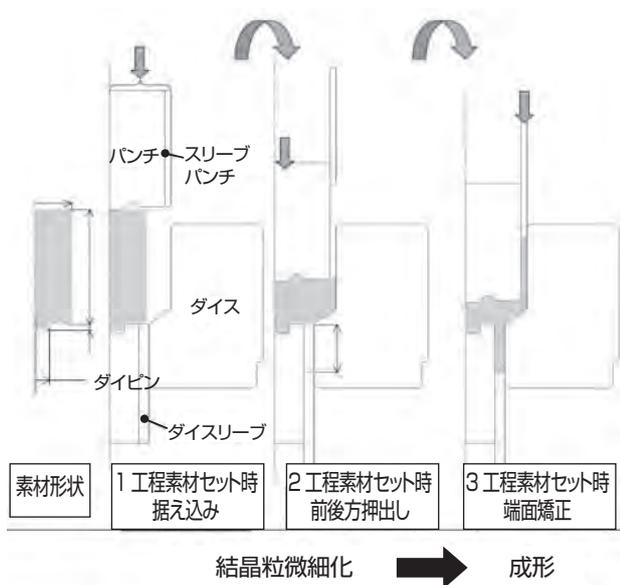


図6 サーボプレスによる鍛造工程

図7にこのプロセスで最初に試作した鍛造品（素材はAZ91 マグネシウム合金）外観写真を示す。写真において①は後方押出部、②は据え込み圧縮部、③は前方押出部である。産総研では温度、加工速度、鍛造後の鍛造品の冷却速度等を変化させた試作鍛造を約150回行い、鍛造品のマイクロ組織観察結果や引張試験結果をデータベースとして整理した。図7に示した試作鍛造品は、鍛造温度300℃、鍛造速度10mm/sで鍛造を行ったが、鍛造品に欠陥は認められなかった。すなわち産総研が提案したマグネシウム合金連続鍛造材の新規鍛造プロセスにより、300℃で断面減少率81%の前後方管押し鍛造が可能になることを確認した。この結果は世界初のものであり、プロジェクト事後評価において評価委員から高く評価された。試作鍛造部品のマイクロ組織を観察したところ、後方押出部、据え込み圧縮部、前方押出部ともに結晶粒は10µm以下まで微細化していた。また据え込み圧縮部の機械的特性を評価したところ、室温引張強度359MPa、破断伸び19%であった。この引張特性は素材の引張特性（226MPa、15%）よりも高く、鍛造部品に期待される成形による機械的特性の向上が実現した。以上のように、当初に設定した目標を達成した。

## 5 マグネシウム合金連続鍛造材の鍛造プロセスの実用化検討

### 5.1 実用化研究で設定する目標

NEDOプロジェクトで開発したプロセスにより、マグネシウム合金連続鍛造材を従来よりも100℃近く低い300℃で鍛造することに試作レベルで成功した。そこでプロジェクト終了後に次の段階として、NEDOプロジェクトの成果について真に実用化する観点から宮本工業（株）と詳細に議論した。その結果、200℃より低温で高強度、高精度成形品を得る鍛造技術の開発を目標とすること、そのために結晶粒微細化が重要との認識を共有できた。これらを共通の



図7 試作鍛造品の例（素材：AZ91 マグネシウム合金連続鍛造材）

目標として、産総研と宮本工業（株）は共同研究を行うこととした。議論の過程で低温鍛造のメリットとして、加工コスト、環境対応、作業環境等について宮本工業（株）から以下の提案がなされた。

1) 加工コスト：鍛造温度が300℃以上の熱間鍛造では、鍛造素材を加熱するために専用の炉が必要となる。それに対して、200℃以下の鍛造では、赤外線ヒーターやホットプレート式の加熱で十分である。また、低温化することにより製品精度が向上するため、工程の削減、切削代の軽減等につながると期待される。さらに素材・金型の加温保持の電力量も低減でき、金型寿命の向上等も見込まれる。以上を考慮して、低温鍛造により見込まれる加工コスト低下を表2に示す。消費電力と後処理のコスト低下が大きいと考えられ、トータルとして加工コストは従来工法に比べ20～30%抑えられると算定している。

2) 環境対応：200℃以下の鍛造では、黒鉛系等の固体潤滑剤に比べて鍛造後の除去が容易な水溶性潤滑剤も使用できるようになる。黒鉛系潤滑剤は、低コストで潤滑性が高いが、黒鉛を分散させる基油の引火点が170～200℃であるため火災の危険を伴う。また黒鉛による作業環境の汚染によって、人体への健康被害が起こる可能性があることが問題となっている。したがって水溶性潤滑剤の使用により、潤滑での作業環境汚染が低減されることが考えられる。

3) 作業環境：熱間鍛造の場合、鍛造作業者は火傷防止のため特別な装備が必要であり、企業は熱による負荷に対して作業者に手当を出している。それに対して、鍛造温度が200℃以下であると、特別な装備を使用することなく材料の取扱いが可能である。すなわち、作業環境は熱間鍛造に比べて良くなると考えられる。

## 5.2 これまでの研究による知見に基づく課題解決方法の検討

「マグネシウム鍛造部材技術開発プロジェクト」では、ひとつの金型を使用して1工程で鍛造を行ったので、成形工程の温度だけを低くすることができなかった。そこで今回は、結晶粒の微細化工程と成形工程を分けた2段階での鍛造を検討した。検討した鍛造工程の概要を図8に示す。本鍛造工程は、結晶粒の微細化工程と成形工程を分けた2段階で行う。すなわち、素材を所定の温度で所定の圧下率だけ据え込み圧縮加工し、動的再結晶により結晶粒を10μm程度まで微細化させる。そして試料を取り出し、新たに200℃以下で鍛造加工を行う。産総研は金属材料の組織制御・解析技術にポテンシャルを、宮本工業（株）は鍛造メーカーとして、鍛造加工技術および周辺技術（金型、潤滑等）に高いポテンシャルを有している。そこでこのプロセスを産総研および宮本工業（株）で、各々のポテンシ

表2 鍛造温度低温化により見込まれる加工コストの低下

	従来工法	新工法（低温鍛造）
素材	100	100
消費電力	100	70
後処理※1	100	50
後加工※2	100	98
トータルコスト	100	70

※1：潤滑剤の除去など鍛造品の洗浄が主体

※2：切削・アルマイト処理などの後加工処理

ルを活用して、次のようなステップで検討・検証した。

### 5.2.1 鍛造素材の結晶粒微細化挙動の解析

まず産総研において動的再結晶による結晶粒微細化現象を確認するため、サーボプレス機を使用して鍛造素材の据え込み圧縮試験を行った。

鍛造素材として、AZ91マグネシウム合金にCaを添加して発火温度を200～300℃上昇させた難燃性マグネシウム合金<sup>[9]</sup>を用いた。Ca添加量は0.2 mass%、0.4 mass%、0.6 mass%、1.0 mass%である。試料には試験前に410℃で24時間加熱処理（均質化処理）が施されている。また試料のサイズは、直径25mm、高さ30mmである。図9に一例として350℃、1mm/sで据え込み圧縮した材料の結晶粒径測定結果を示す。元材の結晶粒径は100～200μmであったが、350℃で60%据え込み圧縮後の結晶粒径はいずれの合金でも10μm以下であり、結晶粒が1/10以下に微細化した。1.0mass%Ca添加合金の場合、圧縮率が60%以上になると結晶粒径は約8μmとおおよそ一定値を示した。

### 5.2.2 結晶粒微細化素材の圧縮変形特性評価

引き続き産総研において、200℃以下での鍛造可能性に関する知見を得るため、結晶粒微細化素材の高温圧縮試

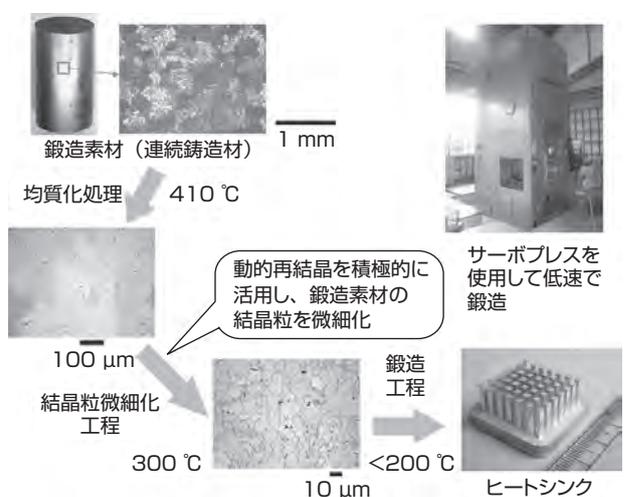


図8 開発した低温鍛造工程の概要

験を行い、圧縮変形挙動を評価した。

図10はAZ91に0.2mass%Caを添加したマグネシウム合金を350℃、1mm/sで60%まで圧縮して結晶粒を微細化させた試料を、初期ひずみ速度 $4.2 \times 10^{-3} \text{s}^{-1}$ 、試験温度200℃、175℃および150℃で圧縮試験を行った結果である。試験片のサイズは直径8mm、高さ12mmである。破断が生じる圧縮率は、150℃では約16%、175℃では約20%、200℃では約30%であった。150℃でも16%の変形が可能であったという結果は、素材の結晶粒を10μm程度に微細化することで、200℃以下で鍛造ができる可能性を示している。

### 5.2.3 低温鍛造の可能性の検討

前項までに得られたデータより産総研、宮本工業（株）が低温鍛造の可能性を検討した。その結果、素材の結晶粒を10μm程度まで微細化することで、200℃以下での鍛造ができる可能性が示されたと判断し、試作鍛造を実施することを決定した。試作鍛造部品としては、宮本工業（株）がアルミニウム合金で鍛造した実績がある角ピンヒートシンクを選択した。角ピンヒートシンクの基本構造は30mm角×厚さ3.5mm、角ピン部は2mm角×高さ8mmで本数は49本である。

### 5.2.4 鍛造素材の結晶粒微細化

次に、鍛造素材の結晶粒微細化のため、宮本工業（株）においてサーボプレス機を使用して据え込み圧縮を行った。そして据え込み圧縮した材料を産総研でマイクロ組織観察し、結晶粒径測定等を行い、結晶粒微細化挙動を調査した。

鍛造に使用したマグネシウム合金は、市販のAZ31 (Mg-3mass%Al-1mass%Zn) マグネシウム合金連続鍛造材 (直径155mm) とAZ61 (Mg-6mass%Al-1mass%Zn) マグネシウム合金連続鍛造材 (直径55mm) の2種類である。いずれも410℃で24時間の均質化処理が施されている。

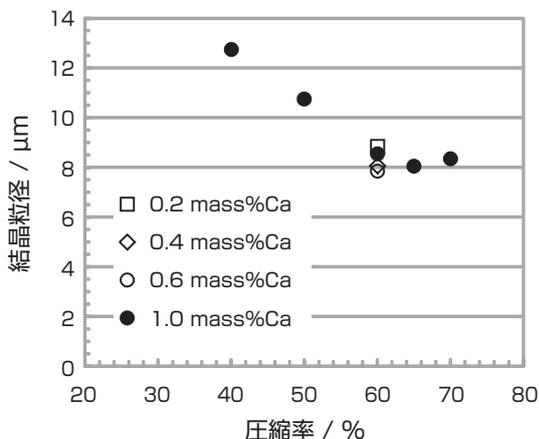


図9 AZ91+0.2mass%Ca、0.4mass%Ca、0.6mass%Ca、1.0mass%Ca合金連続鍛造材の高温圧縮後の結晶粒径計測結果 (温度: 350℃、加工速度: 1mm/s)

結晶粒微細化工程では、平均結晶粒径が100μm以上のブランク材を、温度300℃で所定の圧下率まで据え込んだ。動的再結晶の進行とブランク材の工程初期の割れを防止する観点から、据え込みは平均速度5~10mm/sの比較的低速で行った。AZ31マグネシウム合金連続鍛造材では一部に結晶粒径が10~20μm程度の領域があるものの、それ以外では動的再結晶によって結晶粒径5μm以下まで微細化していた。一方、AZ61マグネシウム合金連続鍛造材でも動的再結晶が生じているものの、平均結晶粒径は約10μmであった。このように、据え込み圧縮加工による鍛造素材の結晶粒微細化を確認した。

### 5.2.5 結晶粒微細化材の成形工程としての試作鍛造

鍛造素材の結晶粒微細化が確認できたので、試作鍛造を宮本工業においてサーボプレス機を使用して行った。そして試作鍛造品に関して、宮本工業（株）で外観評価、産総研でマイクロ組織評価を行った。

図11に結晶粒微細化処理を施したAZ31マグネシウム合金の連続鍛造材を素材として、今回開発した鍛造方法によって作製したヒートシンクの外観写真を示す。鍛造は、結晶粒微細化処理後の材料をブランク材とし、鍛造温度100℃、150℃、200℃で行った。平均の押し出し比は4.6、平均押し出しひずみは1.5、断面減少率は0.78である。材料の割れを防止するため、平均速度5~10mm/sの比較的低速で鍛造を行った。いずれの鍛造温度でも割れはなく、49本のピンの高さが揃った健全なヒートシンクが鍛造加工できた。またAZ61マグネシウム合金の連続鍛造材を素材としても、今回の鍛造方法により同様のヒートシンクを作成できた。ヒートシンクは機械的強度が要求される部品ではない。しかしマイクロ組織観察により角ピン部の結晶粒径は10μm以下に微細化していることを確認した。したがって、機械的強度もあると考えられる。

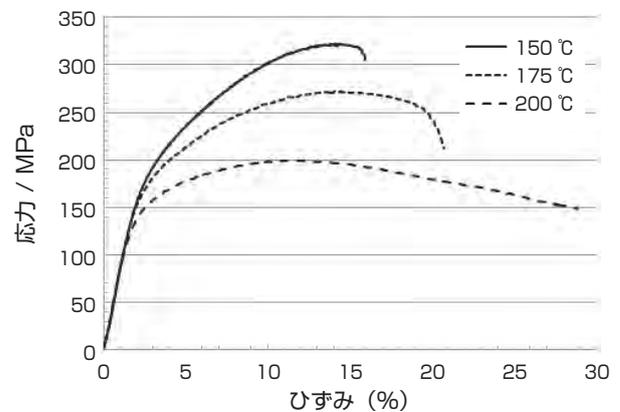


図10 結晶粒微細化処理を行ったAZ91+0.2mass%Ca合金の圧縮試験結果

表3 本研究の開発目標と従来技術の比較

			マグネシウム合金 (AM60)	マグネシウム合金 (開発目標値)	アルミニウム合金 (A6061)
素材	素材・組織	素材	押出材	連続鋳造材	押出材
		結晶粒	20 ~ 50 μm	10 μm (結晶粒微細化処理後)	20 ~ 50 μm
	特性	強度	260 MPa	340 MPa	280 MPa
		伸び	10 %	15 %	12 %
		絞り率	35 %	60 %	45 %
加工	軽量化率	薄肉・小型化	30 % 以上軽量化	30 % 以上軽量化	20 % 以上軽量化
	鍛造成形	成形法	熱間加工のみ	温間加工可能	冷・熱間加工
	寸法精度		±1.5 ~ 2.0 mm (熱間加工時)	±0.3 mm (温間加工時)	±1.0 ~ 1.5 mm (熱間加工時)
価格	素材	現状比	500 ~ 600	120 ~ 140	100
	製品	鍛造完成品	600 ~ 700	150	100

\*表1に研究における開発目標値を追加して示した。

### 5.2.6 当該鍛造プロセスとマグネシウム合金試作鍛造品の妥当性の検証

試作鍛造終了後に、宮本工業(株)、産総研で開発した鍛造プロセスの妥当性を検証した。

本試作鍛造により、結晶粒を10 μm程度以下に制御することで比較的複雑な形状のマグネシウム合金の鍛造が200℃以下で可能なことが確認できた。また、AZ31合金に比べて鍛造性の劣るAZ61合金でも、動的再結晶による結晶粒の微細化を行えば支障なく鍛造可能であった。以上の結果から、本鍛造プロセスは実用化可能であると考えられる。

また、表3に示すように今回の研究成果をアルミニウム合金鍛造部品と比較すると、製品価格比で約1.5倍であるが、現在のマグネシウム合金鍛造部品に比べると1/4程度まで下がるのが期待される。今後、さらなる製品コスト低下が課題であるが、軽量化のニーズが特に強い用途では、マグネシウム合金鍛造部品が実用化できる見通しが得られたと考える。

### 6 この研究開発における要素技術の統合

マグネシウム合金連続鋳造材の低温鍛造技術は、産総研の持つポテンシャルと宮本工業(株)が持つポテンシャルを統合することで開発が可能であった。そこで第5章までに述べた内容と議論を踏まえて、図12にNEDOプロジェクトや共同研究を通じて課題解決のために設定された仮説や要素技術がどのように統合され、両機関がどのように分担あるいは共同し、最終的なマグネシウム合金鍛造プロセスおよび鍛造品開発に至ったかを整理して示す。

産総研は、金属材料の組織制御・解析・評価技術にポテンシャルを有している。また、マグネシウム合金連続鋳造材の低温鍛造のポイントは、最終形状に鍛造する前に素材の結晶粒を微細化することである。そこで産総研は、鍛造素材の動的再結晶による結晶粒微細化の解析、結晶粒微細化素材の低温での変形挙動解析を行い、その結果より宮本工業(株)と共同で低温鍛造の可能性を検討した。

宮本工業(株)はアルミニウムの鍛造メーカーとして、こ

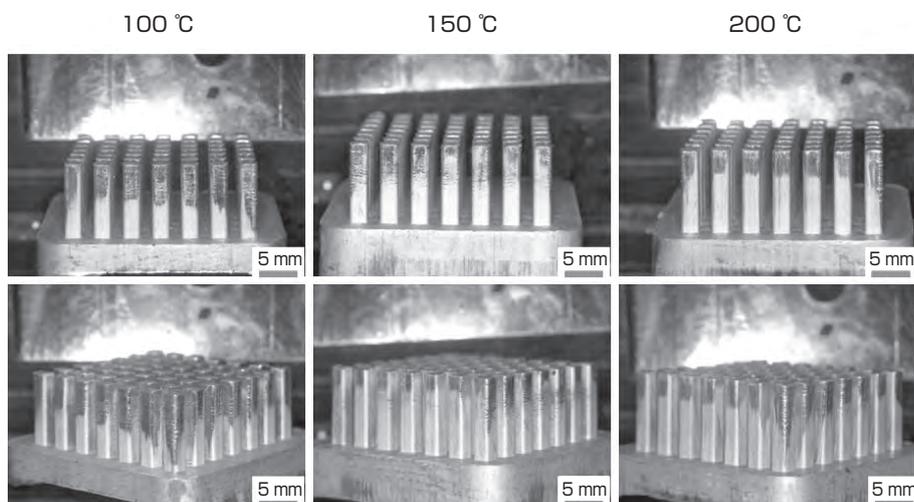


図11 試作したヒートシンクの外観(素材はAZ31合金)

れまでも家電・精密・PC 関連部品、自動車関連部品、レジャー関連部品等実績があり、鍛造加工技術および周辺技術（金型、潤滑等）に高いポテンシャルを有している。そこでこの研究開発では、産総研が提供した基礎データを参照し、開発したプロセスによって実部品を試作鍛造した。また試作鍛造品の外観評価を行った。

このように本共同研究の前半では、産総研が主体となって、後半では宮本工業（株）が主体となって開発を実施した。また後半に実施した試作鍛造品のマイクロ組織解析は産総研が担当するなど、緊密な連携を保ちつつ研究開発が行われた。

## 7 結果の評価および将来の展開

### 7.1 結果の評価

マグネシウム合金連続鍛造材の低温鍛造に関する共同研究の成果は、2013年5月15日に産総研プレスリリース「200℃以下の低温でマグネシウム合金の鍛造を実現」として公開した<sup>[10]</sup>。プレスリリース直後から新聞の取材があり、最終的に複数の新聞に記事が掲載された。また、複数の雑誌から成果の解説記事執筆の依頼があり、成果の普及につとめた<sup>[11][13]</sup>。さらに雑誌による取材もあり、記事が掲載された<sup>[14]</sup>。このようにこの研究成果は、対外的に多くの反響があり、評価された。

### 7.2 将来の展開

宮本工業（株）は、さらにマグネシウム合金の低温鍛造化を進め、100℃以下の冷間鍛造領域の実現を目指している。そうなれば鍛造時の加温保持が不要となり、生産性が飛躍的に向上すると期待される。また冷間鍛造用の潤滑

剤が使用でき、鍛造精度も向上するため、さらにコストダウンが見込まれる。

この冷間鍛造領域でのマグネシウム合金の量産ベースが可能となれば、現在アルミニウムが使用されている分野や、あるいは、鉄使用分野の一部からの置換も可能性が出る。そうすると、光学や産業機器、電池・電源周辺機器への展開、自動車・二輪車への展開等、幅広い分野への可能性が広がってくる。

現在、宮本工業（株）は本共同研究の成果を活用し、新規需要の開拓を行っている。すでに、低温鍛造したマグネシウム製のデジタルカメラ用部品は量産化している。また、それ以外に新幹線用ケーブルコネクタ、遠心分離機用ホルダー、自動車部品等の営業活動を実施している。

## 8 結言

マグネシウム合金連続鍛造材の鍛造技術開発は、NEDO プロジェクトとして開始し、引き続き宮本工業（株）との共同研究として実施した。この研究開発のポイントは、動的再結晶というこれまで学問的には多く研究がなされてきた現象を、ものづくりのプロセスに積極的に取り入れ、これまで鍛造素材として実績のなかったマグネシウム合金連続鍛造材の鍛造を可能にした点にある。産総研は基礎的な学術成果ともものづくりプロセスの橋渡しを行ったと言え、「技術を社会へ」という産総研のスローガンの実践例であると考えている。今後も企業との共同研究等を通じて、産総研の持つ基礎基盤技術（材料組織制御・解析・評価技術）と、企業のものづくり技術の連携を実践して行く予定である。

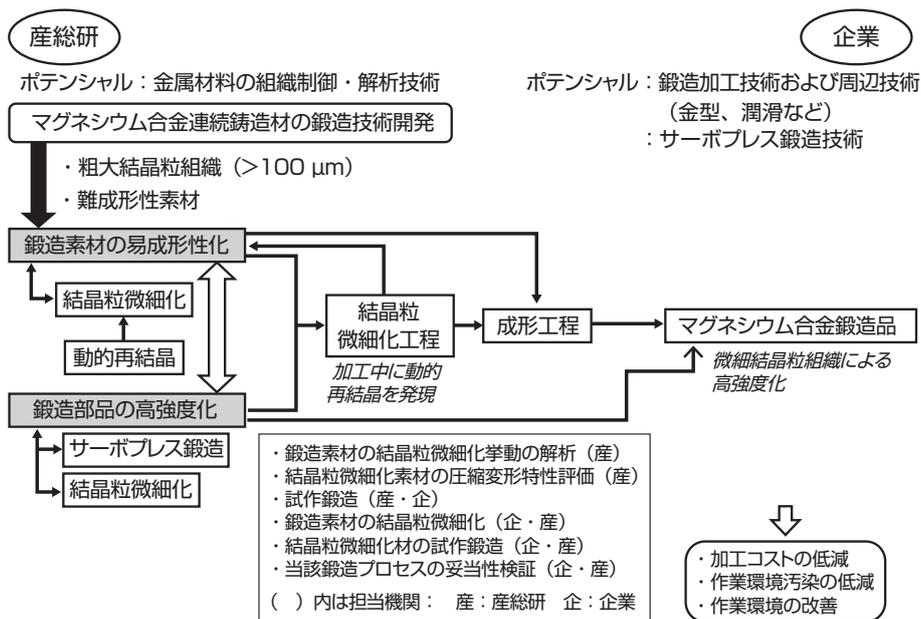


図 12 本研究開発における要素技術の統合

## 参考文献

- [1] NEDO(2012): 「マグネシウム鍛造部材技術開発プロジェクト」事後評価資料, [http://www.nedo.go.jp/introducing/iinkai/kenkyuu\\_bunkakai\\_23h\\_jigo\\_12\\_1\\_index.html](http://www.nedo.go.jp/introducing/iinkai/kenkyuu_bunkakai_23h_jigo_12_1_index.html).
- [2] 森永正彦, 古原忠, 戸田裕之編: *金属材料の加工と組織*, 共立出版, 71-72 (2010).
- [3] E. O. Hall: The deformation and ageing of mild steel: III Discussion of results, *Proc. Phys. Soc. B.*, 64, 747-753 (1951).
- [4] N. J. Petch: The cleavage strength of polycrystals, *J. Iron Steel Inst.*, 173, 25-28 (1953).
- [5] George E. Dieter, Jr.: *Mechanical Metallurgy*, McGraw-Hill, 119-123 (1961).
- [6] F. J. Humphreys and M. Hatherly: *Recrystallization and Related Annealing Phenomena*, Elsevier, 373-382 (1995).
- [7] 森永正彦, 古原忠, 戸田裕之編: *金属材料の加工と組織*, 共立出版, 150-153 (2010).
- [8] H. Watanabe, H. Tsutsui, T. Mukai, K. Ishikawa, Y. Okanda, M. Kohzu and K. Higashi: Grain size control of commercial wrought Mg-Al-Zn alloys utilizing dynamic recrystallization, *Materials Transactions*, 42 (7), 1200-1205 (2001).
- [9] 坂本満, 上野英俊: 部材の軽量化による輸送機器の省エネ化-難燃性マグネシウムの研究開発-, *Synthesiology*, 2 (2), 127-136 (2009).
- [10] 産総研 (2013/05/15): 「200°C以下の低温でマグネシウム合金の鍛造を実現」, [http://www.aist.go.jp/aist\\_j/press\\_release/pr2013/pr20130515/pr20130515.html](http://www.aist.go.jp/aist_j/press_release/pr2013/pr20130515/pr20130515.html).
- [11] 斎藤尚文, 岩崎源, 神原和夫, 関口常久, 宮本尚明: マグネシウム合金の結晶粒微細化を利用した鍛造プロセスの開発, *アルトピア*, 43 (8), 26-32 (2013).
- [12] 斎藤尚文, 岩崎源, 神原和夫, 関口常久, 宮本尚明: マグネシウム合金連続鋳造材の鍛造技術の開発, *日本鍛造協会広報誌「JFA」*, 45, 12-16 (2014).
- [13] 斎藤尚文, 岩崎源, 神原和夫, 関口常久, 宮本尚明: マグネシウム合金連続鋳造材の鍛造技術, *素形材*, 55 (6), 20-24 (2014).
- [14] 産業技術総合研究所, 宮本工業: 据え込み加工で結晶粒を微細化200°C以下で生産性向上を狙う, *日経ものづくり*, 711, 49-50 (2013).

## 執筆者略歴

斎藤尚文 (さいとう なおぶみ)

1985年東北大学工学部金属工学科卒業、1990年東北大学工学研究科材料物性学専攻博士課程修了、工学博士。同年4月工業技術院名古屋工業技術試験所金属部に入所後、軽量金属材料に関する研究に従事。2002年4月産総研サステナブルマテリアル研究部門に配置換。本研究では、マグネシウム合金連続鋳造材、結晶粒微細化材、試作鍛造部品のマイクロ組織解析を担当した。



岩崎源 (いわさき はじめ)

1969年大阪大学大学院基礎工学研究科博士課程修了、工学博士。同年姫路工業大学金属工学科に赴任、2003年3月退職。その間塑性力学、塑性加工学、材料加工学特論等の授業を担当、研究分野は軽金属の超塑性を主とする高温塑性である。2004年から2年間産総研の客員研究員として「超軽量材料の柔軟成形法の開発」に、2006年から5年間、財団法人素形材センターの嘱託研究員としてAIST中部センターでNEDO「マグネシウム鍛造部材技術開発プロジェクト」に従事した。



現在、有限会社ハイプロセスリサーチ代表取締役。本研究では、マグネシウム合金連続鋳造材の変形挙動の評価・解析を担当した。

坂本満 (さかもと みちる)

1980年筑波大学第一学群自然科学類卒業、1985年筑波大学大学院博士課程地球科学研究科修了、博士(地質学)。同年4月工業技術院九州工業技術試験所機械金属部入所後、金属基複合材料の研究開発に従事。2007年8月産総研サステナブルマテリアル研究部門に配置換、同年11月中部センターへ異動。2011年8月九州センターへ異動。本研究ではNEDOプロジェクトにおいて全体計画の立案と研究管理・運営を行った。



神原和夫 (かんばんら かずお)

1970年工学院大学専門学校金属加工科卒業、同年4月宮本工業(株)技術部に所属し、1979年技術部課長、1986年製造部課長、1990年技術部部長。一貫してアルミニウム合金、銅の冷間鍛造技術の開発に従事、1994年軽金属協会よりアルミニウム鍛造特別技術賞受賞、2000年よりマグネシウム合金の鍛造技術開発を推進。本研究では、マグネシウム合金の連続鋳造材を素材としたヒートシンクの試作鍛造を担当した。



関口常久 (せきぐち つねひさ)

1969年早稲田大学理工学部機械工学科修士課程修了、1969年昭和電工株式会社入社、1993年工学博士(機械工学)、1984年発明協会・協会会長賞受賞、1995年早稲田大学材料技術研究所 特別研究員、2000年宮本工業(株)入社、技監、2005年日本大学大学院講師(兼務・非常勤)、2006年日本鍛造協会研究員(兼務)。主にアルミニウム(高ケイ素合金)の材料開発及び鍛造技術開発に従事。本研究ではマグネシウム合金連続鋳造材を素材としたヒートシンクの試作鍛造を担当した。



## 査読者との議論

コメント1 全体 (清水 敏美:産業技術総合研究所)

省資源・省エネルギーの観点から広範囲の工業製品に対して軽量化の社会的要請がある。この論文は、構造用金属材料の中で最も軽量であるマグネシウム合金に関して、従来困難とされてきた連続鋳造材の低温鍛造プロセスの開発事例を示している。特に、産総研が有する基礎基盤技術と企業が有するものづくり技術の密接な連携によって、コスト低減、環境低負荷、作業環境改善に大きく貢献する鍛造プロセスを開発した際に選択した要素技術やその統合シナリオが述べられている。

## 議論1 シナリオ、要素技術の組み立てについて

コメント (清水 敏美)

耐食性や塑性加工性に劣るマグネシウム合金の鍛造に対して、動的再結晶というマイクロ組織の変化を積極的に利用することで結晶粒の微細化を達成した。さらに、その鋳造材を用いた企業との共同研究により従来困難であった低温鍛造法を開発した物語が示されています。しかし、初稿の段階ではNEDOのプロジェクト報告書と企業との共同研究報告書の域を出ておらず、それらの合体版のように見受けられます。すなわち、シンセシオロジ論文の本質である要素技術の詳細や統合シナリオに関して詳しい説明や記述が見当たりません。極端に言えば、連続鋳造材の結晶粒を微細化するために必要な動的再結晶化の重要因子(温度、加工速度、加工率等)の条件設定につ

いて、サーボプレスを活用して調べたら最適な条件が見つかり、それらの基礎データを基に企業が得意とする冷間鍛造プロセスで検討したら容易に開発できたように見えてしまいます。社会的価値を目標に設定して、研究を推進する上で立ててきた作業仮説とその実証結果、企業技術との融合時に遭遇した問題点、それらを克服してきた技術内容、あるいは技術の統合など論理展開において抑揚あるストーリー性、さらに各課題や技術の重要度、難易度、緊急度の区別が文面に欲しいところです。

コメント（景山 晃：産業技術総合研究所イノベーション推進本部）

初稿を読むと、技術課題とその突破方法は既知であり、それらについて淡々と実験を進めた結果、低温で成形でき、割れなどが生じにくく、高強度のマグネシウム合金の鍛造技術が完成したかのように見えます。実際には、着想、仮説設定、要素技術の組み合わせ方などについて、執筆者のオリジナリティが発揮された部分が相当あったのではないかと思いますので、そのプロセスや検証結果についてシンセシオロジー誌が目指す方向性に沿って緻密に論を組み立てるよう再検討をお願いします。

回答（斎藤 尚文）

同様の指摘を二人の査読者からいただきました。初稿では、NEDO プロジェクト後の研究内容に重点を置いて記述しました。しかし、NEDO プロジェクトにおける課題解決のプロセスを記述しないと、この研究の意味が読者に理解されないように思います。そこで、論文の構成を大幅に変更しました。

## 議論2 要素技術の統合図について

コメント（清水 敏美）

シンセシオロジー誌の内容として必要不可欠に近い、要素技術の統合とそれを踏まえた構成に関する図面が欲しいところです。本査読者が、内容を加味して、あくまで一案ですが仮作成してみましたので参考にしてください。例えば、これまでの材料開発に関するシンセシオロジーの他論文等も参考にしながら、適宜、追加、修正をしてください。もちろん、図は全面的に書き換えていただいても結構です。

コメント（景山 晃）

この論文に出てくるキーワードを拾い出すと、以下のようなものがありそうです。1) 機械的強度の向上、2) 鍛造材からの直接鍛造、3) 鍛造材の製作プロセスの見直し＝押し出し工程の回避、4) 易成形性、5) 動的再結晶、6) 結晶粒微細化、7) 低コスト化の観点からの検討、8) マグネシウム合金組成、9) プロセス条件としての成形温度、ひずみ速度、圧縮率、これらを連続的に変化させられるサーボプレスの導入、10) 潤滑剤技術の最適化、11) 作業環境負荷の低減、などです。ここで、1)～4)と7)は目標、8)と9)は目標達成の具体的検討項目、5)と6)はこの研究を支える基盤技術、10)と11)は広義の環境負荷の低減というくり方ができると思います。異なる切り口でいえば、目標を達成するために物理現象の基礎としての動的再結晶と結晶粒微細化を根幹に置き、8)、9)の変動要因について緻密な研究開発を行った。その際、環境負荷低減も強く意識して検討を進めたという組み立て方もあり得ると思います。上記を参考にこの論文の全体組み立てストーリーを1枚の図で表すことにチャレンジしてみてください。

回答（斎藤 尚文）

要素技術の統合に関する図面案をご教示いただきありがとうございます。この研究開発において「鍛造素材の易成形性化」が必要であったのは、結晶粒径が100 μm以上の連続鍛造材を鍛造素材としたからです。従来から鍛造素材として用いられている押出材では、鍛造素材の易成形性化は不要です。そこで、「連続鍛造材の鍛造技術開発」という文言を加えて、ご教示いただいた図面を少し修正し、

図12としました。その他の箇所も、少し修正しました。さらに、第6章を新たに設けそこに図12を挿入し、要素技術の組み合わせについて記述しました。

## 議論3 NEDOプロとの関係について

質問・コメント（景山 晃）

NEDO プロジェクトの成果を上手く活用し、その発展型を研究開発したところがこの研究だと思います。そこで、NEDO プロジェクトの成果と今回の共同研究の成果との全体を示すことはよいですが、どこまでがNEDO プロジェクトで、どこからが本件共同研究なのか明らかにした記載をお願いします。第2稿を読むと、4章まではNEDO プロジェクト当時の成果と読めます。そうであれば、第4章の最後でNEDO プロジェクトの成果をまとめておき（NEDO プロジェクトの報告書を引用文献に示すこと）、第5章の前書は例えば、「前述のNEDO プロジェクトの成果について真に実用化する観点から宮本工業（株）と詳細に議論した。その結果、200℃より低温で高強度、高精度成形品を得る鍛造技術の開発を目標とすること、そのために結晶粒微細化が重要との認識を共有できた。これらを共通の目標として、産総研と宮本工業（株）で共同研究を行うこととした。議論の過程で低温鍛造のメリットとして、加工コスト、環境対応、作業環境などについて以下の提案がなされた。」とするのでいかがでしょうか。

回答（斎藤 尚文）

ご指摘のように、第4章までがNEDO プロジェクトの内容です。第2稿において第2章で引用した参考文献[1]は、NEDO プロジェクトの研究成果のエッセンスを解説したのですが、NEDO プロジェクトの事後評価資料(公開版)を引用する方が適切であると思います。そこで、第2～第4章に評価資料を引用するとともに、NEDO プロジェクトの成果であることが明確にわかるように文章を修正しました。なお第3稿では参考文献1を、NEDO プロジェクトの事後評価資料(公開版)としました。また5.1の目標設定に関しては、ご指摘を参照して文章を修正しました。

## 議論4 鍛造品の比較について

コメント（景山 晃）

緒言でマグネシウム合金はアルミニウム合金と比較して普及が進んでいないことを述べています。その原因として耐食性、塑性加工性、トータルコストを挙げていますが、アルミニウム合金をリファレンスとして、マグネシウム合金の現状と本件研究が目指すものを表のような形で示すよう検討してください。その際、コストについても例えば材料コスト、製造・加工コスト、消費エネルギー、寸法調整コスト等に分解し、かつ、高低という表現は極力避けて、コスト指数のような表現が望ましいです。これを記載することで、要約にある「有力な候補」という意味が軽合金分野の専門家以外にもよく理解できると思います。恐らく市場ではアルミニウム比較のトータルパフォーマンスを見ていると思いますので、これを示すことができればマグネシウムの本質的弱点である耐食性を、総合力で打ち消すことも可能かと思えます。

回答（斎藤 尚文）

共著者である宮本工業（株）の関口氏にマグネシウム鍛造品とアルミニウム鍛造品の比較表をご教示いただき、表1として論文に追加しました。

## 議論5 表1について

質問・コメント（景山 晃）

表1の記載はマグネシウム合金とアルミニウム合金とのこの研究開発前段階の特性比較と理解してよいでしょうか。

1) 表に双方の密度(Mg = 1.738, Al = 2.70)を記載してください。マグネシウム合金の場合、AlとZnが少し含まれるので1.738より密

度は少し高くなると思いますが、アルミニウム合金の2/3程度に軽量化できることを示せると思います。なお、軽量化率30%、20%とは何に対する軽量化でしょうか。

2) 5.2.6の最後に表1を再掲し、マグネシウム合金（従来）、アルミニウム合金、この研究成果・データを併記して対比する表3を記載するのがよいと思います。なぜなら、表1により軽量化においてアルミニウム合金に対するマグネシウム合金の優位性が明確になり、表3によってマグネシウム合金における従来技術とこのテーマの結果との比較が理解しやすくなります。また、表3にアルミニウム合金を再掲するかどうかの最終判断は執筆者にお任せしますが、査読者は以下の理由から再掲した方がよいと思います。

- ・市場における比較対象（競合技術）はアルミニウム合金である。
- ・従来のマグネシウム合金は強度、伸び、寸法精度および鍛造完成品のコスト等の点でアルミニウム合金を置換できる可能性は高くなかったが、この研究により可能性が具体的になった。もちろん、従来からマグネシウム合金が使用されていた用途では比較的簡単に置き換えができると思いますが、それだけではマグネシウム合金の市場が拡大することは期待できない。

回答（斎藤 尚文）

ご指摘のように、表1はこの研究開発開始前段階の比較結果です。

- 1) 表1に純マグネシウムと純アルミニウムの比重を追記しました。共著者である宮本工業（株）の関口氏によれば、軽量化の試算は小型の自動車部品、例えば鉄製の防振ゴムマウント、エンジンマウントやリンクアーム等の構造補助材に関して計算したものとこのことです。比重分が丸々軽量化に寄与するのではなく、剛性（弾性係数）が不足するために若干軽量化が損なわれるとのことでした。
- 2) 表3としてご指摘のような表を5.2.6に追加しました。

### 議論6 加工コストについて

質問・コメント（景山 晃）

第5章において、加工コスト、環境対応、作業環境について触れていますが、加工コストについては1) 専用炉と赤外線ヒータ≒消費電力、2) 工程削減、切削代、3) 金型寿命での差分を示してください。これらの合計が20～30%ということですが、どれが最も大きいのかが読者には不明です。企業秘密にもつながりますので、指数化しても結構です。一方、環境対応ではグラファイトではどのような作業環境の悪化および環境負荷の増大があるのでしょうか。また、「低温化することにより製品精度が向上するため」とありますが、熱膨張係数×温度差が原因でしょうか。

回答（斎藤 尚文）

共著者の関口氏に加工コストの内訳表をご教示いただき、表2として論文に追加しました。ただし、数値の精度はそれほど厳密ではないとのコメントがありました。グラファイトによる作業環境の悪化および環境負荷の増大についてはこの論文に記述しました。低温鍛造による製品精度向上の理由は、ご指摘の通りです。

### 議論7 産総研の基礎基盤技術について

質問・コメント（清水 敏美）

産総研が得意とする基礎基盤技術として、金属材料の組織制御、解析、評価技術を挙げています。しかし、それらは大学や他の公的研究機関においても同様な、かつ同程度のポテンシャルを有していると考えられます。産総研のみが有するポテンシャルについて詳細に紹介できないでしょうか。関連して、鍛造技術の国内外の最新研究動向、それらと産総研技術との関連についても図や表で触れることはできないでしょうか。初稿では、写真図面が多用されています。専門分野の読者に対しては直接的な証拠として最適な根拠となるかも知れませんが、一般読者に対してはその差異を理解するのは困難です。数値的な表を用いて結果や根拠を示すことはできないでしょうか。

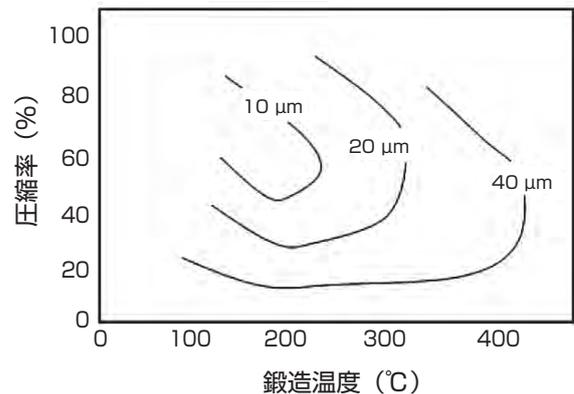
回答（斎藤 尚文）

この研究開発のポイントは、動的再結晶というこれまで学問的には多く研究がなされて来た現象を、ものづくりのプロセスに積極的に取り入れ、これまで鍛造素材として実績のなかったマグネシウム合金連続鋳造材の鍛造を可能にした点にあります。したがって、産総研は基礎的な学術成果とものづくりプロセスの橋渡しを行ったと言えます、このようなことが可能であるのが産総研のポテンシャルだと思います。これは、「技術を社会へ」という産総研のスローガンの実践であり、そのような内容を結言に入れました。鍛造技術の国内外の最新研究動向についてですが、企業との共同研究の成果を中心とした論文であること、鍛造技術全般となると内容が拡散してしまう恐れもあり、特に加筆はしていません。また、一般の読者でも理解できるように、写真とグラフを適材適所に配置しました。

### 議論8 基礎基盤技術としての動的再結晶の効果を示す等高線マップについて

質問・コメント（景山 晃）

この論文での技術の最大のポイントは動的再結晶によって結晶粒径を1桁下げることかと思えます。動的再結晶に対して温度と圧縮率とが影響するのであれば、X-Y2次元の座標上に得られた結晶の粒径を示す一種の等高線図で表し、マップ表現することを検討してはいかがでしょうか。例えば、執筆者がもっているデータからAZ91合金またはAZX91+Ca合金を用いた場合、X軸に温度、Y軸に圧縮率をとって、得られる結晶粒径を示すことはできませんでしょうか。（添付は参考図です）

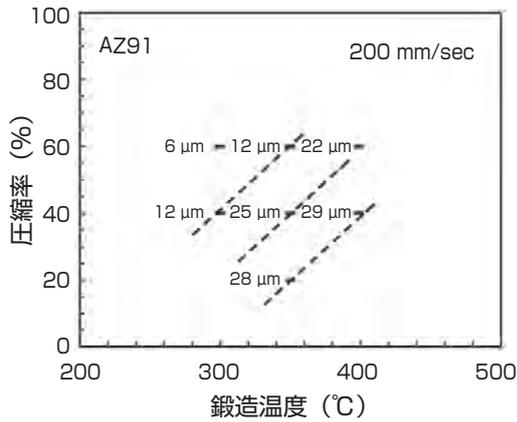


鍛造温度および圧縮率と結晶粒径との関係の概念図

このデータはプロセスウィンドウそのものとなり、技術を実用化する際に極めて重要です。また、結晶粒径が100 μmのオーダーから5～20 μmに小さくなると成形部材の強度は向上するのでしょうか。そうだとすれば、強度向上のメカニズム（一部仮説があってもよい）を本論中で述べてください。この議論を進めると、最適な結晶粒径は何 μmなのかという問いに行き着きます。このあたりも論じていただくと、産総研の基礎基盤技術（組成制御・解析・評価技術）を実証したケースとして生きてきます。

回答（斎藤 尚文）

ご指摘の点は、NEDOプロジェクトでの研究開発で重要な意味を持っていました。そこで、NEDOプロジェクトでの着想、仮説設定、要素技術の組み合わせ方を論じる部分で、図3のデータを基にご指摘のような図の作成を試みました。しかし、データ数が十分でないこともあり、余り説得力のある図とは言えませんので、現在の図3で代替させていただきます。なお、ご参考までに試作した図面を下に示します。



参考図 実験結果から作成した鍛造温度および圧縮率と結晶粒径の関係

また、金属材料の結晶粒を微細化することにより室温での強度が増加することは、Hall-Petchの法則として既に知られています。そのことも、3.1に文章を追加しました。

#### 議論9 試作鍛造品について

質問（清水 敏美）

企業は、試作品鍛造品として角ピンヒートシンクを選択し、産総研が提供した鍛造用ブランク材と基礎データを基に低温鍛造処理を実施しています。初稿では鍛造温度を変化させた場合の結果のみが示されていますが、試作、開発時に新たに克服すべき課題等は出なかったのでしょうか。論文の最初に述べられている、「従来、マグネシウム合金に関しては成形プロセスにより機械的特性を満足させることは困難であった」という背景に対して、いとも簡単に克服しているように見えます。

回答（斎藤 尚文）

試作、開発時に新たに克服すべき課題等については特に企業から話はありませんでした。また本試作品（ヒートシンク）は強度が要求される部品ではありませんので、機械的特性の評価は実施していません。しかしヒートシンクのピン部のマイクロ組織観察により、結晶粒が10 μm以下に微細化していることを確認しています。したがって強度も高いと考えられます。動的再結晶による結晶粒微細化を鍛造プロセス中に発現させるというアイデアはコロンブスの卵的であり、現在の視点からは当然のように見えるかもしれませんが、プロジェクト開始当初にそのような発想はなく、企業や大学との議論を経て産総研が提案したということは強調したいと思います。またマグネシウム合金は動的再結晶による結晶粒微細化が施しやすい材料であり、結晶粒微細化をキーポイントとしたこの研究は、結果として比較的スムーズに開発が進みました。

# 編集方針

シンセシオロジー編集委員会

## 本ジャーナルの目的

本ジャーナルは、個別要素的な技術や科学的知見をいかに統合して、研究開発の成果を社会で使われる形にしているか、という科学的知の統合に関する論文を掲載することを目的とする。この論文の執筆者としては、科学技術系の研究者や技術者を想定しており、研究成果の社会導入を目指した研究プロセスと成果を、科学技術の言葉で記述したものを論文とする。従来の学術ジャーナルにおいては、科学的な知見や技術的な成果を事実（すなわち事実に基づく知識）として記載したものが学術論文であったが、このジャーナルにおいては研究開発の成果を社会に活かすために何を行なえば良いかについての知見（すなわち当為的知識）を記載したものを論文とする。これをジャーナルの上で蓄積することによって、研究開発を社会に活かすための方法論を確立し、そしてその一般原理を明らかにすることを目指す。さらに、このジャーナルの読者が自分たちの研究開発を社会に活かすための方法や指針を獲得することを期待する。

## 研究論文の記載内容について

研究論文の内容としては、社会に活かすことを目的として進めて来た研究開発の成果とプロセスを記載するものとする。研究開発の目標が何であるか、そしてその目標が社会的にどのような価値があるかを記述する（次ページに記載した執筆要件の項目1および2）。そして、目標を達成するために必要となる要素技術をどのように選定し、統合しようと考えたか、またある社会問題を解決するためには、どのような新しい要素技術が必要であり、それをどのように選定・統合しようとしたか、そのプロセス（これをシナリオと呼ぶ）を詳述する（項目3）。このとき、実際の研究に携わったものでなければ分からない内容であることを期待する。すなわち、結果としての要素技術の組合せの記載をするのではなく、どのような理由によって要素技術を選定したのか、どのような理由で新しい方法を導入したのか、について論理的に記述されているものとする（項目4）。例えば、社会導入のためには実験室的製造方法では対応できないため、社会の要請は精度向上よりも適用範囲の広さにあるため、また現状の社会制度上の制約があるため、などの理由を記載する。この時、個別の要素技術の内容の学術的詳細は既に発表済みの論文を引用する形として、重要なポイントを記載するだけで良いものとする。そして、これらの要素技術は互いにどのような関係にあり、それらを統合

するプロセスにおいて解決すべき問題は何であったか、そしてどのようにそれを解決していったか、などを記載する（項目5）。さらに、これらの研究開発の結果として得られた成果により目標にどれだけ近づけたか、またやり残したことは何であるかを記載するものとする（項目6）。

## 対象とする研究開発について

本ジャーナルでは研究開発の成果を社会に活かすための方法論の獲得を目指すことから、特定の分野の研究開発に限定することはない。むしろ幅広い分野の科学技術の論文の集積をすることによって、分野に関わらない一般原理を導き出すことを狙いとしている。したがって、専門外の実験者にも内容が理解できるように記述することが必要であるとともに、その専門分野の実験者に対しても学術論文としての価値を示す内容でなければならない。

論文となる研究開発としては、その成果が既に社会に導入されたものに限定することなく、社会に活かすことを念頭において実施している研究開発も対象とする。また、既に社会に導入されているものの場合、ビジネス的に成功しているものである必要はないが、単に製品化した過程を記述するのではなく、社会への導入を考慮してどのように技術を統合していったのか、その研究プロセスを記載するものとする。

## 査読について

本ジャーナルにおいても、これまでの学術ジャーナルと同様に査読プロセスを設ける。しかし、本ジャーナルの査読はこれまでの学術雑誌の査読方法とは異なる。これまでの学術ジャーナルでは事実の正しさや結果の再現性など記載内容の事実性についての観点が重要視されているのに対して、本ジャーナルでは要素技術の組合せの論理性や、要素技術の選択における基準の明確さ、またその有効性や妥当性を重要視する（次ページに査読基準を記載）。

一般に学術ジャーナルに掲載されている論文の質は査読の項目や採録基準によって決まる。本ジャーナルの査読においては、研究開発の成果を社会に活かすために必要なプロセスや考え方が過不足なく書かれているかを評価する。換言すれば、研究開発の成果を社会に活かすためのプロセスを知るために必要なことが書かれているかを見るのが査読者の役割であり、論文の読者の代弁者として読者の知りたいことの記載の有無を判定するものとする。

通常の学術ジャーナルでは、公平性を保証するという理由により、査読者は匿名であり、また査読プロセスは秘匿される。確立された学術ジャーナルにおいては、その質を維持するために公平性は重要であると考えられているからである。しかし、科学者集団によって確立されてきた事実的知識を記載する論文形式に対して、なすべきことは何であるかという当為的知識を記載する論文のあり方については、論文に記載すべき内容、書き方、またその基準などを模索していかなければならない。そのためには査読プロセスを秘匿するのではなく、公開していく方法をとる。すなわち、査読者とのやり取り中で、論文の内容に関して重要な議論については、そのやり取りを掲載することにする。さらには、論文の本文には記載できなかった著者の考えなども、査読者とのやり取りを通して公開する。このように査読プロセスに透明性を持たせ、どのような査読プロセスを経て掲載に至ったかを開示することで、ジャーナルの質を担保する。また同時に、査読プロセスを開示することによって、投稿者がこのジャーナルの論文を執筆するときの注意点を理解する助けとする。なお、本ジャーナルのように新しい論文形式を確立するためには、著者と査読者との共同作業によって論文を完成させていく必要があり、掲載された論文は著者と査読者の共同作業の結果ともいえることから、査読者氏名も公表する。

## 参考文献について

前述したように、本ジャーナルの論文においては、個別の要素技術については他の学術ジャーナルで公表済みの論文を引用するものとする。また、統合的な組合せを行う要素技術について、それぞれの要素技術の利点欠点について記載されている論文なども参考文献となる。さらに、本ジャーナルの発行が蓄積されてきたのちには、本ジャーナルの掲載論文の中から、要素技術の選択の考え方や問題点の捉え方が類似していると思われる論文を引用することを推奨する。これによって、方法論の一般原理の構築に寄与することになる。

## 掲載記事の種類について

巻頭言などの総論、研究論文、そして論説などから本ジャーナルは構成される。巻頭言などの総論については原則的には編集委員会からの依頼とする。研究論文は、研究実施者自身が行った社会に活かすための研究開発の内容とプロセスを記載したもので、上記の査読プロセスを経て掲載とする。論説は、科学技術の研究開発のなかで社会に活かすことを目指したものを概説するなど、内容を限定することなく研究開発の成果を社会に活かすために有益な知識となる内容であれば良い。総論や論説は編集委員会が、内容が本ジャーナルに適しているか確認した上で掲載の可否を判断し、査読は行わない。研究論文および論説は、国内外からの投稿を受け付ける。なお、原稿については日本語、英語いずれも可とする。

## 執筆要件と査読基準

(2008.01)

項目	執筆要件	査読基準
1	研究目標 (「製品」、あるいは研究者の夢) を設定し、記述する。	研究目標が明確に記述されていること。
2	研究目標と社会とのつながり	研究目標と社会との関係が合理的に記述されていること。
3	シナリオ	道筋 (シナリオ・仮説) が合理的に記述されていること。
4	要素の選択	要素技術 (群) が明確に記述されていること。要素技術 (群) の選択の理由が合理的に記述されていること。
5	要素間の関係と統合	要素間の関係と統合が科学技術の言葉で合理的に記述されていること。
6	結果の評価と将来の展開	研究目標の達成の度合いと将来の研究展開が客観的、合理的に記述されていること。
7	オリジナリティ	既刊の他研究論文と同じ内容の記述がないこと。

# 投稿規定

シンセシオロジー編集委員会

制定 2007年12月26日  
 改正 2008年6月18日  
 改正 2008年10月24日  
 改正 2009年3月23日  
 改正 2010年8月5日  
 改正 2012年2月16日  
 改正 2013年4月17日  
 改正 2014年5月9日  
 改正 2014年11月17日

## 1 掲載記事の種類と概要

シンセシオロジーの記事には下記の種類がある。

・研究論文、論説、座談会記事、読者フォーラム

このうち、研究論文、論説は、原則として、投稿された原稿から査読を経て掲載する。座談会記事は編集委員会の企画で記事を作成して掲載する。読者フォーラムは読者により寄稿されたものを編集委員会で内容を検討の上で掲載を決定する。いずれの記事も、多様な研究分野・技術分野にまたがる読者が理解できるように書かれたものとする。記事の概要は下記の通り。

### ①研究論文

成果を社会に活かすことを目的とした研究開発の進め方とその基となる考え方（これをシナリオと呼ぶ）、その結果としての研究成果を、実際に遂行された研究開発に関する自らの経験や分析に基づき、論理立てて記述した論文。シナリオやその要素構成（選択・統合）についての著者の独自性を論文としての要件とするが、研究成果が既に社会に活かされていることは要件とはしない。投稿された原稿は複数名の査読者による査読を行い、査読者との議論を基に著者が最終原稿を作成する。なお、編集委員会の判断により査読者と著者とで直接面談（電話・メール等を含む）で意見交換を行う場合がある。

### ②論説

研究開発の成果を社会に活かすあるいは社会に広めるための、考えや主張あるいは動向・分析などを記述した記事。主張の独自性は要件としないが、既公表の記事と同一あるいは類似のものではないものとする。投稿された原稿は編集委員による内容の確認を行い、必要な修正点等があればそれを著者に伝え、著者はそれに基づいて最終原稿を作成する。

### ③座談会記事

編集委員会が企画した座談会あるいは対談等を記事にしたもの。座談会参加者の発言や討論を元に原稿を書き起したもので、必要に応じて、座談会後に発言を補足するための追記等を行うことがある。

### ④読者フォーラム

シンセシオロジーに掲載された記事に対する意見や感想また本誌の主旨に合致した読者への有益な情報提供などを掲載した記事とする。1,200文字以内で自由書式とする。

編集委員会で内容を検討の上で掲載を決定する。

## 2 投稿資格

投稿原稿の著者は、本ジャーナルの編集方針にかなう内容が記載されていれば、所属機関による制限並びに科学技術の特定分野による制限も行わない。ただし、オーサーシップについて記載があること（著者全員が、本論文についてそれぞれ本質的な寄与をしていることを明記していること）。

## 3 原稿の書き方

### 3.1 一般事項

3.1.1 投稿原稿は日本語あるいは英語で受け付ける。査読により掲載可となった論文または記事はSynthesiology (ISSN1882-6229)に掲載されるとともに、このオリジナル版の約4ヶ月後に発行される予定の英語版のSynthesiology - English edition (ISSN1883-0978)にも掲載される。このとき、原稿が英語の場合にはオリジナル版と同一のものを英語版に掲載するが、日本語で書かれている場合には、著者はオリジナル版の発行後2ヶ月以内に英語翻訳原稿を提出すること。

3.1.2 研究論文については、下記の研究論文の構成および書式にしたがうものとし、論説については、構成・書式は研究論文に準拠するものとするが、サブタイトルおよび要約はなくても良い。

3.1.3 研究論文は、原著（新たな著作）に限る。

3.1.4 研究倫理に関わる各種ガイドラインを遵守すること。

### 3.2 原稿の構成

3.2.1 タイトル（含サブタイトル）、要旨、著者名、所属・連絡先、本文、キーワード（5つ程度）とする。

3.2.2 タイトル、要旨、著者名、キーワード、所属・連絡先については日本語および英語で記載する。

3.2.3 原稿等はワープロ等を用いて作成し、A4判縦長の用紙に印字する。図・表・写真を含め、原則として刷り上り6頁程度とする。

3.2.4 研究論文または論説の場合には表紙を付け、表紙には記事の種類（研究論文か論説）を明記する。

3.2.5 タイトルは和文で10～20文字（英文では5～10ワード）前後とし、広い読者層に理解可能なものとする。研究論文には和文で15～25文字（英文では7～15ワード）前後のサブタイトルを付け、専門家の理解を助けるものとする。

3.2.6 要約には、社会への導入のためのシナリオ、構成した技術要素とそれを選択した理由などの構成方法の考え方も記載する。

3.2.7 和文要約は300文字以内とし、英文要約(125ワード程度)は和文要約の内容とする。英語論文の場合には、和文要約は省略することができる。

3.2.8 本文は、和文の場合は9,000文字程度とし、英文の場合は刷上りで同程度(3,400ワード程度)とする。

3.2.9 掲載記事には著者全員の執筆者履歴(各自200文字程度。英文の場合は75ワード程度。)及びその後に、本質的な寄与が何であったかを記載する。なお、その際本質的な寄与をした他の人が抜けていないかも確認のこと。

3.2.10 研究論文における査読者との議論は査読者名を公開して行い、査読プロセスで行われた主な論点について3,000文字程度(2ページ以内)で編集委員会が編集して掲載する。

3.2.11 原稿中に他から転載している図表等や、他の論文等からの引用がある場合には、執筆者が予め使用許可をとったうえで転載許可等の明示や、参考文献リスト中へ引用元の記載等、適切な措置を行う。なお、使用許可書のコピーを1部事務局まで提出すること。また、直接的な引用の場合には引用部分を本文中に記載する。

### 3.3 書式

3.3.1 見出しは、大見出しである「章」が1、2、3、…、中見出しである「節」が1.1、1.2、1.3…、小見出しである「項」が1.1.1、1.1.2、1.1.3…、「目」が1.1.1.1、1.1.1.2、1.1.1.3…とする。

3.3.2 和文原稿の場合には以下のようにする。本文は「で」ある調で記述し、章の表題に通し番号をつける。段落の書き出しは1字あけ、句読点は「。」および「、」を使う。アルファベット・数字・記号は半角とする。また年号は西暦で表記する。

3.3.3 図・表・写真についてはそれぞれ通し番号をつけ、適切な表題・説明文(20~40文字程度。英文の場合は10~20ワード程度。)を記載のうえ、本文中における挿入位置を記入する。

3.3.4 図については画像ファイル(掲載サイズで350 dpi以上)を提出する。原則は白黒印刷とする。

3.3.5 写真については画像ファイル(掲載サイズで350 dpi以上)で提出する。原則は白黒印刷とする。

3.3.6 参考文献リストは論文中の参照順に記載する。

雑誌：[番号] 著者名：表題、雑誌名(イタリック)、巻(号)、開始ページ-終了ページ(発行年)。

書籍(単著または共著)：[番号] 著者名：書名(イタリック)、開始ページ-終了ページ、発行所、出版地(発行年)。

ウェブサイト：[番号] 著者名(更新年)：ウェブページの題名、ウェブサイトの名称(著者と同じ場合は省略可)、URL、閲覧日。

## 4 原稿の提出

原稿の提出は紙媒体で1部および原稿提出チェックシート(Word ファイル)も含め電子媒体も下記宛に提出する。

〒305-8568

茨城県つくば市梅園1-1-1 つくば中央第2

産業技術総合研究所 広報部広報制作室内

シンセシオロジー編集委員会事務局

なお、投稿原稿は原則として返却しない。

## 5 著者校正

著者校正は1回行うこととする。この際、印刷上の誤り以外の修正・訂正は原則として認められない。

## 6 内容の責任

掲載記事の内容の責任は著者にあるものとする。

## 7 著作権

本ジャーナルに掲載された全ての記事の著作権は産業技術総合研究所に帰属する。

問い合わせ先：

産業技術総合研究所 広報部広報制作室内

シンセシオロジー編集委員会事務局

電話：029-862-6217、ファックス：029-862-6212

E-mail：synthesiology-ml@aist.go.jp

## Editorial Policy

*Synthesiology* Editorial Board

### Objective of the journal

The objective of *Synthesiology* is to publish papers that address the integration of scientific knowledge or how to combine individual elemental technologies and scientific findings to enable the utilization in society of research and development efforts. The authors of the papers are researchers and engineers, and the papers are documents that describe, using “scientific words”, the process and the product of research which tries to introduce the results of research to society. In conventional academic journals, papers describe scientific findings and technological results as facts (i.e. factual knowledge), but in *Synthesiology*, papers are the description of “the knowledge of what ought to be done” to make use of the findings and results for society. Our aim is to establish methodology for utilizing scientific research result and to seek general principles for this activity by accumulating this knowledge in a journal form. Also, we hope that the readers of *Synthesiology* will obtain ways and directions to transfer their research results to society.

### Content of paper

The content of the research paper should be the description of the result and the process of research and development aimed to be delivered to society. The paper should state the goal of research, and what values the goal will create for society (Items 1 and 2, described in the Table). Then, the process (the scenario) of how to select the elemental technologies, necessary to achieve the goal, how to integrate them, should be described. There should also be a description of what new elemental technologies are required to solve a certain social issue, and how these technologies are selected and integrated (Item 3). We expect that the contents will reveal specific knowledge only available to researchers actually involved in the research. That is, rather than describing the combination of elemental technologies as consequences, the description should include the reasons why the elemental technologies are selected, and the reasons why new methods are introduced (Item 4). For example, the reasons may be: because the manufacturing method in the laboratory was insufficient for industrial application; applicability was not broad enough to stimulate sufficient user demand rather than improved accuracy; or because there are limits due to current regulations. The academic details of the individual elemental technology should be provided by citing published papers, and only the important points can be described. There should be description of how these elemental technologies

are related to each other, what are the problems that must be resolved in the integration process, and how they are solved (Item 5). Finally, there should be descriptions of how closely the goals are achieved by the products and the results obtained in research and development, and what subjects are left to be accomplished in the future (Item 6).

### Subject of research and development

Since the journal aims to seek methodology for utilizing the products of research and development, there are no limitations on the field of research and development. Rather, the aim is to discover general principles regardless of field, by gathering papers on wide-ranging fields of science and technology. Therefore, it is necessary for authors to offer description that can be understood by researchers who are not specialists, but the content should be of sufficient quality that is acceptable to fellow researchers.

Research and development are not limited to those areas for which the products have already been introduced into society, but research and development conducted for the purpose of future delivery to society should also be included.

For innovations that have been introduced to society, commercial success is not a requirement. Notwithstanding there should be descriptions of the process of how the technologies are integrated taking into account the introduction to society, rather than describing merely the practical realization process.

### Peer review

There shall be a peer review process for *Synthesiology*, as in other conventional academic journals. However, peer review process of *Synthesiology* is different from other journals. While conventional academic journals emphasize evidential matters such as correctness of proof or the reproducibility of results, this journal emphasizes the rationality of integration of elemental technologies, the clarity of criteria for selecting elemental technologies, and overall efficacy and adequacy (peer review criteria is described in the Table).

In general, the quality of papers published in academic journals is determined by a peer review process. The peer review of this journal evaluates whether the process and rationale necessary for introducing the product of research and development to society are described sufficiently well.

In other words, the role of the peer reviewers is to see whether the facts necessary to be known to understand the process of introducing the research finding to society are written out; peer reviewers will judge the adequacy of the description of what readers want to know as reader representatives.

In ordinary academic journals, peer reviewers are anonymous for reasons of fairness and the process is kept secret. That is because fairness is considered important in maintaining the quality in established academic journals that describe factual knowledge. On the other hand, the format, content, manner of text, and criteria have not been established for papers that describe the knowledge of “what ought to be done.” Therefore, the peer review process for this journal will not be kept secret but will be open. Important discussions pertaining to the content of a paper, may arise in the process of exchanges with the peer reviewers and they will also be published. Moreover, the vision or desires of the author that cannot be included in the main text will be presented in the exchanges. The quality of the journal will be guaranteed by making the peer review process transparent and by disclosing the review process that leads to publication.

Disclosure of the peer review process is expected to indicate what points authors should focus upon when they contribute to this journal. The names of peer reviewers will be published since the papers are completed by the joint effort of the authors and reviewers in the establishment of the new paper format for *Synthesiology*.

## References

As mentioned before, the description of individual elemental technology should be presented as citation of papers published in other academic journals. Also, for elemental technologies that are comprehensively combined, papers that describe advantages and disadvantages of each elemental technology can be used as references. After many papers are accumulated through this journal, authors are recommended to cite papers published in this journal that present similar procedure about the selection of elemental technologies and the introduction to society. This will contribute in establishing a general principle of methodology.

## Types of articles published

*Synthesiology* should be composed of general overviews such as opening statements, research papers, and editorials. The Editorial Board, in principle, should commission overviews. Research papers are description of content and the process of research and development conducted by the researchers themselves, and will be published after the peer review process is complete. Editorials are expository articles for science and technology that aim to increase utilization by society, and can be any content that will be useful to readers of *Synthesiology*. Overviews and editorials will be examined by the Editorial Board as to whether their content is suitable for the journal. Entries of research papers and editorials are accepted from Japan and overseas. Manuscripts may be written in Japanese or English.

## Required items and peer review criteria (January 2008)

	Item	Requirement	Peer Review Criteria
1	Research goal	Describe research goal (“product” or researcher’s vision).	Research goal is described clearly.
2	Relationship of research goal and the society	Describe relationship of research goal and the society, or its value for the society.	Relationship of research goal and the society is rationally described.
3	Scenario	Describe the scenario or hypothesis to achieve research goal with “scientific words” .	Scenario or hypothesis is rationally described.
4	Selection of elemental technology(ies)	Describe the elemental technology(ies) selected to achieve the research goal. Also describe why the particular elemental technology(ies) was/were selected.	Elemental technology(ies) is/are clearly described. Reason for selecting the elemental technology(ies) is rationally described.
5	Relationship and integration of elemental technologies	Describe how the selected elemental technologies are related to each other, and how the research goal was achieved by composing and integrating the elements, with “scientific words” .	Mutual relationship and integration of elemental technologies are rationally described with “scientific words” .
6	Evaluation of result and future development	Provide self-evaluation on the degree of achievement of research goal. Indicate future research development based on the presented research.	Degree of achievement of research goal and future research direction are objectively and rationally described.
7	Originality	Do not describe the same content published previously in other research papers.	There is no description of the same content published in other research papers.

# Instructions for Authors

“*Synthesiology*” Editorial Board

Established December 26, 2007

Revised June 18, 2008

Revised October 24, 2008

Revised March 23, 2009

Revised August 5, 2010

Revised February 16, 2012

Revised April 17, 2013

Revised May 9, 2014

Revised November 17, 2014

## 1 Types of articles submitted and their explanations

The articles of *Synthesiology* include the following types:

- Research papers, commentaries, roundtable talks, and readers’ forums

Of these, the submitted manuscripts of research papers and commentaries undergo review processes before publication. The roundtable talks are organized, prepared, and published by the Editorial Board. The readers’ forums carry writings submitted by the readers, and the articles are published after the Editorial Board reviews and approves. All articles must be written so they can be readily understood by the readers from diverse research fields and technological backgrounds. The explanations of the article types are as follows.

### ① Research papers

A research paper rationally describes the concept and the design of R&D (this is called the scenario), whose objective is to utilize the research results in society, as well as the processes and the research results, based on the author’s experiences and analyses of the R&D that was actually conducted. Although the paper requires the author’s originality for its scenario and the selection and integration of elemental technologies, whether the research result has been (or is being) already implemented in society at that time is not a requirement for the submission. The submitted manuscript is reviewed by several reviewers, and the author completes the final draft based on the discussions with the reviewers. Views may be exchanged between the reviewers and authors through direct contact (including telephone conversations, e-mails, and others), if the Editorial Board considers such exchange necessary.

### ② Commentaries

Commentaries describe the thoughts, statements, or trends and analyses on how to utilize or spread the results of R&D to society. Although the originality of the statements is not required, the commentaries should not be the same or similar to any articles published in the past. The submitted manuscripts will be reviewed by the Editorial Board. The authors will be contacted if corrections or revisions are necessary, and the authors complete the final draft based on the Board members’ comments.

### ③ Roundtable talks

Roundtable talks are articles of the discussions or

interviews that are organized by the Editorial Board. The manuscripts are written from the transcripts of statements and discussions of the roundtable participants. Supplementary comments may be added after the roundtable talks, if necessary.

### ④ Readers’ forums

The readers’ forums include the readers’ comments or thoughts on the articles published in *Synthesiology*, or articles containing information useful to the readers in line with the intent of the journal. The forum articles may be in free format, with 1,200 Japanese characters or less. The Editorial Board will decide whether the articles will be published.

## 2 Qualification of contributors

There are no limitations regarding author affiliation or discipline as long as the content of the submitted article meets the editorial policy of *Synthesiology*, except authorship should be clearly stated. (It should be clearly stated that all authors have made essential contributions to the paper.)

## 3 Manuscripts

### 3.1 General

3.1.1 Articles may be submitted in Japanese or English.

Accepted articles will be published in *Synthesiology* (ISSN 1882-6229) in the language they were submitted. All articles will also be published in *Synthesiology - English edition* (ISSN 1883-0978). The English edition will be distributed throughout the world approximately four months after the original *Synthesiology* issue is published. Articles written in English will be published in English in both the original *Synthesiology* as well as the English edition. Authors who write articles for *Synthesiology* in Japanese will be asked to provide English translations for the English edition of the journal within 2 months after the original edition is published.

3.1.2 Research papers should comply with the structure and format stated below, and editorials should also comply with the same structure and format except subtitles and abstracts are unnecessary.

3.1.3 Research papers should only be original papers (new literary work).

3.1.4 Research papers should comply with various guidelines of research ethics.

### 3.2 Structure

3.2.1 The manuscript should include a title (including subtitle), abstract, the name(s) of author(s), institution/contact, main text, and keywords (about 5 words).

3.2.2 Title, abstract, name of author(s), keywords, and institution/contact shall be provided in Japanese and English.

3.2.3 The manuscript shall be prepared using word processors or similar devices, and printed on A4-size portrait (vertical) sheets of paper. The length of the manuscript shall be, about 6 printed pages including figures, tables, and photographs.

3.2.4 Research papers and editorials shall have front covers and the category of the articles (research paper or editorial) shall be stated clearly on the cover sheets.

3.2.5 The title should be about 10-20 Japanese characters (5-10 English words), and readily understandable for a diverse readership background. Research papers shall have subtitles of about 15-25 Japanese characters (7-15 English words) to help recognition by specialists.

3.2.6 The abstract should include the thoughts behind the integration of technological elements and the reason for their selection as well as the scenario for utilizing the research results in society.

3.2.7 The abstract should be 300 Japanese characters or less (125 English words). The Japanese abstract may be omitted in the English edition.

3.2.8 The main text should be about 9,000 Japanese characters (3,400 English words).

3.2.9 The article submitted should be accompanied by profiles of all authors, of about 200 Japanese characters (75 English words) for each author. The essential contribution of each author to the paper should also be included. Confirm that all persons who have made essential contributions to the paper are included.

3.2.10 Discussion with reviewers regarding the research paper content shall be done openly with names of reviewers disclosed, and the Editorial Board will edit the highlights of the review process to about 3,000 Japanese characters (1,200 English words) or a maximum of 2 pages. The edited discussion will be attached to the main body of the paper as part of the article.

3.2.11 If there are reprinted figures, graphs or citations from other papers, prior permission for citation must be obtained and should be clearly stated in the paper, and the sources should be listed in the reference list. A copy of the permission should be sent to the Publishing Secretariat. All verbatim quotations should be placed in quotation marks or marked clearly within the paper.

### 3.3 Format

3.3.1 The headings for chapters should be 1, 2, 3..., for subchapters, 1.1, 1.2, 1.3..., for sections, 1.1.1, 1.1.2, 1.1.3, for subsections, 1.1.1.1, 1.1.1.2, 1.1.1.3.

3.3.2 The chapters, subchapters, and sections should be enumerated. There should be one line space before each paragraph.

3.3.3 Figures, tables, and photographs should be enumerated. They should each have a title and an

explanation (about 20-40 Japanese characters or 10-20 English words), and their positions in the text should be clearly indicated.

3.3.4 For figures, image files (resolution 350 dpi or higher) should be submitted. In principle, the final print will be in black and white.

3.3.5 For photographs, image files (resolution 350 dpi or higher) should be submitted. In principle, the final print will be in black and white.

3.3.6 References should be listed in order of citation in the main text.

Journal – [No.] Author(s): Title of article, *Title of journal* (italic), Volume(Issue), Starting page-Ending page (Year of publication).

Book – [No.] Author(s): *Title of book* (italic), Starting page-Ending page, Publisher, Place of Publication (Year of publication).

Website – [No.] Author(s) name (updating year): Title of a web page, Name of a website (The name of a website is possible to be omitted when it is the same as an author name), URL, Access date.

### 4 Submission

One printed copy or electronic file (Word file) of manuscript with a checklist attached should be submitted to the following address:

*Synthesiology* Editorial Board  
c/o Website and Publication Office, Public Relations  
Department, National Institute of Advanced Industrial  
Science and Technology(AIST)  
Tsukuba Central 2 , 1-1-1 Umezono, Tsukuba 305-  
8568

E-mail: [synthesiology-ml@aist.go.jp](mailto:synthesiology-ml@aist.go.jp)

The submitted article will not be returned.

### 5 Proofreading

Proofreading by author(s) of articles after typesetting is complete will be done once. In principle, only correction of printing errors are allowed in the proofreading stage.

### 6 Responsibility

The author(s) will be solely responsible for the content of the contributed article.

### 7 Copyright

The copyright of the articles published in “*Synthesiology*” and “*Synthesiology English edition*” shall belong to the National Institute of Advanced Industrial Science and Technology(AIST).

Inquiries:

*Synthesiology* Editorial Board  
c/o Website and Publication Office, Public Relations  
Department, National Institute of Advanced Industrial  
Science and Technology(AIST)  
Tel: +81-29-862-6217 Fax: +81-29-862-6212  
E-mail: [synthesiology-ml@aist.go.jp](mailto:synthesiology-ml@aist.go.jp)

## 編集後記

Synthesiologyの発刊から、本号で8年目に入りました。まずは本誌の趣旨を簡潔に示すことを目的にリニューアルされた「Synthesiologyの趣旨」が、最終ページに掲載されていますので是非ご覧ください。これまでの「Synthesiology－構成学」発刊の趣旨では、研究者自身が研究活動とその社会寄与との間の大きなギャップを積極的に埋める研究活動（すなわち本格研究）を行うべきとの問題提起から、その一つの解決策として研究成果を社会に活かすために行うべきことを知として蓄積することを目的としてSynthesiologyが発刊されたという経緯が述べられていました。これまで1ページに渡っていた「Synthesiology－構成学」発刊の趣旨が、新しくなった「Synthesiologyの趣旨」では、英文も含めて1ページにまとめられています。読者として、また将来著者としても本誌に寄与していただけるであろう皆様に、わかりやすく簡潔にSynthesiology誌のアイデンティティを示したいという編集委員会の思いが、「研究成果を社会に活かす知の蓄積」という副題に凝集されているように感じています。かくも短い説明でも読者の皆様にご理解いただけるのではないかなと思えるようになったのも、本誌の7年間の歴史があってこそと考えます。本来はここで「感慨深いものがあります」と締めくくりたいところですが、本誌幹事として日が浅い筆者にはまだその

資格がないので思いとどまりました。一方で、本誌の歴史において外形的には極めて小さな出来事である今回の変更に大きな意義を感じることができたのは、本誌への筆者の関わりがまだ十分でなかったおかげかとも思っています。編集後記まで読んでいただいている読者に、今更本誌の趣旨を再確認していただく必要はないかと思いますが、Synthesiologyの普及に向けた取り組みの歴史探訪という視点で、バックナンバーの第1巻「発刊に寄せて：第2種基礎研究の原著論文誌」から始めて、折々に掲載されている座談会記事などを経由し、最後に新旧の「Synthesiologyの趣旨」を見比べていただくと、ちょっとした小旅行をお楽しみいただけるかもしれません。

今回の発刊の趣旨の簡略化や、前々号から冒頭のページに掲載することになった「論文のポイント」などは、本誌をより多くの皆様に読んでいただき、産総研の外部からもさらに多くの投稿をしてもらえようにとの試みの一つです。これまでも本誌のさらなる普及を目指した取り組みを様々してきておりますが、編集委員会では常に本誌の改善を進めるための知恵を絞っております。Synthesiology誌のさらなる普及に向けて、皆様から多くのご意見をお寄せいただければ幸いです。

(編集幹事 羽鳥 浩章)



## シンセシオロジー編集委員会

委員長：金山 敏彦

副委員長：湯元 昇、四元 弘毅

幹事（編集及び査読）：栗本 史雄、清水 敏美、田中 充、富樫 茂子、羽鳥 浩章

幹事（普及）：赤松 幹之、植田 文雄（独立行政法人 新エネルギー・産業技術総合開発機構）、岡田 明彦（住友化学株式会社）、  
小林 直人（早稲田大学）、前野 隆司（慶應義塾大学）、山崎 正和

幹事（出版）：高橋 正春

委員：赤穂 博司、阿部 修治、一村 信吾（名古屋大学）、上田 完次（兵庫県立工業技術センター）、小野 晃、景山 晃、金丸 正剛、久保 泰、神武 直彦（慶應義塾大学）、坂上 勝彦、田尾 博明、竹下 満（独立行政法人 新エネルギー・産業技術総合開発機構）、立石 裕、多屋 秀人（株式会社 J-Space）、千葉 光一、佃 栄吉、中島 秀之（公立ほこだて未来大学）、仁木 栄、長谷川 裕夫、馬場 靖憲（東京大学）、松井 俊浩、三石 安、村山 宣光、持丸 正明、矢野 雄策、矢部 彰、吉川 弘之（独立行政法人 科学技術振興機構）

事務局：独立行政法人 産業技術総合研究所 広報部広報制作室内 シンセシオロジー編集委員会事務局

問い合わせ シンセシオロジー編集委員会

〒305-8568 つくば市梅園 1-1-1 中央第2 産業技術総合研究所広報部広報制作室内

TEL：029-862-6217 FAX：029-862-6212

E-mail：synthesiology-ml@aist.go.jp ホームページ <http://www.aist.go.jp/synthesiology>

●本誌掲載記事の無断転載を禁じます。

---

## *Synthesiology* Editorial Board

Editor in Chief: T. KANAYAMA

Senior Executive Editor: N. YUMOTO, H. YOTSUMOTO

Executive Editors: C. KURIMOTO, T. SHIMIZU, M. TANAKA, S. TOGASHI, H. HATORI, M. AKAMATSU, F. UEDA (New Energy and Industrial Technology Development Organization), A. OKADA (Sumitomo Chemical Company, Limited), N. KOBAYASHI (Waseda University), T. MAENO (Keio University), M. YAMAZAKI, M. TAKAHASHI

Editors: H. AKOH, S. ABE, S. ICHIMURA (Nagoya University), K. UEDA (Hyogo Prefectural Institute of Technology), A. ONO, A. KAGEYAMA, S. KANEMARU, T. KUBO, N. KOHTAKE (Keio University), K. SAKAUE, H. TAO, M. TAKESHITA (New Energy and Industrial Technology Development Organization), H. TATEISHI, H. TAYA (J-Space Inc.), K. CHIBA, E. TSUKUDA, H. NAKASHIMA (Future University Hakodate), S. NIKI, Y. HASEGAWA, Y. BABA (The University of Tokyo), T. MATSUI, Y. MITSUISHI, N. MURAYAMA, M. MOCHIMARU, Y. YANO, A. YABE, H. YOSHIKAWA (Japan Science and Technology Agency)

Publishing Secretariat: Publication Office, Public Relations Department, AIST

Contact: *Synthesiology* Editorial Board

c/o Website and Publication Office, Public Relations Department, AIST

Tsukuba Central 2, 1-1-1 Umezono, Tsukuba 305-8568, Japan

Tel: +81-29-862-6217 Fax: +81-29-862-6212

E-mail: [synthesiology-ml@aist.go.jp](mailto:synthesiology-ml@aist.go.jp)

URL: [http://www.aist.go.jp/aist\\_e/research\\_results/publications/synthesiology\\_e](http://www.aist.go.jp/aist_e/research_results/publications/synthesiology_e)

● Reproduction in whole or in part without written permission is prohibited.

## 「Synthesiology」の趣旨 — 研究成果を社会に活かす知の蓄積 —

科学的な発見や発明が社会に役立つまでに長い時間がかかったり、忘れ去られ葬られたりしてしまうことを、悪夢の時代、死の谷、と呼び、研究活動とその社会寄与との間に大きなギャップがあることが認識されている。そのため、研究者自身がこのギャップを埋める研究活動を行なうべきであると考え。これまでも研究者によってこのような活動が行なわれてきたが、そのプロセスは系統立てて記録して論じられることがなかった。

このジャーナル「Synthesiology - 構成学」では、研究成果を社会に活かすために行なうべきことを知として蓄積することを目的とする。そのため本誌では、研究の目標設定と社会的価値、それに至る具体的なシナリオや研究手順、要素技術の統合のプロセスを記述した論文を掲載する。どのようなアプローチをとれば社会に生きる研究が実践できるのかを読者に伝え、共に議論するためのジャーナルである。

## *Aim of Synthesiology* — Utilizing the fruits of research for social prosperity —

There is a wide gap between scientific achievement and its utilization by society. The history of modern science is replete with results that have taken life-times to reach fruition. This disparity has been called the *valley of death*, or the *nightmare stage*. Bridging this difference requires scientists and engineers who understand the potential value to society of their achievements. Despite many previous attempts, a systematic dissemination of the links between scientific achievement and social wealth has not yet been realized.

The unique aim of the journal *Synthesiology* is its focus on the utilization of knowledge for the creation of social wealth, as distinct from the accumulated facts on which that wealth is engendered. Each published paper identifies and integrates component technologies that create value to society. The methods employed and the steps taken toward implementation are also presented.

Synthesiology 第8巻第1号 2015年2月 発行

編集 シンセシオロジー編集委員会

発行 独立行政法人 産業技術総合研究所



## Research papers

Proposal for technology architecture analysis

— *Application of the analysis method to the development of car navigation systems* —

T.NOMI and H.IKEDA

Clean and practical oxidation using hydrogen peroxide

— *Development of catalysis and application to fine chemicals* —

Y.KON, S.TANAKA and K.SATO

Development of plastic certified reference materials (CRMs) to cope with restrictions on hazardous substances

— *CRMs for analysis of heavy metals and brominated flame retardants regulated by RoHS directive* —

A.HIOKI, M.OHATA, S.MATSUYAMA and S.KINUGASA

Development of forging process for magnesium alloy continuous cast bars

— *Forging process utilizing grain refinement* —

N.SAITO, H.IWASAKI, M.SAKAMOTO, K.KANBARA and T.SEKIGUCHI

## Editorial policy

### Instructions for authors

### Aim of *Synthesiology*