

令和 6 年度

文部科学省 国家課題対応型研究開発推進事業

原子力システム研究開発事業

経年劣化耐性に優れた次世代ステンレス鋼  
溶接金属の設計指針提案

成果報告書

令和 7 年 3 月

国立大学法人 東北大学

本報告書は、文部科学省の原子力システム  
研究開発事業による委託業務として、国立大  
学法人 東北大学が実施した令和6年度「経年  
劣化耐性に優れた次世代ステンレス鋼溶接金  
属の設計指針提案」の成果を取りまとめたも  
のです。

## 目次

概略 .....	i
1. はじめに .....	1-1
2. 業務計画	
2.1 全体計画 .....	2-1
2.2 令和 6 年度の成果の目標および業務の実施方法 .....	2-3
3. 業務の実施内容および成果	
3.1 溶融凝固過程を考慮した熱時効硬化・ミクロ組織変化挙動評価 .....	3-1
3.1.1 溶接凝固過程毎に分類したフェライト相のキャラクタリゼーション【R4-R5】 ..	3-1
3.1.2 熱時効に伴うフェライト相硬化挙動ならびに ミクロ組織変化挙動評価【R4-R6】 .....	3-1
3.1.3 タスク(2)の結果が示唆する、 注視すべきミクロ組織変化シナリオの検証【R5-R6】 .....	3-3
3.2 データサイエンスを駆使した汎化性能の高いミクロ組織変化予測 .....	3-8
(再委託先：物質・材料研究機構、北海道科学大学)	
3.2.1 G 相析出予測・汎化性能評価【R4-R5】 .....	3-8
3.2.2 スピノーダル分解挙動予測【R4-R5】 .....	3-9
3.2.3 スピノーダル分解と G 相析出の連成挙動予測モデル構築【R4-R6】 .....	3-10
3.2.4 ミクロ組織変化に対する因子の総括【R6】 .....	3-17
3.3 応力腐食割れ進展抵抗性に優れた 2 相組織の創成 .....	3-53
3.3.1 粒界島状フェライト相分布組織の作製【R4-R5】 .....	3-53
3.3.2 島状フェライト相の成分・硬さのキャラクタリゼーション【R4-R5】 .....	3-53
3.3.3 島状フェライト相分布組織の SCC 進展抵抗性の評価【R5-R6】 .....	3-53
3.3 総合評価	
3.3.1 経年劣化耐性に優れた次世代ステンレス鋼溶接金属の設計指針提案【R6】 .....	3-64
3.4 研究推進【R4-R6】 .....	3-65
4. 結言 .....	4-1

## 表一覧

表 2. 1-1	研究年次計画.....	2-1
表 3. 1-1	熱時効試験条件.....	3-5
表 3. 1-2	15, 000 h 時効材における $\delta$ 相単体の平均換算ビッカース硬さ (押し込み荷重 : 3mN) .....	3-6
表 3. 2-1	本研究において実施した G 相析出計算の条件範囲.....	3-22
表 3. 2-2	本研究において実施した高 Cr 濃度域における G 相析出計算の改良後の条件範囲.....	3-22
表 3. 2-3	SUS316L および SUS304L の化学成分規格 .....	3-23
表 3. 2-4	表 3. 2-3 に示した各合金組成に対する $\square$ 相組成の計算結果.....	3-23
表 3. 2-5	900K におけるフェライト相の組成 (重量分率) .....	3-24
表 3. 2-6	$\alpha$ 相 (Fe リッチ相) の組成 (原子分率) .....	3-24
表 3. 2-7	$\alpha'$ 相 (Cr リッチ相) の組成 (原子分率) .....	3-24
表 3. 2-8	中性子照射下で熱時効したステンレス溶接金属 D316L 中の G 相粒径の実験結果[3. 2-8].....	3-25
表 3. 2-9	表 3. 2-8 に示した各中性子照射条件下における MEP のフィッティング結果.....	3-25
表 3. 2-10	各温度に対する中性子照射条件および非照射条件下における MEP の値.....	3-26
表 3. 2-11	中性子照射下で熱時効したステンレス溶接金属 D308L 中の G 相粒径の実験結果[3. 2-8].....	3-26
表 3. 2-12	表 3. 2-8 および表 3. 2-11 に示したステンレス溶接金属 D316L および D308L に 対する中性子照射下および非照射下における Time-Temperature-Precipitation (TTP) 線図計算結果 .....	3-26
表 3. 3-1	DCPD ならびに破面観察から求めたき裂進展量 .....	3-61

## 図一覧

図 2. 1-1	実施体制図.....	2-4
図 3. 1-1	各熱時効試験片の換算ビッカース硬さ (押し込み荷重 : 1.0 N) .....	3-5
図 3. 1-2	400 °C ・ 10, 000 h 時効材における $\delta$ 相の TEM 明視野像 .....	3-5
図 3. 1-3	475 °C ・ 1, 000 h 時効材における $\delta$ 相の TEM 明視野像 .....	3-5
図 3. 1-4	475 °C ・ 1, 000 h 時効材における $\delta$ 相の TEM-EDX マッピング結果 .....	3-6
図 3. 1-5	335 °C ・ 15, 000 h 時効材における $\delta$ 相の TEM 明視野像 .....	3-7
図 3. 1-6	400 °C ・ 15, 000 h 時効材における $\delta$ 相の TEM 明視野像 .....	3-7
図 3. 2-1	従来の研究[3. 2-8]で用いた SUS308L および SUS316L 溶接金属の組成.....	3-27
図 3. 2-2	本研究で用いた SUS316NG 母相および SUS316L 溶接金属の組成.....	3-28
図 3. 2-3	従来の研究[3. 2-8]で用いた SUS308L 溶接金属の 300 °C における スピノーダル分解前の $\alpha$ 相、スピノーダル分解後の $\alpha$ 相および $\alpha'$ 相の 組成の計算結果 .....	3-29

図 3.2-4	従来の研究[3.2-8]で用いた SUS308L 溶接金属の 300 °Cにおける スピノーダル分解前の $\alpha$ 相、スピノーダル分解後の $\alpha$ 相および $\alpha'$ 相の組成に 対する G 相析出挙動の計算結果 .....	3-30
図 3.2-5	従来の研究[3.2-8]で用いた SUS308L 溶接金属の 400 °Cにおける スピノーダル分解前の $\alpha$ 相、スピノーダル分解後の $\alpha$ 相および $\alpha'$ 相の組成の 計算結果 .....	3-31
図 3.2-6	従来の研究[3.2-8]で用いた SUS308L 溶接金属の 400 °Cにおける スピノーダル分解前の $\alpha$ 相、スピノーダル分解後の $\alpha$ 相および $\alpha'$ 相の組成に 対する G 相析出挙動の計算結果 .....	3-32
図 3.2-7	従来の研究[3.2-8]で用いた SUS316L 溶接金属の 300 °Cにおける スピノーダル分解前の $\alpha$ 相、スピノーダル分解後の $\alpha$ 相および $\alpha'$ 相の組成の 計算結果 .....	3-33
図 3.2-8	従来の研究[3.2-8]で用いた SUS316L 溶接金属の 300 °Cにおける スピノーダル分解前の $\alpha$ 相、スピノーダル分解後の $\alpha$ 相および $\alpha'$ 相の 組成に対する G 相析出挙動の計算結果 .....	3-34
図 3.2-9	従来の研究[3.2-8]で用いた SUS316L 溶接金属の 400 °Cにおける スピノーダル分解前の $\alpha$ 相、スピノーダル分解後の $\alpha$ 相および $\alpha'$ 相の組成の計算結果 .....	3-35
図 3.2-10	従来の研究[3.2-8]で用いた SUS316L 溶接金属の 400 °Cにおける スピノーダル分解前の $\alpha$ 相、スピノーダル分解後の $\alpha$ 相および $\alpha'$ 相の 組成に対する G 相析出挙動の計算結果 .....	3-36
図 3.2-11	本研究で用いた SUS316NG 母相の 300 °Cにおけるスピノーダル分解前の $\alpha$ 相、スピノーダル分解後の $\alpha$ 相および $\alpha'$ 相の組成の計算結果 .....	3-37
図 3.2-12	本研究で用いた SUS316NG 母相の 300 °Cにおけるスピノーダル分解前の $\alpha$ 相、スピノーダル分解後の $\alpha$ 相および $\alpha'$ 相の組成に対する G 相析出挙動の 計算結果 .....	3-38
図 3.2-13	本研究で用いた SUS316NG 母相の 400 °Cにおけるスピノーダル分解前の $\alpha$ 相 スピノーダル分解後の $\alpha$ 相および $\alpha'$ 相の組成の計算結果 .....	3-39
図 3.2-14	本研究で用いた SUS316NG 母相の 400 °Cにおけるスピノーダル分解前の $\alpha$ 相、スピノーダル分解後の $\alpha$ 相および $\alpha'$ 相の組成に対する G 相析出挙動の 計算結果 .....	3-40
図 3.2-15	本研究で用いた SUS316L 溶接金属の 300 °Cにおけるスピノーダル分解前の $\alpha$ 相、スピノーダル分解後の $\alpha$ 相および $\alpha'$ 相の組成の計算結果 .....	3-41
図 3.2-16	本研究で用いた SUS316L 溶接金属の 300 °Cにおけるスピノーダル分解前の $\alpha$ 相、スピノーダル分解後の $\alpha$ 相および $\alpha'$ 相の組成に対する G 相析出挙動の 計算結果 .....	3-42
図 3.2-17	本研究で用いた SUS316L 溶接金属の 400 °Cにおけるスピノーダル分解前の $\alpha$ 相、 スピノーダル分解後の $\alpha$ 相および $\alpha'$ 相の組成の計算結果 .....	3-43

図 3.2-18	本研究で用いた SUS316L 溶接金属の 400 °C におけるスピノーダル分解前の $\alpha$ 相、スピノーダル分解後の $\alpha$ 相および $\alpha'$ 相の組成に対する G 相析出挙動の計算結果 .....	3-44
図 3.2-19	機械学習モデルの構築に向けた G 相析出計算結果の概要 .....	3-45
図 3.2-20	機械学習予測モデルによる汎化性能の確認 (青：訓練データ、橙：検証データ (常用対数化処理)) .....	3-46
図 3.2-21	析出データにおける因子の相関関係 .....	3-46
図 3.2-22	スピノーダル分解開始時間評価モデルと 1nm, 3nm の 成長予測モデルとの融合 .....	3-47
図 3.2-23	GitHub に開設された G 相パラメータ公開のための web サイト ( <a href="https://github.com/materialsintegration/Thermodynamic-parameters-for-G-phase">https://github.com/materialsintegration/Thermodynamic-parameters-for-G-phase</a> ) ..	3-47
図 3.2-24	表 3.2-4 に示した各合金の $\alpha$ 相組成に対する 300 °C における G 相体積分率計算結果 .....	3-48
図 3.2-25	表 3.2-4 に示した各合金の $\alpha$ 相組成に対する 300 °C における G 相平均粒径計算結果 .....	3-48
図 3.2-26	31%Cr においてスピノーダル分解が十分に起きた後の Cr 量等高線 (上)、 その状態からの G 相の 1nm 成長時間 (左下) と 3nm 成長時間の等高線 (右下) .	3-49
図 3.2-27	Fe-31%Cr に対するスピノーダル分解開始時間後の Cr 量等高線 (上)、そこを 起点とした G 相の 1nm 成長時間 (左下)、3nm 成長時間の等高線 (右下) .....	3-50
図 3.2-28	Fe-35%Cr に対するスピノーダル分解開始時間後の Cr 量等高線 (上)、そこを 起点とした G 相の 1nm 成長時間 (左下)、3nm 成長時間の等高線 (右下) .....	3-51
図 3.2-29	各温度に対する中性子照射条件および非照射条件における MEP の値 .....	3-52
図 3.2-30	表 3.2-8 および表 3.2-11 に示したステンレス溶接金属 D316L および D308L に対する中性子照射下および非照射下における Time-Temperature-Precipitation (TTP) 線図計算結果 .....	3-52
図 3.3-1	熱処理条件 (設定値) の一例 .....	3-56
図 3.3-2	試験チャンバー内部ならびに加熱中の様子 .....	3-56
図 3.3-3	電子ビーム溶接試験体からの CT 試験片採取位置のイメージ .....	3-56
図 3.3-4	大気中予き裂導入例 .....	3-57
図 3.3-5	高温水中 SCC 進展速度評価試験ループの概略図 .....	3-57
図 3.3-6	環境中予き裂導入条件 .....	3-57
図 3.3-7	高温水中 SCC き裂進展試験中の DCPD 信号から求めたき裂進展量の経時変化 ....	3-58
図 3.3-8	各試験片の破面 SEM 観察結果 .....	3-58
図 3.3-9	破面観察ならびに DCPD 信号から求めたき裂進展速度 .....	3-59
図 3.3-10	試験片 DCPD5: 1430 °C-3s-(1) のき裂進展領域における $\delta$ 相分布 .....	3-60
図 3.3-11	試験片 DCPD1: As-received (no IH) のき裂断面 SEM 観察結果 .....	3-60
図 3.3-12	試験片 DCPD2: 1430 °C-3s-(2) のき裂断面 SEM 観察結果 .....	3-60
図 3.3-13	試験片 DCPD3: 1430 °C-5s-(2) のき裂断面 SEM 観察結果 .....	3-61
図 3.3-14	試験片 DCPD4: As-received (no IH) のき裂断面 SEM 観察結果 .....	3-61

図 3.3-15	試験片 DCPD5: 1430 °C-3s-(1) のき裂断面 SEM 観察結果 .....	3-62
図 3.3-16	試験片 DCPD6: 1430 °C-5s-(1) のき裂断面 SEM 観察結果 .....	3-62
図 3.3-17	試験片 DCPD3: 1430 °C-5s-(2) のき裂断面 SEM (+EDX) 観察結果 .....	3-63
図 3.3-18	試験片 DCPD5: 1430 °C-3s-(1) のき裂断面 SEM (+EDX) 観察結果 .....	3-63

## 概略

国内外における原子力システム研究開発動向に基づけば、次世代炉・新型炉においても、軽水炉で多くの実績があるステンレス鋼が主たる構造材料として使用される可能性が極めて高い。すなわち、ステンレス鋼溶接継手がプラントに数多く存在し、広範な環境条件に曝されることが予想される。

本研究では、オーステナイト系ステンレス鋼溶接金属に数～十数%含まれる $\delta$ -フェライト相に着目して、将来顕在化する可能性が高い劣化モード（熱時効脆化ならびに応力腐食割れ）への耐性を有する次世代ステンレス鋼の設計指針を提案する。具体的には、(1) 溶融凝固過程を考慮した熱時効硬化・ミクロ組織変化挙動評価、(2) データサイエンスを駆使した汎化性能の高いミクロ組織変化予測モデル構築、(3) 応力腐食割れ進展抵抗性に優れた 2 相組織の創成、をデータ駆動型の研究アプローチにより推進することを目的としている。以下に、3 ヶ年計画の 3 年目である令和 6 年度の業務実績を述べる。

### （１）溶融凝固過程を考慮した熱時効硬化・ミクロ組織変化挙動評価

#### ①熱時効に伴うフェライト相硬化挙動ならびにミクロ組織変化挙動評価

令和 5 年度に引き続き、部位毎に分類したフェライト相の熱時効データを拡充するとともに、硬化とミクロ組織変化の関係をメカニズムの観点から考察した。

#### ②タスク(2)の結果が示唆する、注視すべきミクロ組織変化シナリオの検証

令和 5 年度までに (2) で蓄積した、広範な温度条件下における G 相析出計算結果を受けて、追加の熱時効試験は、必要ないと判断したが、時効温度が 450 °C を超えた場合に $\sigma$ 相の析出が示唆されたことから、本事業で採用した時効温度範囲（288～400 °C）においては $\sigma$ 相の析出が無いことを確認した。

### （２）データサイエンスを駆使した汎化性の高いミクロ組織変化予測

#### ①スピノーダル分解と G 相析出の連成挙動予測モデル構築（再委託先：NIMS、北海道科学大学）

スピノーダル分解モデルから得られた組成情報と G 相析出挙動の機械学習モデルの弱連成計算を行った。（NIMS）

これに基づき、G 相析出の様相を析出母相の組成分布に重畳したマップを作成することで、G 相析出・成長挙動とミクロ組織の関係を詳細に検討できるようにした。（北海道科学大学）

#### ②ミクロ組織変化に対する因子の総括（再委託先：北海道科学大学、NIMS）

ミクロ組織変化予測結果を Fe-Cr 二元系状態図上に可視化した。（NIMS）

NIMS の結果に基づき、ミクロ組織変化に対する添加元素および温度の効果を総括した。

（北海道科学大学）

### （３）応力腐食割れ進展抵抗性に優れた 2 相組織の創成

#### ①島状フェライト相分布組織の SCC 進展抵抗性の評価

令和 5 年度に作製した、粒界に島状フェライト相が広く分布した試験片を用いて、高温水中 SCC 試験を実施し、フェライト相の SCC 進展抵抗性を評価した。オートクレーブを用いた高温水中 SCC 進展試験と電位差法によるき裂進展モニタリングを併用することによって、SCC 進展速度



データを取得する手法を中心に検討した。粒界に島状フェライト相が広く分布した試験片の SCC 進展速度と母材のみの進展速度を比較することで、フェライト相の進展抵抗効果を定量的に求めた。破面解析または、き裂先端の高解像度観察により、フェライト相のき裂進展抵抗への寄与をメカニズムの観点から検討した。

#### (4) 総合評価

##### ①経年変化耐性に優れた次世代ステンレス鋼溶接金属の設計指針提案

(1)、(2)、(3)の連携によって得られた知見を総括し、熱時効硬化ならびに応力腐食割れ耐性に優れたステンレス鋼溶接金属の設計指針を提案した。熱時効硬化については、使用温度範囲に応じた最も熱時効劣化感受性の低いフェライト組成の設計指針を検討した。応力腐食割れに関しては、き裂進展抵抗性に優れたフェライト分布形態と、フェライト相の熱時効硬化の速度論を検討した。

#### (5) 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間における連携を密にして研究を進めるとともに、研究実施計画等を協議するため業務参加者が集まって委員会を開催した。

令和 6 年度は複数回のオンライン打ち合わせに加えて、対面での打ち合わせを実施した。研究タスク間の連携や課題、研究期間を通じた成果まとめなどについて議論を実施することで、効率的に業務を推進できた。

以上、3 カ年計画の 3 年目である令和 6 年度の業務項目を実施し、所期の目標を達成した。

#### 【用語説明】

・ G 相 : Ni, Si, Mo 等を主成分とする面心立方 (fcc) 構造の金属間化合物。格子定数は約 1.1 nm。二相ステンレス鋼においては、スピノーダル分解が生じる温度よりもやや高い温度 (400 °C 以上) における報告例が多く、フェライト粒内における析出またはクラスタリングによりフェライト相の硬化と脆化に寄与する。

・ スピノーダル分解 : 二種類以上の元素が溶け合った単一の固溶体が時間とともに分離して二つ以上の相に分かれる現象を相分離という。相分離のうち、核の発生を必要とせず、小さな濃度ゆらぎでも原子の拡散によって濃度差が拡大していく相分離をスピノーダル分解という。濃度ゆらぎの波は、特定の波長のとき成長速度が大きくなるため、スピノーダル分解によって生成した組織は周期的な変調構造を呈することが多い。

・  $\sigma$  相 : 主に鉄とクロムで構成される金属間化合物であり、高 Cr ステンレス鋼や耐熱鋼を 500~900 °C に長時間加熱すると析出し、 $\sigma$  相脆化の要因になる。

・  $\alpha$  相 : 純鉄において、911 °C 以下の温度領域にある鉄の相。

・  $\delta$  相 : 純鉄において、1,392-1,536 °C (融点) の温度領域にある鉄の相



## 1. はじめに

国内外の原子力システム研究開発動向に基づけば、次世代炉・新型炉においても、軽水炉で多くの実績があるステンレス鋼が主たる構造材料として使用される可能性が極めて高い。すなわち、ステンレス鋼溶接継手がプラントに数多く存在し、広範な環境条件に曝されることが予想される。

本研究では、オーステナイト系ステンレス鋼溶接金属に数～十数%含まれる $\delta$ -フェライト相に着目して、新型炉においても将来顕在化する可能性が高い劣化モード（熱時効脆化ならびに応力腐食割れ（以下、SCC））への耐性を有する次世代ステンレス鋼の設計指針を提案することを目的とする。

2 相ステンレス鋼の使用上の留意点として、300 °C程度以上での長期間の使用により、フェライト相内でスピノーダル分解やG相（Ni, Si, Mn 主体の金属間化合物）の析出が生じ、これに伴い脆化が生じることが挙げられる。オーステナイト系ステンレス鋼製の構造物の溶接金属も、フェライト相とオーステナイト相から構成される2相組織である。例えば、原子炉容器の耐食性確保のために使用されているステンレスクラッド材や、原子炉再循環系配管の溶接部にもステンレス溶接金属が使用されている。申請者らは、316 L 鋼溶接金属の $\delta$ -フェライト相（以下、 $\delta$  相）が300 °C台前半の温度域においてもスピノーダル分解による相分離により硬化すること、加えて硬化挙動が $\delta$ 相形態・成分の影響を大きく受けること、を指摘している。

ステンレス鋼のSCCに関しては、1970年代の熱鋭敏化を起因とした事象に始まり、1990年代からは鋭敏化対策材として開発された低炭素ステンレス鋼においても顕在化している。SCCの一貫した特徴として、溶接部近傍に発生するケースが多いことが挙げられ、近年ではき裂が溶接金属内に進展する事例も多く報告されている。申請者らは、沸騰水型軽水炉の316 L ステンレス鋼製再循環系配管溶接部で顕在化しているSCCき裂を対象として、溶融境界近傍の粒界に分布する島状 $\delta$ 相が、き裂停留をもたらす微視組織要因であることを明らかにし、SCCき裂停留モデルを提案している。この知見に基づけば、特定の熱処理によってステンレス鋼の粒界に体積分率1%程度の $\delta$ 相が広く分布する2相組織を創成することで、仮にSCCが発生してもき裂が準巨視的サイズ以下で停留する（健全性の観点から実質的にSCCき裂が問題にならない）ステンレス鋼の開発に繋がると着想した。申請者らの近年の研究で、その有効性が確認されている。一方で $\delta$ 相の熱時効脆化は、機械特性の低下のみならず、溶接金属における高温水中SCC進展を加速することが報告されている。

以上から申請者は、成分・形態の異なる種々の $\delta$ 相の熱時効に伴うマイクロ組織変化を高精度に予測できる手法の開発が必要と考え、計算科学の専門家達（本研究提案の分担者）と連携して研究を進めてきており、この過程で得られた成果ならびに技術的課題から、本研究提案の着想を得ている。計算側からのアプローチについて研究動向と近年の成果を次に述べる。G相に関する実験データは少数ではあるが取得されており、さらに一部の実験データを再現するようにCALPHAD法（計算熱力学）におけるG相の熱力学モデリング（TDB：熱力学データベース）の構築が行われている。しかし、実験データを包括的に検証し、実験データの不整合を考慮しながら構築されたG相の熱力学モデルはこれまでには存在しない。そこで申請者らは、過去の実験データを精査し、CALPHAD法における副格子モデルの複雑化、第一原理計算を用いた精緻なデータを大量に取得し、熱力学モデルの基礎を確立するとともに、データ科学的な側面から組成や温度に対して汎用性を持つG相熱力学モデルの構築を行ってきた。さらに原子炉の運転温度に相当する温度域に

対応する拡散のメカニズムを考慮することで、高温の拡散データをうまく活用しながら G 相が成長する際の平均粒径や数密度の計算を試みてきた。G 相の成長に関する定量的な評価もこれまでは報告がなく、申請者らの取り組みは精度ならびに汎化性能の観点から改良の余地はあるものの、高い独創性を有していると判断できる。

申請者らが実施した従来研究では、基本的には既報あるいは申請者らが取得した熱時効に伴う  $\delta$  相内マイクロ組織変化データを真として、これを計算で再現できるような熱力学モデルの開発ならびに精緻化を実施してきた。実機の運転温度範囲や前提とすべきマイクロ組織変化機構についても既に絞り込まれており、上述した通りの成果が得られている。一方で新型炉向け構造材料については、飛躍的な安全性・健全性担保の観点から、顕在化していない劣化事象も考慮したプロアクティブな研究開発が望ましいと着想した。しかしながら、新型炉では複数の炉型が提案されており使用条件が広範なこと、そして従来知見が存在しないため、従来型の研究アプローチには限界（相当の時間とコストが必要）があると考えられる。

そこで、革新的なデータサイエンスの活用（例えば、スパースモデリングを用いた熱力学モデルのパラメータ最適化技術や、機械学習モデルを通じた任意組成や任意温度における G 相析出挙動の瞬時予測）を通じた研究方針とした。実験側タスクにおいてもデータ駆動型の研究アプローチを新たに採用する。例えばこれまで未経験の潜在的劣化事象の存在を計算科学による検討から探索し、この仮説を検証するための実験計画を策定・実施することで、従来手法では成し得なかった新知見の獲得に繋がる。すなわち本研究は、全く新しい発想に基づいたチャレンジングな内容であると判断できる。

本研究目的を達成することで、次世代炉・新型炉の構造材料として大きな役割を担うと考えられるオーステナイト系ステンレス鋼溶接部の飛躍的な信頼性向上に繋がることが期待される。熱時効脆化に関しては、炉型ならびに部位によって使用温度条件が広範となるが、それぞれに最適な溶接組織・成分の設計指針を提案できる。また、過酷条件下での使用に関しては、精緻な寿命予測を可能とすることで検査や補修・取り替え方針の技術的根拠を示すことができる。黎明期から現在までプラント稼働率低下の大きな要因とされてきた SCC については、微視き裂が発生しても進展抵抗性の高い金属組織を実現することで、実質的な SCC の克服へと繋がると思われる。また、本研究で開発する熱力学モデルや機械学習モデルは汎用性が高く、様々な課題に対する応用が期待されるため、論文による成果発表を経た後、最終的には誰でもアクセス可能な成果物として公開する。共有するための新しい枠組みとしては、インターネット上に公開する場所として、NIMS が運営するデジタルオブジェクトのリポジトリや一般に公開されている GitHub などを活用し、成果物の利用を促し適切な還元を行う。

## 2. 業務計画

### 2.1 全体計画

本業務の研究年次計画を表 2.1-1 に、実施体制図を図 2.1-1 に示す。

表 2.1-1 研究年次計画

研究年次計画（線表）			
研究項目	令和4年度	令和5年度	令和6年度
<u>(1) 溶融凝固過程を考慮した熱時効硬化・マイクロ組織変化挙動評価</u> ①溶接凝固過程毎に分類したフェライト相のキャラクタリゼーション ②熱時効に伴うフェライト相硬化挙動ならびにマイクロ組織変化挙動評価 ③タスク(2)の結果が示唆する、注視すべきマイクロ組織変化シナリオの検証	溶接組織の分類 熱時効試験片の作製	フェライト相硬さ・成分評価 熱時効硬化・マイクロ組織変化挙動評価 熱時効試験計画の策定	熱時効挙動評価
<u>(2) マイクロ組織変化予測モデル構築</u> ①G相析出予測・汎化性能評価 ②スピノーダル分解挙動予測 ③スピノーダル分解とG相析出の連成モデル構築 ④マイクロ組織変化に対する因子の総括	TDB精緻化・汎化性能評価(北科大・NIMS) 予測モデル構築(NIMS) G相計算・連成計算評価(北科大・NIMS)	可視化・総括(北科大・NIMS)	
<u>(3) 応力腐食割れ進展抵抗性に優れた2相組織の創成</u> ①粒界島状フェライト相分布組織の作製 ②島状フェライト相の成分・硬さのキャラクタリゼーション ③島状フェライト相分布組織のSCC進展抵抗性の評価	試験片作製・予備試験 島状 $\delta$ 相の成分・硬さ評価	島状 $\delta$ 相分布組織の作製 試験片作製・予備試験	高温水中 SCC 試験
<u>(4) 総合評価</u> ①経年劣化耐性に優れた次世代ステンレス鋼溶接金属の設計指針提案			成果まとめ・指針提案

#### 4. 実施体制（体制図）

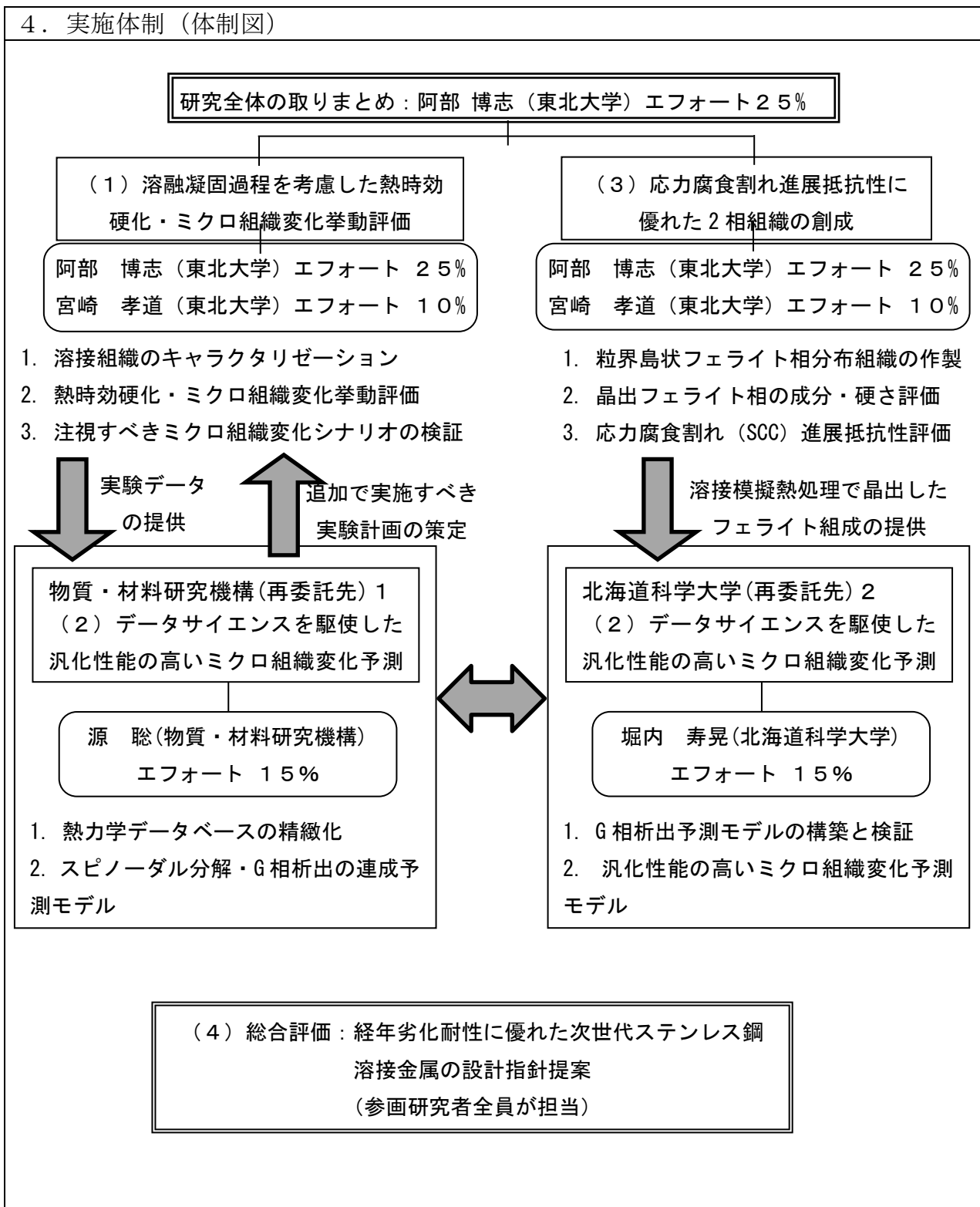


図 2. 1-1 実施体制図

## 2.2 令和6年度の成果の目標および業務の実施方法

本研究では、オーステナイト系ステンレス鋼溶接金属に数～十数%含まれる $\delta$ -フェライト相に着目して、将来顕在化する可能性が高い劣化モード（熱時効脆化ならびに応力腐食割れ）への耐性を有する次世代ステンレス鋼の設計指針を提案する。具体的には、(1)溶融凝固過程を考慮した熱時効硬化・ミクロ組織変化挙動評価、(2)データサイエンスを駆使した汎化性の高いミクロ組織変化予測モデル構築、(3)応力腐食割れ進展抵抗性に優れた2相組織の創成、をデータ駆動型の研究アプローチにより推進する。

### （1）溶融凝固過程を考慮した熱時効硬化・ミクロ組織変化挙動評価

#### ①熱時効に伴うフェライト相硬化挙動ならびにミクロ組織変化挙動評価

令和5年度に引き続き、部位毎に分類したフェライト相の熱時効データを拡充するとともに、硬化とミクロ組織変化の関係をメカニズムの観点から考察する。

#### ②タスク(2)の結果が示唆する、注視すべきミクロ組織変化シナリオの検証

令和5年度までに(2)で蓄積した、広範な温度条件下におけるG相析出計算結果を受けて、追加の熱時効試験は、必要ないと判断したが、時効温度が450℃を超えた場合に $\sigma$ 相の析出が示唆されたことから、本事業で採用した時効温度範囲（288～400℃）においては $\sigma$ 相の析出が無いことを確認する。

### （2）データサイエンスを駆使した汎化性の高いミクロ組織変化予測

#### ①スピノーダル分解とG相析出の連成挙動予測モデル構築（再委託先：NIMS、北海道科学大学）

スピノーダル分解モデルから得られた組成情報とG相析出挙動の機械学習モデルの弱連成計算を行う。（NIMS）

これに基づき、G相析出の様相を析出母相の組成分布に重畳したマップを作成することで、G相析出・成長挙動とミクロ組織の関係を詳細に検討できるようにする。（北海道科学大学）

#### ②ミクロ組織変化に対する因子の総括（再委託先：北海道科学大学、NIMS）

ミクロ組織変化予測結果をFe-Cr二元系状態図上に可視化する。（NIMS）

NIMSの結果に基づき、ミクロ組織変化に対する添加元素および温度の効果を総括する。（北海道科学大学）

### （3）応力腐食割れ進展抵抗性に優れた2相組織の創成

#### ①島状フェライト相分布組織のSCC進展抵抗性の評価

令和5年度に作製した、粒界に島状フェライト相が広く分布した試験片を用いて、高温水中SCC試験を実施し、フェライト相のSCC進展抵抗性を評価した。オートクレーブを用いた高温水中SCC進展試験と電位差法によるき裂進展モニタリングを併用することによって、SCC進展速度データを取得する手法を中心に検討する。粒界に島状フェライト相が広く分布した試験片のSCC進展速度と母材のみの進展速度を比較することで、フェライト相の進展抵抗効果を定量的に求める。破面解析または、き裂先端の高解像度観察により、フェライト相のき裂進展抵抗への寄与をメカニズムの観点から検討する。

#### (4) 総合評価

##### ①経年変化耐性に優れた次世代ステンレス鋼溶接金属の設計指針提案

(1)、(2)、(3)の連携によって得られた知見を総括し、熱時効硬化ならびに応力腐食割れ耐性に優れたステンレス鋼溶接金属の設計指針を提案する。熱時効硬化については、使用温度範囲に応じて最も熱時効劣化感受性の低いフェライト組成の設計指針を検討する。応力腐食割れに関しては、き裂進展抵抗性に優れたフェライト分布形態と、フェライト相の熱時効硬化の速度論を検討する。

#### (5) 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間における連携を密にして研究を進めるとともに、研究実施計画等を協議するため業務参加者が集まって委員会を開催する。



### 3. 業務の実施内容及び成果

#### 3.1 溶融凝固過程を考慮した熱時効硬化・ミクロ組織変化挙動評価

##### 3.1.1 溶接凝固過程毎に分類したフェライト相のキャラクタリゼーション【R4-R5】

###### 【令和5年度までの実施内容および成果（概要）】

令和4年度は、2相凝固組織を有するステンレス鋼溶接金属試料に対して、着目すべき部位毎に金属顕微鏡を用いた組織観察や局所的なフェライト率および分布形態の観点から、金属組織の特徴を調べ分類した。316 L ステンレス鋼溶接試料を供試材として選定した。これに対し、溶接組織の観察とフェライト率測定を実施した。これらの特徴と溶接凝固過程を考慮して、溶接金属中央部と、溶融境界近傍の $\delta$ 相に分類して、熱時効に伴う硬化挙動ならびにミクロ組織変化挙動を評価する方針とした。

令和5年度は、上記で分類した部位毎のフェライト相の化学組成ならびに初期硬さデータを取得した。具体的には、令和4年度に確立した、溶接部中央と溶融境界近傍の $\delta$ -フェライト相を分けて評価する方針に従い、令和5年度も引き続きそれらの化学組成ならびに初期硬さデータを取得した。得られた知見は、熱時効に伴う硬化挙動ならびにミクロ組織変化挙動と合わせて評価・考察する方針とした。

##### 3.1.2 熱時効に伴うフェライト相硬化挙動ならびにミクロ組織変化挙動評価【R4-R6】

###### 【令和5年度までの実施内容および成果（概要）】

令和4年度は、上記項目3.1.1で分類した組織を含む熱時効試験片を作製し、300℃台前半から400℃台後半の温度範囲を中心に、複数の温度条件下で等温熱時効処理を開始した。従来の軽水炉使用温度範囲に加えて、より高温側のステンレス鋼溶接金属の熱時効挙動の最新知見を調査してまとめ、熱時効条件を決定した。溶融境界近傍を含むように熱時効試験片を作製した。ステンレス鋼溶接金属の熱時効硬化挙動における知見に基づき、熱時効温度を288℃、335℃、400℃と設定した。それぞれの温度条件下において、時効時間を変数として熱時効硬化挙動を評価する方針とした。

令和5年度は、熱時効処理が完了した試験片から随時、熱時効に伴うフェライト相の硬化挙動ならびにミクロ組織変化（スピノーダル分解やG相析出など）を評価した。時効温度の異なる3種の試料において、熱時効により $\delta$ 相が硬化した。一方で、時効温度毎の時効硬化挙動においては、差が明確には認められなかった。また、熱時効材の $\delta$ 相TEM観察結果に基づけば、スピノーダル分解やG相析出を示唆する特徴は認められなかった。したがって、得られた硬さデータの妥当性ならびにミクロ組織変化との相関については、引き続き令和6年度も検討する必要があると判断された。

###### 【令和6年度の実施内容および成果】

###### (1) 概要

令和5年度に引き続き、部位毎に分類したフェライト相の熱時効データを拡充するとともに、硬化とミクロ組織変化の関係をメカニズムの観点から考察した。

## (2) 研究内容ならびに成果

令和4年度に策定した熱時効試験条件を表3.1-1に示す。熱時効時間は最大で10,000 hとしているが、熱時効硬化挙動に応じて10,000 h超の熱時効処理も可能なように、それぞれの温度条件下で予備試験片も準備した。令和6年度は、10,000 h時効材に加えて、15,000 h時効材についても硬化挙動ならびにマイクロ組織変化を調査した。また、令和5年度は5,000 h時効材においても、明確なマイクロ組織変化が認められなかったことから、当初計画にはなかった475 °C・1,000 h時効材を作製し、硬さならびにマイクロ組織変化を調査した。

316 L 溶接試料の $\delta$ 相の硬さを、ダイナミック超微小硬度計(DUH-211, SHIMADZU)を用いて測定した。令和6年度は、令和5年度より大きな押し込み荷重を採用し、試料極表面の性状の硬さへの影響が相対的に小さい条件下において硬化挙動を調査する方針とした。押し込み荷重は1.0 Nとした。得られた換算ビッカース硬さをそれぞれ図3.1-1に示す。大きな押し込み荷重を選択したため、 $\delta$ 相・ $\gamma$ 相両方の硬さを含んだ値となっていることに注意が必要であるが、時効温度288 °Cならびに335 °Cにおいては熱時効に伴う硬化は明瞭でなかったのに対し、時効温度400 °Cならびに475 °Cでは時効時間が長くなるにつれ硬さが上昇する傾向が認められた。

次に、各時効材における $\delta$ 相のマイクロ組織変化ならびに成分分布を、透過型電子顕微鏡(TEM)と付属するエネルギー分散型X線分析(EDX)を用いて評価した。400 °C・10,000 hならびに475 °C・1,000 h時効材において、スピノーダル分解の特徴と合致するまだら模様[3.1-1~4]が認められた(図3.1-2, 3)。また、475 °C時効材においては、スピノーダル分解に加えて別のマイクロ組織変化が起きていることが考えられた。図3.1-4にEDXマッピング結果を示す。 $\delta$ 相内にNi-Si-Moが濃化した領域が形成されていることがわかる。また、 $\delta$ - $\gamma$ 界面において、MoならびにSiの顕著な濃縮が認められた。Ni-Si-Mo濃化領域は、G相前駆体クラスターであると考えられた。後段のタスク3.2.3における計算結果によれば、Mn含有量が非常に少ない場合においてもG相の析出・成長が促進される場合もあることから、MnはG相の必須構成元素ではないと考えられ、MnとMoを含む合金においては、G相の第2副格子を主として占有するのはMnではなくMoである。本タスクの実験結果は、これと整合する結果と考えられた。また、2相ステンレス鋳鋼CF8Mについて、400 °C・1500 時間時効材のフェライト相を3Dアトムプローブ分析した結果、Cr濃化領域とNi-Siクラスターに対応して、Moが濃化していると報告されている[3.1-5]。本研究で認められたMo濃化領域とも特徴が類似していることから、スピノーダル分解によるCr濃度変動とG相の形成の両方に対して、Moが加速因子として影響する可能性が考えられた。15,000 h時効材に対しては、令和5年度同様に押し込み荷重3 mNで $\delta$ 相単体の硬さを評価した。結果を表3.1-2に示す。荷重が極めて小さいことから全体的に換算ビッカース硬さが大きな値を示しているものの、いずれの時効温度においても15,000 h時効により明確に硬化していることが分かる。しかしながら、時効材については硬さのバラツキが依然として大きく、部位毎の熱時効硬化挙動の違いを議論するのは困難と考えられた。

TEMによる $\delta$ 相観察結果を図3.1-5, 6に示す。335 °C時効材においても、15,000 h時効からスピノーダル分解を示唆するまだら模様がわずかに観察された。また10,000 h時効材においてもまだら模様が認められていた400 °C時効材においては、15,000 hまで時効することでまだら模様がより鮮明に観察された。

以上から、400 °C以下の時効温度領域において、本研究の熱時効条件範囲では $\delta$ 相の硬化に対

応する主たるマイクロ組織変化はスピノーダル分解であると考えられた。一方で、475 °Cにおいては G 相前駆体と考えられる Ni-Si-Mo クラスターならびに Mo 濃化領域が形成されていた。

### (3) まとめ

令和 5 年度に引き続き、部位毎に分類したフェライト相の熱時効データを拡充するとともに、硬化とマイクロ組織変化の関係をメカニズムの観点から考察した。400 °C以下の時効温度領域において、本研究の熱時効条件範囲では  $\delta$  相の硬化に対応する主たるマイクロ組織変化はスピノーダル分解であると考えられた。一方で、475 °Cにおいては G 相前駆体と考えられる Ni-Si-Mo クラスターならびに Mo 濃化領域が形成されていた。この結果は、後段のタスク 3.2.3 における計算結果「Mn と Mo を含む合金においては、G 相の第 2 副格子を主として占有するのは Mn ではなく Mo である。」と整合すると考えられた。

### 3.1.3 タスク (2) の結果が示唆する、注視すべきマイクロ組織変化シナリオの検証【R5-R6】

#### 【令和 5 年度までの実施内容および成果（概要）】

令和 5 年度は、項目 3.2 で蓄積した広範な温度条件下における G 相析出計算結果を受けて、健全性担保の観点から注視すべきマイクロ組織変化シナリオを抽出した。これを実験的に検証するための熱時効試験が上記で実施されているか検討し、必要に応じて追加の熱時効試験を策定した。

広範な温度条件下における平衡相計算結果に基づくと、450 °C超において  $\sigma$  相の析出が示唆されたため、450 °C超の熱時効試験は適切な温度加速条件から逸脱すると考えられた。したがって、現在実施中の熱時効試験において修正・追加の必要はないと判断した。

#### 【令和 6 年度の実施内容および成果】

##### (1) 概要

令和 5 年度までに計算側タスク 3.2 で蓄積した、広範な温度条件下における G 相析出計算結果を受けて、追加の熱時効試験は必要ないと判断したが、時効温度が 450 °Cを超えた場合に  $\sigma$  相の析出が示唆されたことから、本事業で採用した時効温度範囲（288～400 °C）においては  $\sigma$  相の析出が無いことを確認した。

##### (2) 研究内容ならびに成果

上記 3.1.2 で述べた通り、本事業で採用した時効温度範囲（288～400 °C）においてはスピノーダル分解のみが認められ、 $\sigma$  相に相当すると考えられるマイクロ組織変化の兆候は一切認められなかった。当初計画には無かった、475 °Cにおける時効処理を 1,000 h まで実施したが、スピノーダル分解ならびに G 相前駆体クラスターの形成のみが認められ、同様に  $\sigma$  相形成を示唆する組織変化は認められなかった。

##### (3) まとめ

令和 5 年度までに計算側タスク 3.2 で蓄積した、広範な温度条件下における G 相析出計算結果を受けて、追加の熱時効試験は必要ないと判断したが、時効温度が 450 °Cを超えた場合に  $\sigma$  相の析出が示唆されたことから、本事業で採用した時効温度範囲（288～400 °C）においては  $\sigma$  相の

析出が無いことを確認した。当初計画に加えて、熱時効による  $\delta$  相のマイクロ組織変化が期待できる 475 °C において 1,000 h の熱時効を実施し、 $\delta$  相の TEM 観察を実施した。その結果、当該温度においても、 $\sigma$  相の形成を示唆する特徴は認められなかった。

#### 参考文献

- 3.3-1 M.K. Miller and J. Bentley: Proc. 3rd Conf. on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems-Water Reactors, TMS-AIME, Warrendale, PA, 1988, pp. 341-49.
- 3.3-2 H.M. Chung and O.K. Chopra: Proc. 3rd Conf. on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems-Water Reactors, TMS-AIME, Warrendale, PA, 1988, pp. 359-70.
- 3.3-3 K.L. Weng, H.R. Chen, and J.R. Yang: Mater. Sci. Eng. A, 2004, vol. 379, pp. 119-132.
- 3.3-4 H. Abe and Y. Watanabe, METALLURGICAL AND MATERIALS TRANSACTIONS A, 39A, 2008, pp.1392-1398.
- 3.3-5 T. G. Lach, T. Sang, and K. J. Leonard, Journal of Nuclear. Materials, 2017, pp. 1-15.

表 3.1-1 熱時効試験条件

Temperature, °C	Aging time, h			
288	1,000	5,000	10,000	10,000 + $\alpha$
335	1,000	5,000	10,000	10,000 + $\alpha$
400	1,000	5,000	10,000	10,000 + $\alpha$

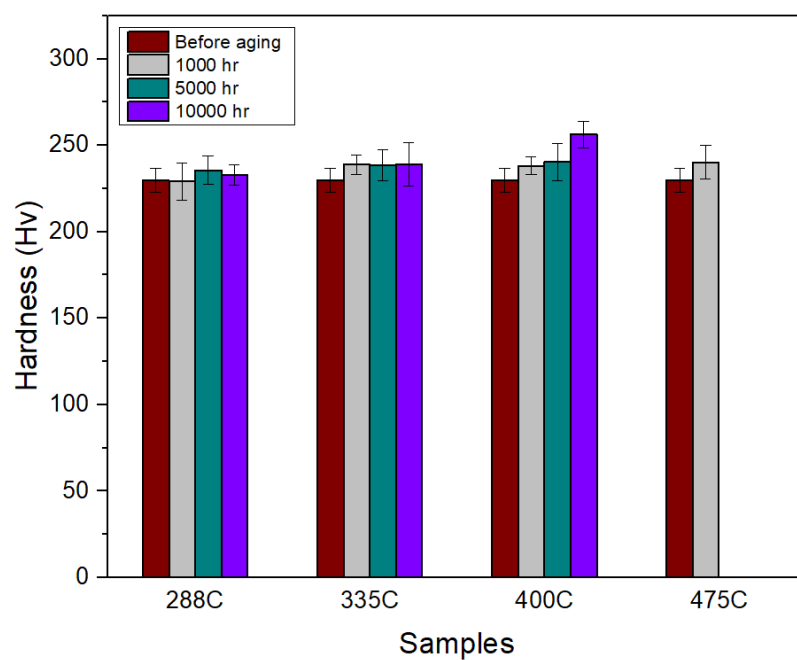


図 3.1-1 各熱時効試験片の換算ビッカース硬さ（押し込み荷重：1.0 N）

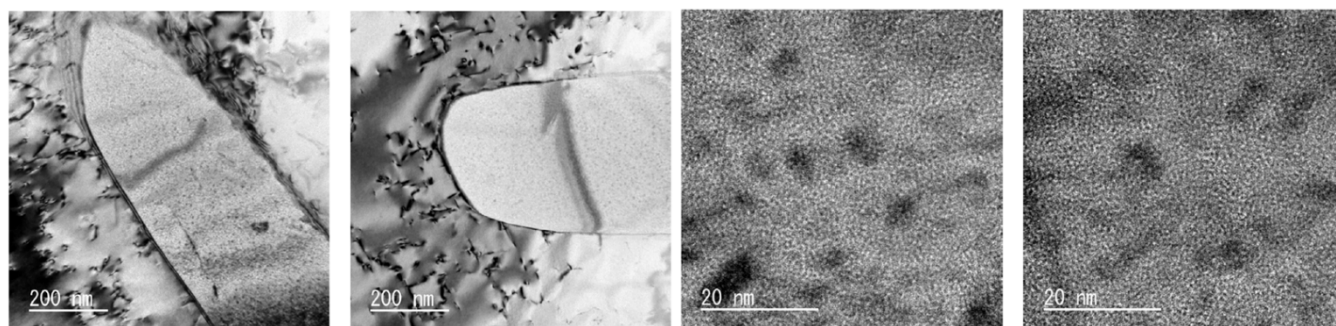


図 3.1-2 400 °C・10,000 h 時効材における  $\delta$  相の TEM 明視野像

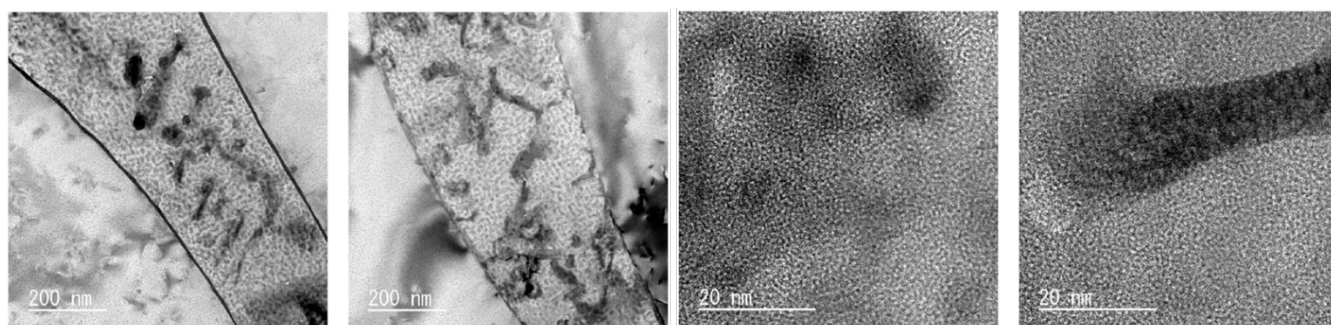


図 3.1-3 475 °C・1,000 h 時効材における  $\delta$  相の TEM 明視野像



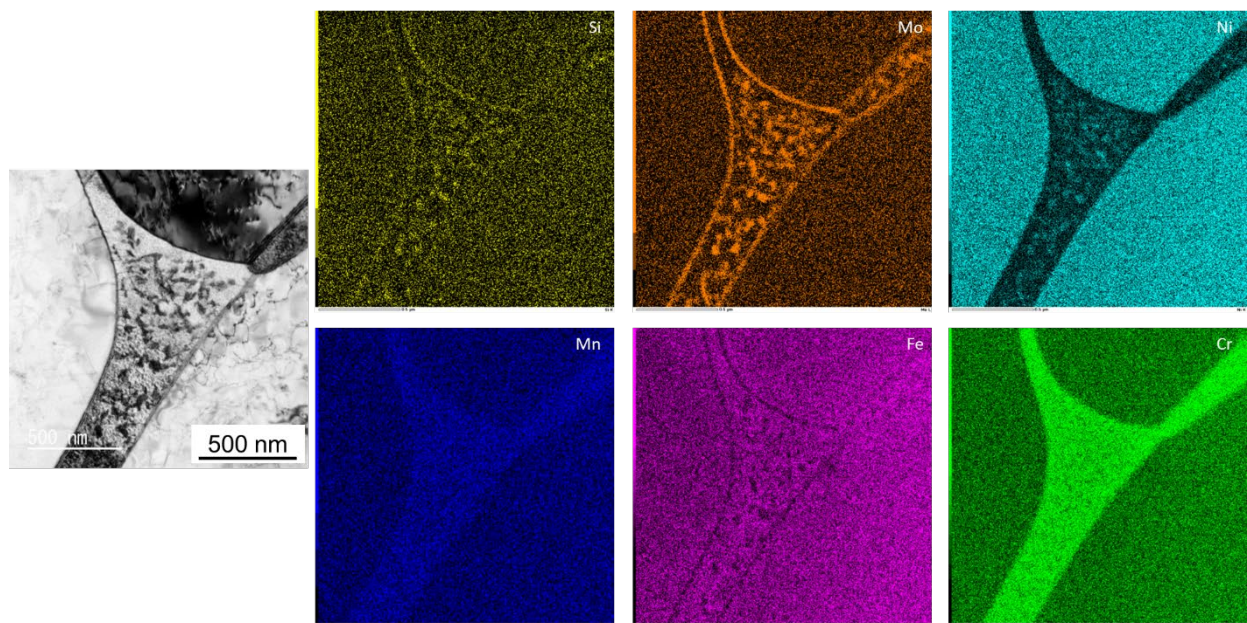


図 3.1-4 475 °C・1,000 h 時効材における  $\delta$  相の TEM-EDX マッピング結果

表 3.1-2 15,000 h 時効材における  $\delta$  相単体の平均換算ビッカース硬さ（押し込み荷重：3 mN）

温度(°C)	計測位置	平均換算ビッカース硬さ、HV*
0(未時効)	溶融境界	502
	溶接金属中央	511
288	溶融境界	538
	溶接金属中央	654
335	溶融境界	814
	溶接金属中央	916
400	溶融境界	893
	溶接金属中央	818

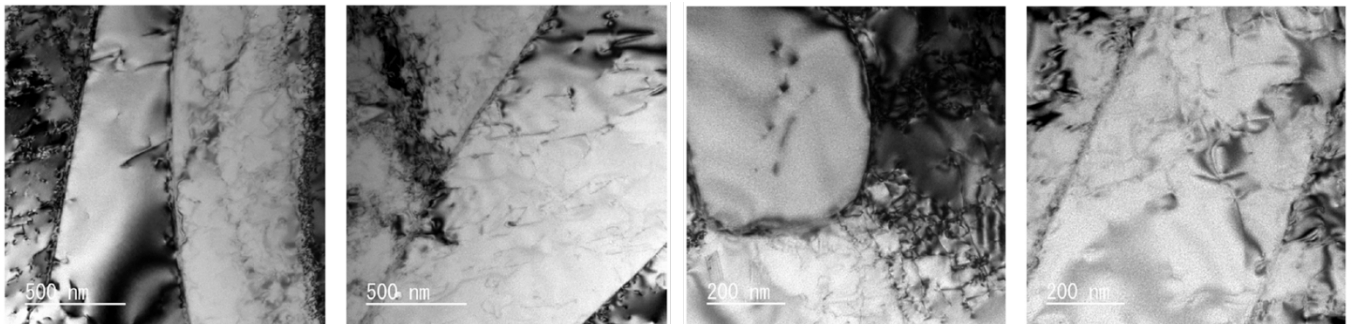


図 3.1-5 335 °C・15,000 h 時効材における  $\delta$  相の TEM 明視野像

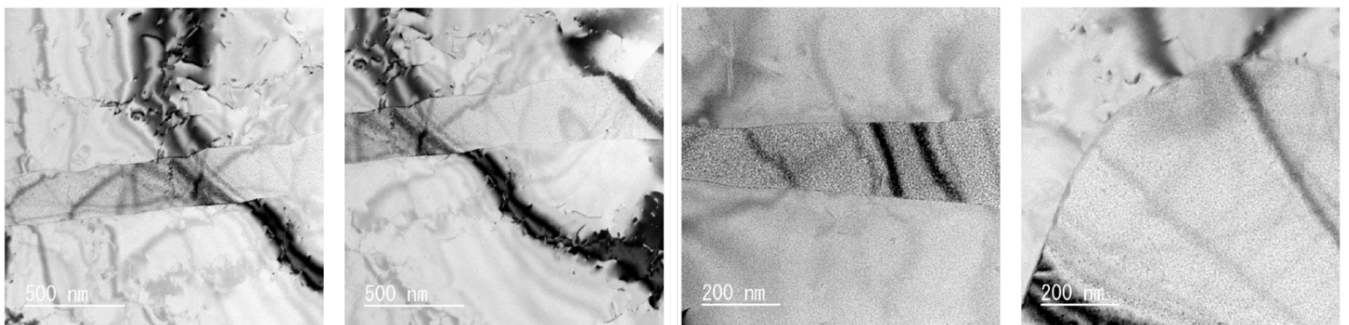


図 3.1-6 400 °C・15,000 h 時効材における  $\delta$  相の TEM 明視野像

### 3.2 データサイエンスを駆使した汎化性能の高いマイクロ組織変化予測

#### 3.2.1 G 相析出予測・汎化性能評価（再委託先：物質・材料研究機構、北海道科学大学）

【R4-R5】

##### 【令和 5 年度までの実施内容および成果（概要）】

令和 4 年度は、信頼性と汎用性の高い G 相熱力学データベース (TDB) 構築に向けた基盤整備と構築作業を行った。まず、モデル構築の基礎となる実験データの品質確保のため、広範な文献調査から収集した G 相関連の実験データ（相平衡、熱力学量等）について、その信頼性や矛盾点を詳細に精査し、最適化に使用する高品質なデータセットを確立した。次に、G 相の複雑な結晶構造と限られた実験データ量に対応するように、熱力学関数のモデル設計を行った。従来の副格子モデルを元素の配分が自由になるように改修し、過適合を抑制しロバスト性を高めることを目指しデータ科学的アプローチを具体化した。これらの準備に基づき、精査した実験データと設計したモデルを用いて、CALPHAD 計算によるパラメータ最適化を実行した。これにより、G 相の Gibbs エネルギーを記述するパラメータの初期セットを得て、関連する他相との整合性を考慮した多元系 TDB のプロトタイプ（初期バージョン）を構築した。

構築した TDB を用いて、種々の合金組成・温度における G 相の平衡状態を統合型熱力学計算システム (Thermo-Calc) による平衡計算により、フェライト ( $\alpha$ ) 相の平衡組成を予測するとともに、G 相の最大析出量や消失温度を評価した。また、G 相の析出挙動を析出成長予測ソフトウェア (TC-PRISMA) により計算した。G 相の粒径、組成、体積分率等の経時変化を予測し、東北大学実験結果や文献値と比較してモデルの汎化性能を評価するとともに、さらなる実験データが必要となる領域を東北大学にフィードバックした。さらに、G 相析出挙動を評価する場合、母相におけるスピノーダル分解の有無を考慮するよう、東北大学に提案した。

令和 5 年度は、前年度に構築した G 相 TDB の正当性と汎用性を検証・確認することに重点を置いた。まず、構築したモデルとその予測結果について、国内外の関連学会等で発表・議論を行い、専門家コミュニティからのフィードバックを得た。これらの議論を通じて、モデルの物理的な妥当性やアプローチの新規性に関する客観的な評価を得て、その正当性を確認した。さらに、モデルの実用的な予測能力を評価するため、共同研究機関である北科大と連携し、データベースの汎用性確認を行い、最終版の TDB とした。

開発・精緻化した TDB を用いた平衡計算により、本研究で用いた SUS316NG 母合金及び SUS316L 溶接金属に対して、G 相の構成元素の添加量が G 相を始めとする各相の相安定性に与える影響を評価した。また、本研究の TDB の汎化性能を評価するために、様々な合金組成及び温度における計算を実施し、その結果を既存の知見や他のデータベースと比較した。特に、開発時に直接使用していない組成範囲（未知データ）に対する予測精度を検証し、本モデルが広範な条件に対して高い汎用性を持つことを実証した。さらに、令和 6 年度に実施予定のスピノーダル分解を考慮した G 相析出挙動の評価に向けて、フェライト相の Cr 濃度を広範囲に変化させた場合の G 相を始めとする各相の相安定性を評価した。また、計算プログラムに関して並列化を進め、計算機の能力を最大限活用するように改良した。その結果、計算速度が大幅に上昇し、従来と比較して高効率に G 相の析出計算結果を蓄積することが可能となった。

これらの検証活動により、本熱力学モデルの信頼性と実用性が確認された。この結果を受け、研究成果の普及と透明性確保のため、GitHub リポジトリでの公開準備を完了させた。



### 3.2.2 スピノーダル分解挙動予測（再委託先：物質・材料研究機構）【R4-R5】

#### 【令和5年度までの実施内容および成果（概要）】

令和4年度は、G相析出に先行する可能性のあるスピノーダル分解挙動に関して Phase Field 法 (PFM) で評価するための準備段階として、計算基盤の整備と基礎的な評価に注力した。まず、使用する PFM コードの動作確認を行い、計算が正常に実行できることを検証した。次に、シミュレーションの入力となる熱力学データとして、基礎系である Fe-Cr 二元系の Gibbs エネルギーに関する文献調査を行い、信頼性の高いデータを特定した。さらに、特定した Gibbs エネルギー関数を PFM コードが読み込める入力形式に変換した。これらの準備に基づき、動作確認済みのコードと準備した入力データを用いて、Fe-Cr 二元系における試計算を実施した。この試計算を通じて、計算の安定性と計算資源（時間、メモリ）の制約を考慮し、数値計算の安定性を確保できる適切なタイムステップ幅や、必要な物理現象を捉えつつ計算負荷を抑えられる計算領域の大きさなど、計算パラメータの評価を行った。

令和5年度は、令和4年度に整備した PFM 計算基盤を用い、Fe-Cr 二元系におけるスピノーダル分解開始時間の網羅的な評価を実施した。まず、PFM シミュレーション結果（組成場の時間発展）から、物理的に意味のあるスピノーダル分解開始時間を定量的に定義する手法を確立した。具体的には、組成揺らぎの振幅が特定の閾値を超える時間などを指標とした。次に、この定義に基づき、Fe-Cr 二元系の合金組成（Cr 濃度）と温度を系統的に変化させ、それぞれの条件下で PFM シミュレーションを網羅的に実行した。各計算からスピノーダル分解開始時間を算出し、その組成・温度依存性を詳細に評価した。得られた多数の開始時間データを整理し、温度と Cr 濃度を軸とする二次元マップ上に、スピノーダル分解開始時間を等高線（コンター図）として可視化できた。このマップにより、どのような条件領域でスピノーダル分解が起こりやすいか、その時間スケールがどの程度かを一目で把握することが可能となった。本成果は、スピノーダル分解現象の定量的理解を深めるとともに、同年度に開発した G 相析出時間予測機械学習予測モデルとの統合的な評価（状態マップ上での重畳表示など）に不可欠な基礎データを提供することができた。

### 3.2.3スピノーダル分解と G 相析出の連成挙動予測モデル構築（再委託先：物質・材料研究機構、北海道科学大学）【R4-R6】

#### 【令和 5 年度までの実施内容および成果（概要）】

令和 4 年度は、スピノーダル分解と G 相析出の連成挙動予測モデルの構築に向けて、種々の合金組成・温度に対して、構築した TDB を用いた TC-PRISMA による G 相析出計算を開始し、機械学習モデルの教師データとして蓄積した。

G 相の主要構成元素である 6 種の金属元素（Ni, Si, Mn, Cr, Mo, Fe）濃度、温度、転位密度、界面エネルギー等を様々に変化させ、構築した TDB を用いて TC-PRISMA により最大 50000 日（約 137 年）の G 相析出計算を 15,424 ケース実施し、計算温度別に結果を整理すると共に、G 相の析出が認められた 11,019 ケースの計算結果を機械学習モデルのデータとして蓄積した。

令和 5 年度は、マテリアルズ・インフォマティクス（MI）の活用により、不確定性やデータのばらつきを考慮した、汎化性能の高いスピノーダル分解と G 相析出の連成挙動予測モデルを構築するために、TC-PRISMA により合金組成や温度等の条件を様々に変化させた G 相析出計算を行い、計算結果を機械学習用データとして蓄積した。

G 相の主要構成元素である 6 種の金属元素（Ni, Si, Mn, Cr, Mo, Fe）濃度、温度、転位密度、界面エネルギー等を様々に変化させ、精緻化した TDB を用いて TC-PRISMA により最大 50,000 日（約 137 年）の G 相析出計算を、令和 4 年度に実施した 15,424 ケースと合わせて 94,761 ケース実施した。令和 6 年度に実施予定のスピノーダル分解を考慮した G 相析出挙動の評価に向けて、令和 5 年度はフェライト相の Cr 濃度を広範囲に変化させて G 相析出計算を実施した。令和 4 年度に蓄積した 11,019 ケースと合わせて、G 相の析出が認められた合計 61,966 ケースの計算結果を機械学習モデルの教師データとして蓄積した。当初計画を超える成果として、多元系合金における G 相析出データを用いて、機械学習予測モデルの構築の検証を行い、機械学習のアルゴリズム選択、ハイパーパラメータチューニングの手法、可視化などの検証を行った。

#### 【令和 6 年度の実施内容および成果】

##### (1) 概要

令和 6 年度は、令和 5 年度までに開発・精緻化した TDB を用いた平衡計算により、本研究で用いた溶接金属に対して、フェライト相にスピノーダル分解が生じた場合の Fe-rich のフェライト相（ $\alpha$ ）及び Cr-rich のフェライト相（ $\alpha'$ ）の組成を予測した。得られた計算結果を基に、スピノーダル分解前後の 3 種のフェライト相（分解前 $\alpha$ 、分解後 $\alpha$ 、 $\alpha'$ ）に対して 300～450 °C の各温度における G 相析出挙動を計算し、スピノーダル分解が G 相組成に及ぼす影響を評価した。

マテリアルズ・インフォマティクス（MI）の活用により、不確定性やデータのばらつきを考慮した、汎化性能の高いスピノーダル分解と G 相析出の連成挙動予測モデルを構築するために、G 相の主要構成元素である 6 種の金属元素（Ni, Si, Mn, Cr, Mo, Fe）濃度、温度、転位密度、界面エネルギー等を様々に変化させ、令和 5 年度までに開発・精緻化した TDB を用いて TC-PRISMA により最大 50,000 日（約 137 年）の G 相析出計算を、令和 5 年度までに実施した 94,761 ケースと合わせて計 124,261 ケース実施した。令和 5 年度までに蓄積した 61,966 ケースと合わせて、G 相の析出が認められた合計 74,611 ケースの計算結果を機械学習モデルのデータとして蓄積した。

開発・精緻化した TDB、Phase Field 法 (PFM) によるスピノーダル分解評価を基盤とし、多様な入力条件から得られた析出計算のデータを教師データとした機械学習モデルによる G 相析出時間予測モデルの構築を行い、これらを連携・高度化させることに注力した。目的は、スピノーダル分解と G 相析出という二つの現象が複雑に絡み合う「連成挙動」をより深く理解し、その予測精度を高める評価基盤を強化することである。主なアプローチとして、熱力学情報を活用した機械学習モデルの高度化と、析出時間マップの詳細な因子解析を実施した。その結果、機械学習モデルの予測信頼性を向上させるとともに、連成挙動を支配する因子とそのメカニズムに関する重要な知見を得て、評価基盤を大きく前進させた。

## (2) 研究内容ならびに成果

CALPHAD 法は Gibbs エネルギーの比較から相安定を議論するための理論的な枠組みであるが、それを実現するためのソフトウェアである Thermo-Calc は、主として実験結果を基にした TDB から、所定の条件下における各相のギブスエネルギーを計算し、多成分系における平衡状態図を始めとして、様々な熱力学量を計算可能な Thermo-Calc Software AB 社製の統合型熱力学計算システムである [3.2-1]。実験データの存在しない組成域や温度域に関しても計算可能であり、非平衡相も含めて計算対象とする相を自由に取捨選択できる点も大きな特徴である。開発・精緻化した TDB を用いて種々の合金組成・温度における G 相の平衡状態を Thermo-Calc により評価した。

TC-PRISMA は、多相、多成分系の任意の熱履歴における核生成、成長／消失、粗大化を同時進行で計算する Thermo-Calc のアドオンモジュールであり [3.2-2～3]、計算には Langer-Schwartz および Kampmann-Wagner の古典的核生成理論を多元系の表現に対応する形に拡張したモデル [3.2-4～5] を用いて、臨界核の生成エネルギーを越える駆動力と核生成速度が閾値を超える条件を元に析出の判定を行っている。TDB と動力学（拡散）データベースを用いることにより、析出物の粒径分布の時間変化や、平均粒径と数密度、体積分率および成分等の推定も可能となっている。平衡計算と同様に、TDB と動力学データベースの選択は G 相析出挙動を計算する際に最も重要である。TDB は本研究にて開発・精緻化したものを使用し、動力学データベースは汎用性の高い Thermo-Calc Software AB 社製の TCS Alloy Mobility Database (MOB2) の最新版 (Ver.2.5) [3.2-6] を採用した。G 相析出計算に必要なデータベース以外の重要なパラメータとしては、Interfacial energy と Mobility enhancement prefactor (MEP) がある。古原によれば、整合界面における Interfacial energy は  $0.05 \sim 0.2 \text{ J/m}^2$ 、部分整合界面における Interfacial energy は  $0.2 \sim 0.8 \text{ J/m}^2$  との報告 [3.2-7] があるため、本研究では Interfacial energy を  $0.2 \text{ J/m}^2$  とした。動力学データベースに収納されている拡散定数は、体拡散を前提とした高温域（概ね融点 [K] の  $1/2$  以上）における値であるため、短回路拡散が支配的となる低温域において、動力学データベースに収納されている拡散定数を低温域に外挿した値は実際の拡散定数に対して過小評価となる。この差を修正するのが MEP である。MEP の導出方法の詳細は既報 [3.2-8] に譲るが、MEP は熱時効時間と G 相の粒径の関係が報告されている文献を参考にして文献値を再現するように調整し、最終的に以下の式で表されるとした。

$$MEP = \exp\left(\frac{17119}{T} - 16.411\right) \quad (3.2-1)$$

MEP の値が 1、すなわち体拡散が支配的となる温度は 768 °C と見積もられた。ステンレス溶接金属に対して、この計算結果は妥当であると考えられる。

ステンレス溶接金属に析出する G 相の格子定数は 1.1 nm 程度であるため[3. 2-9]、1 nm に満たない粒径の G 相を「析出」として扱うことに関しては議論の余地がある。G 相析出の臨界サイズに関する報告はほとんど存在しないが、松川らは二相ステンレス鋼中のフェライト相からの G 相析出に関して、粒径 2.6 nm を境に溶質原子クラスターから G 相へと遷移すると報告している[3. 2-10]。本研究における析出計算においては溶質原子クラスターから G 相へ遷移するという概念は無いが、本研究では G 相の平均粒径が 3 nm に到達した時点を G 相の析出として取り扱うこととした。

開発・精緻化した TDB により、従来の研究[3. 2-8]で用いた SUS308L 及び SUS316L 溶接金属と、本研究で用いた SUS316NG 母相及び SUS316L 溶接金属に対して、圧力  $10^5$  Pa、温度 300, 350, 400, 450 °C の各温度における各合金の平衡相の組成及びモル分率を Thermo-Calc により計算した。各合金の組成を図 3. 2-1 及び 3. 2-2 に示す。いずれの合金においても、平衡計算ではオーステナイト ( $\gamma$ ) 相、Fe-rich のフェライト ( $\alpha$ ) 相、Cr-rich のフェライト ( $\alpha'$ ) 相、G 相が平衡相として計算される。G 相析出に先行してスピノーダル分解が生じる場合、G 相に含まれる元素は  $\alpha$  相と  $\alpha'$  相に含まれていると考えられる。そこで本研究では、G 相に含まれる各元素を、それらが  $\alpha$  相と  $\alpha'$  相に含まれている割合に応じて  $\alpha$  相と  $\alpha'$  相に再分配し、G 相析出前の  $\alpha$  相及び  $\alpha'$  相の組成とした。

各合金の 300 °C 及び 400 °C におけるスピノーダル分解前の  $\alpha$  相、スピノーダル分解後の  $\alpha$  相及び  $\alpha'$  相の組成の計算結果を図 3. 2-3, 5, 7, 9, 11, 13, 15, 17 に示す。図中には比較として、Thermo-Calc Software AB 社製の汎用固溶体データベースである SGTE Solution Database の最新版 (SSOL9) による計算結果も併せて示してある。いずれの合金及び温度においても、本研究で開発・精緻化した TDB による計算結果は、SSOL9 による計算結果と良い一致を見せており、本研究で開発・精緻化した TDB の信頼性が高いことが示されている。いずれの合金及び温度においても、スピノーダル分解後の  $\alpha$  相中の Mn 含有量は  $\alpha'$  相と比較して非常に少ないと予測されている。一方で、 $\alpha'$  相中の Si 含有量は  $\alpha$  相と比較して非常に少なく、また Ni は  $\alpha'$  相中にはほとんど存在しないと予測されている。Mo を含む SUS308L 以外の合金においては、Mo はスピノーダル分解後の  $\alpha$  相及び  $\alpha'$  相中にはほぼ同程度の濃度で含有されると予測されている。

このようにして求められたスピノーダル分解後の  $\alpha$  相及び  $\alpha'$  相と、スピノーダル分解前の  $\alpha$  相に対して TC-PRISMA により G 相の析出挙動を評価した。計算結果を図 3. 2-4, 6, 8, 10, 12, 14, 16, 18 に示す。いずれの合金及び温度においても、スピノーダル分解後の  $\alpha'$  相からは G 相の析出が生じなかった。令和 5 年度に明らかにしたように、G 相の第 1 副格子 ( $A_{16}B_6C_7$  の A サイト) はほぼ Ni のみで占有されるため、母相中の Ni の存在は G 相析出に必須であると考えられる。従って上述の通り Ni をほとんど含まないスピノーダル分解後の  $\alpha'$  相からの G 相の析出は困難であると考えられる。SUS308L の 300 °C におけるスピノーダル分解後の  $\alpha$  相からの G 相析出計算は途中で発散したため評価できないが、これ以外の全ての合金及び温度において、スピノーダル分解後の  $\alpha$  相からの G 相の析出は、スピノーダル分解前の  $\alpha$  相からの G 相の析出に比べて早く、同時間で比較すると平均粒径が大きくなるという結果が得られた。図 3. 2-3, 5, 7, 9, 11, 13, 15, 17 に示すように、スピノーダル分解後の  $\alpha$  相はスピノーダル分解前の  $\alpha$  相と比較して Fe、Ni、

Si の含有量が多く、Cr と Mn の含有量は少なくなっている。Mo を含む合金においては、Mo 含有量に両相の違いはほとんどみられない。令和 5 年度に明らかにしたように、G 相の第 3 副格子 ( $A_{16}B_6C_7$  の C サイト) はほぼ Si で占有される (一部 Cr も置換する) のに対して、G 相の第 2 副格子 ( $A_{16}B_6C_7$  の B サイト) は主として Mo と Mn で占有されるが、Fe、Ni、Cr の置換も容易に生じることが示唆されている。以上の結果から、G 相の析出・成長には代替が困難な第 1 及び第 3 副格子の主要構成元素である Ni と Si の存在が極めて重要であると考えられる。一方、Cr と Mn の影響は Ni や Si に比べると小さいことが示唆されている。G 相はしばしば  $Ni_{16}(Mn, Mo)_6Si_7$  と表記されるが[3. 2-11, 12 他多数]、本計算結果によれば、Mn 含有量が非常に少ない場合においても G 相の析出・成長が促進される場合もあることから、Mn は G 相の必須構成元素ではないと考えられる。令和 5 年度に明らかにしたように、Mn と Mo を含む合金においては、G 相の第 2 副格子を主として占有するのは Mn ではなく Mo であり、この結果も Mn が G 相の必須構成元素ではないことを示唆していると言える。実験的報告では、Mn と Mo を含む合金においても Mn を多量に含む G 相の報告が多いが、これは Mo (融点 2623 °C) が Mn (融点 1246 °C) に比べて拡散速度が遅いため、平衡状態に到達する前の G 相が観察されているためと考えられる。Badyka らは Mn と Mo を含む合金に対して、400 °Cにおいて等温熱時効を施した試料中の G 相の構成元素を報告しており、時効時間の経過に伴い G 相中の Mn 含有量は減少し、Mo 含有量は増加している[3. 2-13]。これは本研究の計算結果を支持するものである。本研究におけるスピノーダル分解前後の $\alpha$ 相の組成は平衡計算結果であるため、スピノーダル分解の過渡期における $\alpha$ 相や $\alpha'$ 相からの G 相析出挙動は上述した計算結果とは異なると考えられる。スピノーダル分解と G 相析出の連成挙動については後述する。なお本研究では 350 °C及び 450 °Cに対する同様な計算も行ったが、計算結果については同様な傾向が得られたために紙面の制約上本報告書においては結果の詳細は割愛する。

スピノーダル分解と G 相の析出現象が重畳した場合、フェライト母相の組成は不均質かつ特に Cr 濃度が広範に変化すると考えられる。これまでの研究において、本研究で精緻化した TDB を用いた熱力学計算により、広範な Cr 濃度に対して G 相析出挙動を予測可能であることを示してきたが、G 相の析出計算には 1 条件あたり数分から数時間の時間を要するため、微視的に不均質な材料における G 相析出挙動の予測は困難である。そこで本研究では、機械学習を活用して種々の合金組成・温度に対する G 相析出挙動を瞬時に得られるモデルを作製し、これを活用してスピノーダル分解と G 相析出の連成挙動予測モデルを構築することを目指している。

本研究において実施した G 相析出計算の条件範囲を表 3. 2-1 に示す。不純物元素と考えられる P 及び S は計算から除外し、C 量は 0.0025 wt%、N 量は 0.02 wt%に固定した。Cr、Ni、Si、Mn、Mo の各元素を表 3. 2-1 に示す範囲内で 0.1 wt%刻みで乱数によって決定し、Fe をバランス元素とした。計算温度、転位密度、界面エネルギーの値についても表 3. 2-1 に示す範囲内で乱数によって決定し、G 相の析出サイトはバルクと転位をランダムに選択した。

以上の条件下で TC-PRISMA により G 相の析出計算を行い、G 相の平均粒径が 1 nm 及び 3 nm に到達する時間を記録して、G 相の平均粒径が 3 nm に到達した時点で計算を終了した。G 相の平均粒径が 3 nm に到達しなかった場合でも、析出計算における予測時間が 50,000 日 (約 137 年) に到達した場合は計算を終了し、50,000 日到達時点での G 相の平均粒径が 1~3 nm のものと 1 nm 未満のものに計算結果を分類した。また、実計算時間が 90 分に達した時点で G 相の平均粒径が 3 nm に達しておらず、かつ析出計算における予測時間が約 137 年に到達していない場合は、タイム

アウトとして計算を打ち切った。令和 5 年度までの検討の結果、フェライト相中の Cr 濃度の増加に伴い計算が打ち切られる割合が上昇することが明らかになったため、計算が打ち切られる場合の計算条件の傾向を解析し、令和 6 年度は表 3.2-2 に示すような、高 Cr 濃度で計算が打ち切られる割合が低くなると推察される計算条件に改良して、高 Cr 濃度域における G 相の析出計算結果の蓄積を試みた。

スピノーダル分解と G 相析出の連成挙動予測モデル構築に向けた、本研究で得られたこれまでの全ての G 相析出計算結果の概要を、Cr 濃度範囲で分類して図 3.2-19 に示す。計算時間 50,000 日までに G 相の平均粒径が 3 nm に到達したものは、その到達時間で 0~2 年、2~10 年、10~60 年、60~137 年に計算結果を分類した。これまでに合計 124,261 ケースの G 相の析出計算を実施し、そのうちタイムアウトとなった 49,650 ケースを除いた計 74,611 ケースの計算結果を機械学習モデルのデータとして蓄積した。

熱力学計算連携による機械学習モデル高度化として、精緻化された熱力学データベース [3.2-15] と析出物の析出・成長理論に求められた G 相析出時間を教師データとして、機械学習予測モデルの精度と物理的妥当性を向上させた。

前年度までにおいて PFM によって評価された母相の初期状態（均一またはスピノーダル分解による組成不均一性）を踏まえ、G 相そのものの析出・成長挙動を評価するモデルを構築した。PFM シミュレーションでは、計算領域が多数の格子点に分割され、各格子点はそれぞれ異なる局所組成を持つ。これらの全ての点に対して、精緻ではあるが計算コストが高い析出に関する動力学計算（例えば、多成分拡散を考慮した複雑な核生成・成長計算）を逐次実行するのは、計算時間的に現実的ではない。この課題を克服するため、本研究では機械学習技術により、特定の条件下での G 相析出挙動（特に時間スケール）を高速に予測する代理モデル（サロゲートモデル）を構築するアプローチを採用した。

機械学習モデルのデータとしては、TC-PRISMA を用いた計算で蓄積された 74,611 ケースの計算結果を活用した。具体的には、多様な合金組成（Fe-Cr-Ni-Si-Mn-Mo 系など）と温度条件下における G 相析出物の平均半径が 1nm および 3nm に到達するまでの時間を計算したデータセットである。この大規模データセットが、信頼性の高い機械学習モデル構築の基盤となった。次に、この大規模データセットを用いて G 相析出時間予測モデルの構築を行った。入力変数としては局所的な合金組成（主要な G 相形成元素濃度：Si, Ni, Mn, Cr など）と温度を設定し、出力変数として「G 相平均半径 1nm 到達時間」と「G 相平均半径 3nm 到達時間」をそれぞれ予測するモデルを開発した。機械学習のアルゴリズムとしては、線形回帰から、強い非線形を扱うことのできるランダムフォレスト、勾配ブースティング、ニューラルネットワークなど、いくつかの異なる機械学習アルゴリズムを検証した。それらの結果を検討し、予測精度、計算速度、汎用性の観点から最適なモデル構造としてマルチレイヤーパーセプトロン (Multilayer Perceptron, 機械学習 P) を選定した。機械学習 P は、ニューラルネットワークの基本的な種類の一つで、入力層や 1 つ以上の隠れ層（中間層）、出力層の複数の層から構成される順伝播型（フィードフォワード）のニューラルネットワークである。各層のニューロン（ユニット）が次の層の全てのニューロンと結合している（全結合層）のが特徴で、多くのディープラーニングモデルの基礎となっている。本研究において活用したデータから機械学習を用いて構築した予測モデルの訓練データと検証データの予測の結果を図 3.2-20 に示す。機械学習モデルで用いた特徴量は、合金成分（"Cr", "Ni", "Si",

“Mn”, “Mo”), 温度(“temperature”), 析出条件(“site”, “density”), 拡散促進係数(“MEP”), 表面エネルギー(“surface\_energy”)である。テストデータに対する汎化性能 RMSE は 1 nm モデルで対数化ののち 0.11、3 nm モデルで 0.12 となった。

図 3.2-21 に機械学習から予測される因子間の関係を示す。ここで “reached\_year” と “temperature” や “Mn” の関係をみると、特定のサイズに達する因子としては温度や Mn 量が重要であるという示唆が得られる。構築された機械学習予測モデルは、研究者が容易に利用できるよう、任意の鋼材成分と温度を入力すれば、対応する G 相析出時間 (1nm 到達、3nm 到達) を瞬時に予測できる簡易なアプリケーションとして実装した。ここでは G 相析出挙動の評価 (機械学習モデルと濃度場情報の連携) として、「スピノーダル分解を生じる年数」と「粒径が 1 または 3[nm]に到達する年数」を合算してコンター図にする。SUS316L 合金組成を対象に計算をした結果を図 3.2-22 に示す。赤い領域ではほぼ G 相が成長することではなく、青い領域で加速度的に成長する。

このように、本研究の重要な成果として、前年度で評価したスピノーダル分解開始時間のデータ (PFM 計算結果や理論予測) と高速な G 相析出時間予測モデル (機械学習モデル) とを統合的に可視化する機能を開発したことが挙げられる。具体的には、縦軸に温度、横軸に Cr 量をとった二次元マップ上に、スピノーダル分解が開始する時間と、G 相が 1 nm または 3 nm に成長する時間をそれぞれ等高線 (コンター図) として示す機能を持つ。これにより、主要合金元素 (Cr, Ni, Si, Mo, Nb, Ti 等) の影響を網羅的に評価できる詳細な析出時間マップを提示することが可能になった。結果として、各元素や温度がスピノーダル分解と G 相析出の速度論的な競合関係や相互作用に与える影響を定量的に明らかにし、連成挙動を支配する因子とそのメカニズムに関する知見が得られる基盤を確立できた。

この機械学習モデルの開発と可視化機能により、以下のことが可能となった。

1. 高速な析出時間予測: 任意の局所組成に対して、G 相析出の初期段階 (1 nm) およびある程度成長した段階 (3 nm) に要する時間を、従来法に比べて桁違いに高速に予測できる。
2. 組成・温度依存性の網羅的評価: 開発したマップ機能を用いることで、スピノーダル分解時間と G 相析出時間 (1 nm, 3 nm) を同一平面上に重畳表示することが可能となった。これにより、特定の合金組成 (例えば Cr 濃度を変化させた場合) や熱処理温度が、スピノーダル分解の起こりやすさや G 相析出速度にどのように影響を与えるかを、視覚的かつ網羅的に理解・評価することができるようになった。これは、熱処理プロセスの最適化や合金設計において極めて有用なツールとなる。
3. 場の問題への応用: アプリケーション化された機械学習モデルは、将来的に PFM シミュレーションの各格子点における析出評価に直接組み込むことで、組成不均一性を考慮した G 相の空間分布予測 (場の問題としての解法) への応用も可能となる。

なお、本研究を通じて開発・精緻化された G 相に関する熱力学データ (モデルパラメータ等) については、研究成果の透明性と再現性の確保、および関連研究コミュニティへの貢献を目的として、GitHub リポジトリ (ソフトウェア開発プラットフォームのことで、コードの保存、共有、共同作業をクラウドベースで行うためのサービス。Git というバージョン管理システムをベース

に開発されており、多くのプログラム開発者が利用している)において公開できる段階まで準備を完了させている。図 3.2-23 に GitHub の画面イメージを掲載する。

これらの結果を整理し、複雑な微細組織変化を支配する主要因子とそのメカニズムに関する知見を「総括」としてまとめた。

### (3) まとめ

令和 6 年度は、CALPHAD 法に基づく熱力学平衡計算と動力学計算を用い、ステンレス鋼中の G 相析出挙動を評価した。独自に開発・精緻化した熱力学データベース (TDB) による計算から、スピノーダル分解後の Ni・Si リッチ  $\alpha$  相で G 相析出が促進され、Ni を含まない  $\alpha'$  相では析出しないことを確認。Ni と Si が G 相形成に重要で、Mn は必須ではない可能性を示唆した。また、スピノーダル分解と G 相析出の複雑な連成挙動は計算コストが高いため、機械学習アプローチを採用。TC-PRISMA による約 7.5 万ケースの G 相析出時間 (平均粒径 1nm, 3nm 到達) 計算結果を教師データとし、マルチレイヤーパーセプトロンによる高速予測モデルを構築した。令和 6 年度には、熱力学情報を活用してこのモデルをさらに高度化した。

さらに、スピノーダル分解時間と本モデルによる G 相析出時間を統合的に可視化するツールを開発し、析出時間マップの詳細な因子解析も実施。元素や温度が両現象の競合関係に与える影響を網羅的に評価する基盤を強化した。

これらの成果により、G 相の析出挙動に関する予測精度が向上し、複雑な微細組織変化メカニズムの定量的理解が深化した。これは将来的な PFM-機械学習の直接連携による本格的な連成シミュレーション構築に向けた重要ステップであり、原子力材料の設計最適化や長期健全性評価への貢献が期待される。開発した TDB は公開準備を進めている。



### 3.2.4 ミクロ組織変化に対する因子の総括（再委託先：物質・材料研究機構、北海道科学大学）【R6】

#### 【令和 6 年度の実施内容および成果】

##### (1) 概要

令和 6 年度は、G 相析出挙動に及ぼす合金組成の影響評価の集大成として、SUS316L を例に取り、化学成分規格の範囲内で最も G 相析出が促進されと考えられる組成及び最も G 相析出が抑制されと考えられる組成に対して G 相析出挙動を計算し、本研究で用いた SUS316L 及び SUS304L に対する G 相析出挙動の計算結果と比較した。

また、令和 5 年度までに作成したスピノーダル分解時間マップと、高度化した機械学習モデルによる G 相析出時間予測結果を統合的に解析し、原子力材料における微細組織変化（特にスピノーダル分解と G 相析出の連成挙動）を支配する因子を特定・評価した。

さらに当初計画を超える成果として、G 相析出挙動に及ぼす中性子照射の影響を検討した。G 相は金属間化合物のため、中性子照射下においても G 相中の空孔濃度変化は小さく、生成エンタルピーは変化しないと仮定し、中性子照射の影響を拡散速度の増加として中性子照射下における各温度に対する G 相の析出挙動を予測し、Time-Temperature-Precipitation (TTP) 線図を計算した。

##### (2) 研究内容ならびに成果

令和 5 年度には、開発・精緻化した TDB を用いた平衡計算により、本研究で用いた SUS316L 溶接金属に対して、G 相の構成元素の添加量が G 相を始めとする各相の相安定性に与える影響を評価した。令和 6 年度は G 相析出挙動に及ぼす合金組成の影響評価の集大成として、令和 5 年度に実施した計算結果を参考に、SUS316L の化学成分規格の範囲内[3.2-14]で最も G 相析出が促進されと考えられる組成及び最も G 相析出が抑制されと考えられる組成に対して G 相析出挙動を計算し、本研究で用いた SUS316L 及び SUS304L に対する G 相析出挙動の計算結果と比較した。表 3.2-3 に SUS316L 及び SUS304L の化学成分規格、本研究で用いた SUS316L 及び SUS304L の合金組成及び最も G 相析出が促進または抑制されと考えられる SUS316L の合金組成を示す。これらの合金組成に対して、開発・精緻化した TDB を用いた Thermo-Calc による平衡計算を行い、 $\gamma$ 相を除く平衡相をまとめて $\alpha$ 相の組成とした。 $\alpha$ 相組成の計算結果を表 3.2-4 に示す。

表 3.2-4 に示した各合金の $\alpha$ 相組成に対して、320 °C における G 相析出挙動を計算した。G 相の析出サイトはバルクとし、圧力は  $10^5$  Pa、界面エネルギーは  $0.2 \text{ J/m}^2$  とした。図 3.2-24 に示すように、100 h 以上経過後の G 相体積分率は、G 相抑制合金で約 2%であるのに対し、G 相促進合金では約 10%と約 5 倍の差が生じている。本研究で用いた SUS316L 及び SUS304L の 100 h 以上経過後の G 相体積分率は約 3.5~6.5 %程度であり、G 相抑制合金と G 相促進合金の間の値になっている。本研究で用いた SUS316L (1) と SUS316L (2) の合金組成の違いは僅かであるが、100 h 以上経過後の G 相体積分率には約 1.5 %の違いが生じている。これらの結果は、合金組成の僅かな調整により、長時間供用後の G 相析出量を大きく変化させることが可能であることを示唆している。これまでの本研究の計算結果より、特に Si 量の制御が G 相析出量の制御に重要であると考えられる。一方、図 3.2-25 に示すように、G 相平均粒径の変化は 1000 h 以上経過後において G 相促進合金がやや大きな値となるが、G 相抑制合金、G 相促進合金、本研究で用いた SUS316L (1) (2) に

大きな差異はみられない。また、本研究で用いた SUS304L は SUS316L と比較して G 相平均粒径の増加が速いと予測された。

スピノーダル分解と G 相の析出挙動に関して詳細な析出時間マップ（スピノーダル分解時間と G 相析出時間を温度・組成空間に表示）を作成・分析した。このマップを用いて、主要合金元素（Cr, Ni, Si, Mo, Nb, Ti 等）や温度が、①スピノーダル分解の起こりやすさと速度、② G 相析出の開始・成長速度、が定量的に評価できるようになった。

#### SUS316L の相分離に関する検討

例として、SUS316L の公称合金組成を基に計算を行う。計算にあたっての前提条件として、900 K 程度の高温状態を想定し、この温度域では  $\sigma$  相のような金属間化合物は析出していない状況（フェライトとオーステナイトが共存する）を考える。析出物を考慮しないことにより、より安全側の評価が可能となるためである。まず、この 900 K におけるオーステナイト相と平衡するフェライト相の組成を計算により求めると、重量分率で表 3.2-5 のようになる。

次に、この高温状態のフェライト相が低温まで冷却され、二相分離（スピノーダル分解など）を起こす過程を考察する。相分離挙動を評価するため、まず上記フェライト相の組成におけるクロム（Cr）等量をシェフラーの式を用いて算出する。シェフラーの式は以下の通り [3.2-16] である。

$$\text{Cr}_{\text{eq}} = \% \text{Cr} + \% \text{Mo} + 1.5 \times \% \text{Si} + 0.5 \times \% \text{Nb} \quad (3.2-2)$$

上記フェライト相の各元素の重量分率を代入すると、30.3 wt%と求められる。この Cr 等量（30.3 wt%）をすべて Cr と考えた場合の原子分率に換算すると約 31.2at%となる。そこで、相分離の計算には、この値に最も近い計算条件である 31at%Cr を用いた Phase Field 法による 653 K での計算結果を近似的に適用することとする。この温度でのスピノーダル分解後の  $\alpha$  相（Fe リッチ相）および  $\alpha'$  相（Cr リッチ相）の組成（原子分率）は、それぞれ表 3.2-6、表 3.2-7 の通りとなる。

これらの結果は、高温状態のフェライト相が冷却される過程で、Fe リッチな  $\alpha$  相と Cr リッチな  $\alpha'$  相へと二相分離した組成である。そして、このスピノーダル分解が終了した後の二相（ $\alpha$  相および  $\alpha'$  相）の状態を、後続する G 相析出・成長の組成とみなす。そして分解後の二相組織において G 相が析出し、その平均粒径が 1 nm および 3 nm に達するまでの時間を、別途構築した機械学習予測モデルを適用してそれぞれ算出し、スピノーダル分解に要する時間と合算して等高線として示す機能を構築した。例えば、図 3.2-26 には 31 %Cr の 653 K においてスピノーダル分解が十分に進行したのちに、G 相が成長する時間を加味した時間の等高線を示す。スピノーダル分解が開始するまでの時間、1 nm, 3 nm まで成長する時間が  $\alpha$  相、 $\alpha'$  相に応じて表現されている。さらに図 3.2-27、28 に示すように、Cr 等量をもとに計算された Cr 濃度が 31 %の場合（図 3.2-27）と 35 %の場合（図 3.2-28）において、スピノーダル分解開始時間直後での Cr 量等高線や成長時間の表示ができるようになり、G 相の析出・成長の時間に関する定量的な把握ができるようになった。ここでは、ステンレス鋼におけるスピノーダル分解と G 相析出という二つの重要なミクロ組織変化が、どのように連携して進行するのかを詳細に評価した。特に、G 相が成長し始めるタイミングと、母相のクロム（Cr）濃度がその成長速度にどう影響するかに着目した。

G 相の成長を考える際、理想的な状況としてスピノーダル分解が十分に進行し、組織が均一化した後を想定することがある。これは図 3.2-26 で示されるようなイメージである。しかし、実際の材料中では、スピノーダル分解が始まった直後から、局所的に G 相が核生成し成長を開始する可能性がある。そこで、より現実的な状況を捉えるため、スピノーダル分解が開始した直後の時間を、G 相が析出し成長を始める「起点」と考え、解析を行った。

この「スピノーダル分解開始直後」を起点として、母相の Cr 濃度が G 相の成長時間にどのような影響を与えるかを検証した。具体的には、Cr 濃度が 31 %の場合（図 3.2-27）と 35 %の場合（図 3.2-28）について、それぞれスピノーダル分解開始後の Cr 濃度分布（等高線）と、そこから G 相が 1 nm および 3 nm の大きさに成長するまでの時間を計算し、等高線図として示した。

これらの解析から、まず、各図の青色で示される領域、すなわちスピノーダル分解によって生じた  $\alpha$  相（鉄リッチ相）から G 相が主に析出・成長することが確認された。

次に、スピノーダル分解の進行度と G 相成長の関係を Cr 濃度 31 %のケースで比較した。スピノーダル分解が十分に進行した後を起点とした場合（図 3.2-26）、G 相が 3 nm に成長するのに約 100 年かかると予測された。一方、スピノーダル分解開始直後を起点とし、まだ分解が十分に進んでいない（未スピノーダル分解とみなす）領域を考えると（図 3.2-27）、3 nm への成長には約 180 年かかる結果となった。この差は、スピノーダル分解が進行することで G 相の成長が促進される可能性を示唆する。つまり、スピノーダル分解によって Ni や Si といった G 相形成元素が  $\alpha$  相に濃化することが、G 相の成長を早める要因と考えられる。

さらに、Cr 濃度の増加による G 相成長の加速も観察された。スピノーダル分解開始直後を起点とした場合で比較すると、Cr 濃度が 31 %では G 相が 3 nm に成長するのに約 180 年かかると予測されたが、Cr 濃度を 35 %に増加させた場合（図 3.2-28）、この成長時間は約 30 年程度まで大幅に加速された。これは、母相の Cr 濃度が高いほど、スピノーダル分解後の  $\alpha$  相における G 相形成元素の濃化がより顕著になるか、あるいは  $\alpha$  相自体の G 相析出駆動力が大きくなるため、結果として G 相の成長が急速に進むことを示している。

これらの結果は、ステンレス鋼のマイクロ組織安定性を評価する上で、スピノーダル分解の進行度合いと母相の Cr 濃度が、G 相の析出・成長速度に大きな影響を与える重要な因子であることを示している。

当初計画を超える成果として、令和 6 年度は G 相析出挙動に及ぼす中性子照射の影響を検討した。実際の原子炉内環境においては、中性子照射下で熱時効の影響を受けることになるが、実機環境を実験的に再現するのは困難であるので、熱力学計算による劣化予測が期待される。中性子照射の影響は主として過剰空孔等の欠陥の導入と、これに伴う見かけの拡散速度の増加と考えられる。G 相は金属間化合物であるため、照射下においても G 相中には原子空孔が多くは存在せず、非照射下における生成エンタルピーと同じ生成エンタルピーを持つものと仮定して熱力学計算を実施した。また、我々のこれまでの研究において、中性子照射によりフェライト母相に過剰空孔が導入されても、G 相を含む各相の安定性にはほとんど影響がないことが示唆されている[3.2-8]。そこで本研究では、中性子照射による過剰空孔の影響を拡散速度の増加という形でモデル化した。本研究における G 相析出挙動の計算において、これは MEP の値の増加に相当する。

同一のステンレス溶接金属に対して、中性子照射下と非照射下の熱時効挙動を比較検討した報告は我々の知る限りは存在しないが、我々のこれまでの研究において、表 3.2-8 に示す合金組成

を有するステンレス溶接金属 D316L を  $2 \times 10^{22}$  n/m<sup>2</sup> 及び  $5 \times 10^{24}$  n/m<sup>2</sup> の中性子照射下で 275 °C で 8000 h 熱時効した結果、それぞれ 1.2 nm 及び 1.3 nm の G 相のクラスタリングが認められた[3. 2-8]。そこで本研究では、275 °C で約 8000 h の熱時効で G 相の平均粒径が 1.2 nm 及び 1.3 nm となるような MEP の値を算出し、式(3. 2-1)で求められる非照射下の MEP の値で除することにより、 $2 \times 10^{22}$  n/m<sup>2</sup> 及び  $5 \times 10^{24}$  n/m<sup>2</sup> の中性子照射による拡散速度の増加効果を定式化することとした。表 3. 2-9 に MEP のフィッティング結果を示す。検討の結果、 $2 \times 10^{22}$  n/m<sup>2</sup> の中性子照射条件では MEP の値が 11.7 倍、 $5 \times 10^{24}$  n/m<sup>2</sup> の中性子照射条件では MEP の値が 17.8 倍になると推定された。式(3. 2-1)により任意の温度に対する MEP の値を求め、それを 11.7 倍または 17.8 倍した MEP の値を採用することで、 $2 \times 10^{22}$  n/m<sup>2</sup> または  $5 \times 10^{24}$  n/m<sup>2</sup> の中性子照射下における G 相析出挙動を評価できると考えられる。最終的に求められた各温度に対する中性子照射条件及び非照射条件における MEP の値を表 3. 2-10 及び図 3. 2-29 に示す。

我々のこれまでの研究において、表 3. 2-11 に示す合金組成を有するステンレス溶接金属 D308L を  $5 \times 10^{24}$  n/m<sup>2</sup> の中性子照射下で 275 °C で 8000 h 熱時効した結果、1.6 nm の G 相のクラスタリングが認められた[3. 2-8]。表 3. 2-10 に示した  $5 \times 10^{24}$  n/m<sup>2</sup> の中性子照射下における MEP の値を用いて、表 3. 2-11 に示した D308L を  $5 \times 10^{24}$  n/m<sup>2</sup> の中性子照射下で 275 °C で 8000 h 熱時効した際の G 相粒径の計算結果を表 3. 2-12 に示す。本研究による G 相粒径の予測結果 (1.54 nm) は実験結果 (1.6 nm) と非常に良く一致しており、本研究で開発したモデルにより、中性子照射の影響を加味した G 相析出挙動を予測可能であると考えられる。表 3. 2-8 及び表 3. 2-11 に示したステンレス溶接金属 D316L 及び D308L に対して、表 3. 2-10 に示した MEP の値を用いて中性子照射下及び非照射下における各温度に対する G 相の析出挙動を予測し、Time-Temperature-Precipitation (TTP) 線図を計算した結果を図 3. 2-30 に示す。D316L と比較して D308L は数倍から 10 倍程度 G 相析出開始時間が早いと予測される。中性子照射下においては両合金ともに 10 倍程度 G 相析出開始時間が短時間側に移行するが、 $2 \times 10^{22}$  n/m<sup>2</sup> と  $5 \times 10^{24}$  n/m<sup>2</sup> の照射条件の違いによる G 相析出開始時間の違いはそれほど大きくないと予測される。また、D316L と D308L の G 相析出開始時間の差は、中性子照射下においては低温になるほど顕著になっている。以上述べたように、本研究で開発した TDB を用いた熱力学計算により、広範な温度・組成のステンレス鋼に対して、中性子照射の影響を加味した長時間の熱時効における G 相析出及び成長挙動を予測可能であると考えられる。

### (3) まとめ

本研究では、SUS316L 等のステンレス鋼における G 相析出挙動について、合金組成、スピノーダル分解、中性子照射の影響を評価した。熱力学計算により、Si 量等の組成調整で G 相析出量が制御可能であることを示し、促進/抑制組成で体積分率に最大 5 倍の差が生じることを示した。次に、高温フェライト相のスピノーダル分解後の  $\alpha/\alpha'$  相を初期状態とし、機械学習で G 相析出・成長時間を予測する手法を開発。令和 6 年度には析出時間マップを詳細解析し、合金元素や温度がスピノーダル分解と G 相析出の連成挙動に与える影響を定量評価が行えるようになった。さらに、計画を上回る成果として、中性子照射の影響を拡散速度の増加としてモデル化し、照射量に応じた拡散促進係数を算定。これにより照射下の G 相析出挙動を高精度に予測できることを

実証した（析出開始時間約 10 倍短縮等）。本研究の成果は、照射影響を含む広範な条件下での G 相析出予測を可能にし、予測精度向上、耐 G 相析出性材料設計や健全性評価への指針提供、高度な連成シミュレーション開発の基礎となる。

## 参考文献

- 3.2-1 J. O. Anderson: CALPHAD, 26 (2001), 273-312.
- 3.2-2 伊藤忠テクノソリューションズ engineering-eye: <http://www.engineering-eye.com/TC-PRISMA/>.
- 3.2-3 [https://thermocalc.com/wp-content/uploads/Documentation/Current\\_Static/precipitation-module-tc-prisma-user-guide.pdf](https://thermocalc.com/wp-content/uploads/Documentation/Current_Static/precipitation-module-tc-prisma-user-guide.pdf).
- 3.2-4 K. C. Russell, Nucleation in solids: The induction and steady state effects. Adv. Colloid Interface Sci. 13, 205-318 (1980).
- 3.2-5 D. Kashchiev. Nucleation. Butterworth-Heinemann, 2000.
- 3.2-6 Henrik Larsson, Lars Höglund, CALPHAD 33 (2009) 495-501.
- 3.2-7 古原忠: 鉄と鋼, 89 (2003), 497-509.
- 3.2-8 H29 年度 MEXT 成果報告書.
- 3.2-9 J. M. Vitek, S. A. David, D. J. Alexander, J. R. Keiser, R. K. Nanstad: Acta Metall. Mater., 39 (1991), 503-516.
- 3.2-10 Y. Matsukawa, T. Takeuchi, Y. Kakubo, T. Suzudo, H. Watanabe, H. Abe, T. Toyama, Y. Nagai: Acta Materialia, 116 (2016), 104-113.
- 3.2-11 T. Hamaoka, A. Nomoto, K. Nishida, K. Dohi, N. Soneda: Philosophical Magazine, 92, 34 (2012), 4354-4375.
- 3.2-12 Y. Chen, B. Alexandrescu, W.-Y. Chen, K. Natesan, Z. Li, Y. Yang, A. S. Rao: J. Nuclear Materials, 466 (2015), 560-568.
- 3.2-13 R. Badyka, S. SAILLET, J. Emo, C. Domain, C. Pareige: J. Nuclear Materials, 555 (2021) 153123.
- 3.2-14 <https://www.tokkin.co.jp/search/stainless-steels/austenitic/316l/>
- 3.2-15 Saunders, N., Miodownik, A. P. (1998). *CALPHAD (Calculation of Phase Diagrams): A Comprehensive Guide*. Pergamon Materials Series, Vol. 1. Oxford: Elsevier Science Ltd.
- 3.2-16 Schaeffler AL (1949) Constitution Diagram for Stainless Steel Weld Metal. Met. Progr. 56:680 and 680B.

表 3. 2-1 本研究において実施した G 相析出計算の条件範囲

		範囲
フェライト相組成[wt.%]	Cr	0～83.0
	Ni	5.0～10.0
	Si	0.1～1.0
	Mn	1.0～3.0
	Mo	0.01～3.0
	N	0.02固定
	C	0.0025固定
	Fe	bal.
時効温度[K]		473～773
析出サイト		バルク/転位
転位密度[1/m <sup>2</sup> ]		10 <sup>10</sup> ～16
界面エネルギー[J/m <sup>2</sup> ]		0.05～0.40

表 3. 2-2 本研究において実施した高 Cr 濃度域における G 相析出計算の改良後の条件範囲

		範囲
フェライト相組成[wt.%]	Cr	65.0～90.0
	Ni	3.0～8.0
	Si	0.1～1.0
	Mn	0.01～3.0
	Mo	0.01～10.0
	N	0.02固定
	C	0.0025固定
	Fe	bal.
時効温度[K]		473～773
析出サイト		バルク/転位
転位密度[1/m <sup>2</sup> ]		10 <sup>11</sup> ～14
界面エネルギー[J/m <sup>2</sup> ]		0.1～0.3

表 3. 2-3 SUS316L 及び SUS304L の化学成分規格、本研究で用いた SUS316L 及び SUS304L の合金組成及び最も G 相析出が促進または抑制され则认为られる SUS316L の合金組成

合金組成 wt%	Fe	Cr	Ni	Mo	Mn	Si	C
SUS304L 化学成分規格	bal.	18.0～ 20.0	9.0～ 13.0	-	0～2.0	0～1.0	0～ 0.03
SUS316L 化学成分規格	bal.	16.0～ 18.0	12.0～ 15.0	2.0～ 3.0	0～2.0	0～1.0	0～ 0.03
本研究で用いた SUS316L(1)	bal.	17.0	12.1	2.8	1.2	0.4	0.01
本研究で用いた SUS316L(2)	bal.	16.3	12.3	2.1	0.9	0.6	0.01
本研究で用いた SUS304L	bal.	18.2	9.1	-	0.8	0.5	0.03
SUS316L G 相促進	bal.	18.0	15.0	3.0	2.0	1.0	0.01
SUS316L G 相抑制	bal.	16.0	12.0	2.0	2.0	0.2	0.01

表 3. 2-4 表 3. 2-3 に示した各合金組成に対する $\alpha$ 相組成の計算結果

フェライト相組成 wt%	Fe	Cr	Ni	Mo	Mn	Si
SUS316L(1)	71.0	18.6	6.5	3.2	0.2	0.5
SUS316L(2)	71.7	17.6	7.4	2.4	0.3	0.7
SUS304L	73.8	19.3	5.7	-	0.7	0.5
SUS316L G 相促進	66.8	20.1	8.8	2.4	0.9	1.2
SUS316L G 相抑制	74.7	18.0	4.5	2.3	0.4	0.2

表 3.2-5: 900K におけるフェライト相の組成 (重量分率)

元素	重量分率
NI	3.40751E-02
MN	5.71431E-03
S	1.27571E-03
C	1.10163E-04
CR	2.75944E-01
MO	2.46760E-02
SI	1.60243E-03
P	1.30980E-04

表 3.2-6:  $\alpha$  相 (Fe リッチ相) の組成 (原子分率)

元素	原子分率
FE	9.30250E-01
NI	1.78699E-02
MO	1.96547E-03
MN	1.55084E-04
C	2.55060E-09
CR	4.50178E-02
S	3.25468E-03
SI	1.48374E-03
P	3.78308E-06

表 3.2-7:  $\alpha'$  相 (Cr リッチ相) の組成 (原子分率)

元素	原子分率
CR	9.56283E-01
MN	2.05919E-02
NI	1.05001E-05
S	9.11733E-09
P	1.00000E-12
FE	2.11786E-02
MO	1.93114E-03
SI	5.18590E-06
C	3.73852E-11



表 3. 2-8 中性子照射下で熱時効したステンレス溶接金属 D316L 中の G 相粒径の実験結果  
[3. 2-8]

D316L (wt%)	時効温度 [°C]	時効時間 [h]	照射条件	G 相粒径 [nm] 3D-AP にて評価
Fe-19.6Cr-12.5Ni-0.6Si-2.3Mo- 1.5Mn-0.02C	275	8000	$2 \times 10^{22} \text{ n/m}^2$	1.2
			$5 \times 10^{24} \text{ n/m}^2$	1.3

表 3. 2-9 表 3. 2-8 に示した各中性子照射条件下における MEP のフィッティング結果

D316L 照射条件 $2 \times 10^{22} \text{ n/m}^2$ (275°C)		
MEP	時間 [h]	平均直径 [nm]
MEP: $3.18 \times 10^7$ MEP 比: 11.7	2935	1.00
	8107	1.20

D316L 照射条件 $5 \times 10^{24} \text{ n/m}^2$ (275°C)		
MEP	時間 [h]	平均直径 [nm]
MEP: $4.86 \times 10^7$ MEP 比: 17.8	1920	1.00
	8033	1.30

表 3. 2-10 各温度に対する中性子照射条件及び非照射条件における MEP の値

温度 [°C]	MEP(非照射)	MEP 弱照射 ( $2 \times 10^{22} \text{ n/m}^2$ )	MEP 強照射 ( $5 \times 10^{24} \text{ n/m}^2$ )
200	$3.85 \times 10^8$	$4.49 \times 10^9$	$6.86 \times 10^9$
225	$6.27 \times 10^7$	$7.31 \times 10^8$	$1.12 \times 10^9$
250	$1.21 \times 10^7$	$1.41 \times 10^8$	$2.16 \times 10^8$
275	$2.73 \times 10^6$	$3.18 \times 10^7$	$4.86 \times 10^7$
300	$6.99 \times 10^5$	$8.14 \times 10^6$	$1.24 \times 10^7$
325	$2.01 \times 10^5$	$2.34 \times 10^6$	$3.57 \times 10^6$
350	$6.36 \times 10^4$	$7.41 \times 10^5$	$1.13 \times 10^6$
375	$2.21 \times 10^4$	$2.57 \times 10^5$	$3.93 \times 10^5$
400	8268	$9.63 \times 10^4$	$1.47 \times 10^5$
425	3326	$3.88 \times 10^4$	$5.92 \times 10^4$
450	1425	$1.66 \times 10^4$	$2.54 \times 10^4$
475	646	7527	$1.15 \times 10^4$
500	308	3592	5489

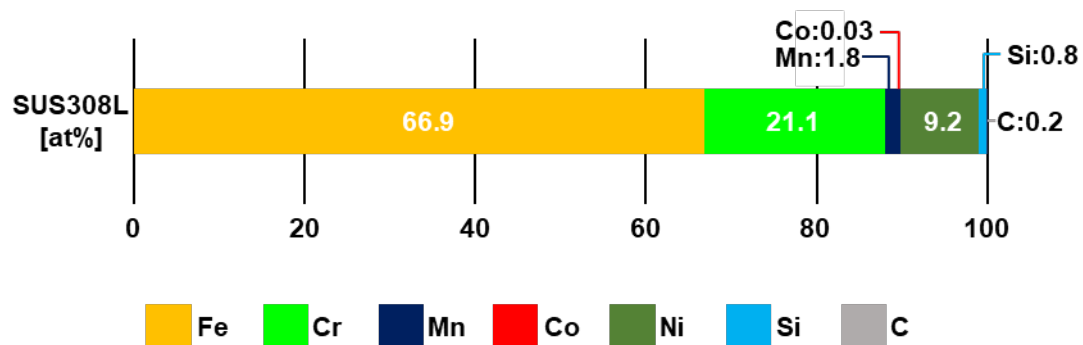
表 3. 2-11 中性子照射下で熱時効したステンレス溶接金属 D308L 中の G 相粒径の実験結果  
[3. 2-8]

D308L (wt%)	時効温度 [°C]	時効時間 [h]	照射条件	G 相粒径 [nm] 3D-AP にて評価
Fe-19.9Cr-9.8Ni-0.4Si-1.8Mn-0.03C	275	8000	$5 \times 10^{24} \text{ n/m}^2$	1.6

表 3. 2-12 表 3. 2-11 に示した中性子照射条件下におけるステンレス溶接金属 D308L 中の G 相粒径の計算結果

D308L 照射条件 $5 \times 10^{24} \text{ n/m}^2$ (275°C)		
MEP	時間 [h]	平均直径 [nm]
MEP: $4.86 \times 10^7$ MEP 比: 17.8	8000	1.54

SUS308L							
元素	Fe	Cr	Mn	Co	Ni	Si	C
wt%	68.0	19.9	1.8	0.03	9.8	0.4	0.03
at%	66.9	21.1	1.8	0.03	9.2	0.8	0.20



SUS316L							
元素	Fe	Cr	Mn	Mo	Ni	Si	C
wt%	63.6	19.6	1.5	2.3	12.5	0.6	0.02
at%	63.2	20.9	1.5	1.3	11.8	1.2	0.10

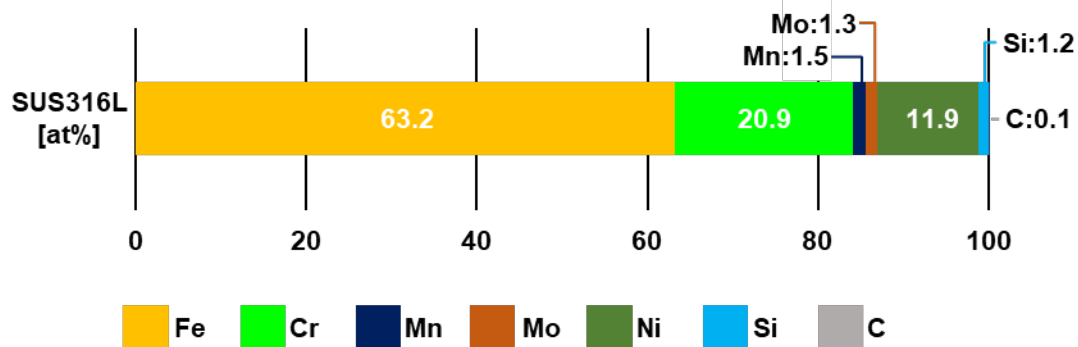
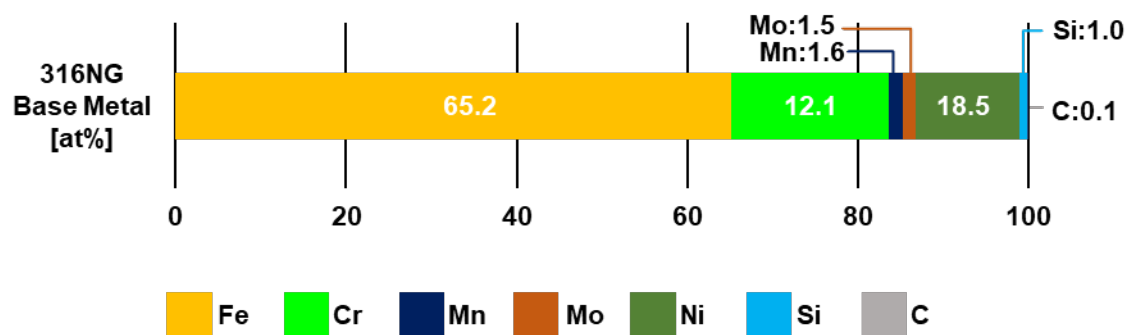


図 3. 2-1 従来の研究[3. 2-8]で用いた SUS308L および SUS316L 溶接金属の組成

316NG Base Metal							
元素	Fe	Cr	Mn	Mo	Ni	Si	C
wt%	65.2	17.3	1.6	2.6	12.8	0.5	0.01
at%	65.2	18.5	1.6	1.5	12.1	1.0	0.10



316L Weld Metal							
元素	Fe	Cr	Mn	Mo	Ni	Si	C
wt%	64.4	19.2	1.7	2.2	12.1	0.5	0.02
at%	64.0	20.5	1.7	1.3	11.4	1.0	0.10

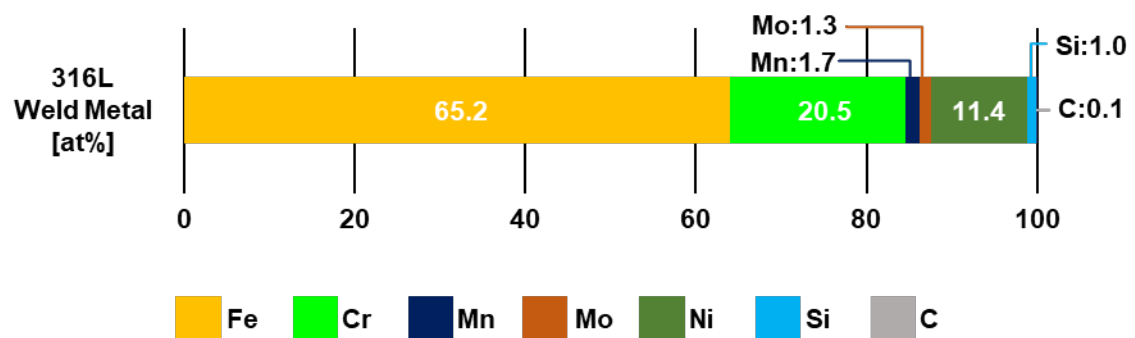


図 3.2-2 本研究で用いた SUS316NG 母相および SUS316L 溶接金属の組成

組成at%		Fe	Cr	Mn	Co	Ni	Si	C
スピノーダル 分解前 $\alpha$	SSOL9	71.2	24.3	1.8	0.03	2.2	0.5	$4.5 \times 10^{-6}$
	本研究	70.9	22.5	0.9	0.03	4.7	0.9	$9.6 \times 10^{-8}$
スピノーダル 分解後 $\alpha$	SSOL9	92.4	3.9	0.1	0.04	2.9	0.6	$5.8 \times 10^{-6}$
	本研究	88.2	4.8	0.1	0.02	5.8	1.1	$1.2 \times 10^{-7}$
スピノーダル 分解後 $\alpha'$	SSOL9	1.2	91.3	7.5	$2.2 \times 10^{-5}$	$9.9 \times 10^{-4}$	$3.7 \times 10^{-4}$	$2.9 \times 10^{-7}$
	本研究	2.0	93.6	4.3	$2.1 \times 10^{-7}$	$3.6 \times 10^{-5}$	0.1	$1.4 \times 10^{-9}$

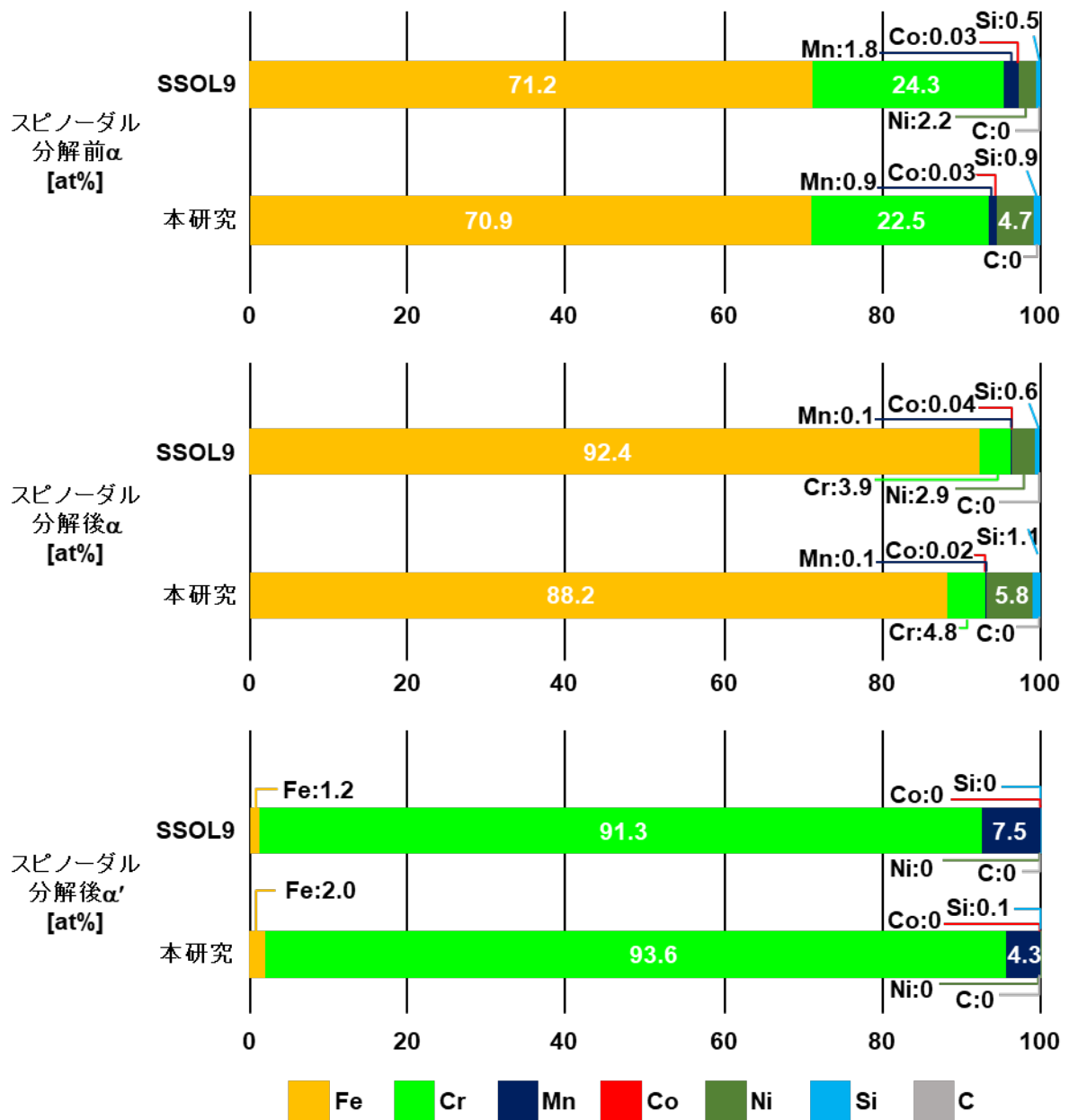


図 3. 2-3 従来の研究[3. 2-8]で用いた SUS308L 溶接金属の 300 °Cにおけるスピノーダル分解前の $\alpha$ 相、スピノーダル分解後の $\alpha$ 相および $\alpha'$ 相の組成の計算結果

300℃	析出時間 [h]	
平均粒径	1nm	3nm
スピノーダル分解前 $\alpha$	507	44495
スピノーダル分解後 $\alpha$	46	発散
スピノーダル分解後 $\alpha'$	137年で1nm未満	

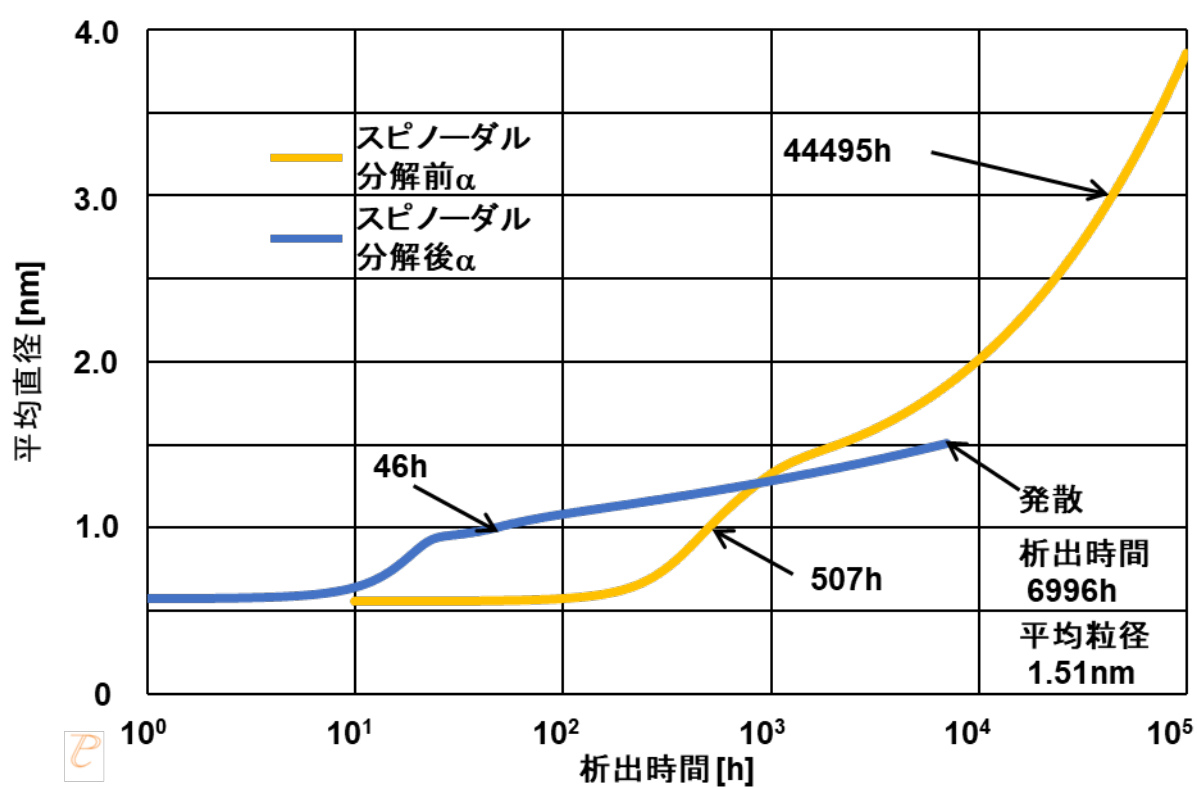


図 3. 2-4 従来の研究[3. 2-8]で用いた SUS308L 溶接金属の 300 °Cにおけるスピノーダル分解前の $\alpha$ 相、スピノーダル分解後の $\alpha$ 相および $\alpha'$ 相の組成に対する G 相析出挙動の計算結果

組成at%		Fe	Cr	Mn	Co	Ni	Si	C
スピノーダル 分解前 $\alpha$	SSOL9	70.8	24.1	0.9	0.03	3.5	0.7	$4.4 \times 10^{-4}$
	本研究	70.2	22.3	0.9	0.08	5.5	0.9	$1.6 \times 10^{-5}$
スピノーダル 分解後 $\alpha$	SSOL9	85.2	9.5	0.2	0.04	4.2	0.8	$5.2 \times 10^{-4}$
	本研究	81.6	10.6	0.2	0.04	6.5	1.1	$1.9 \times 10^{-5}$
スピノーダル 分解後 $\alpha'$	SSOL9	5.8	89.8	4.4	$3.1 \times 10^{-4}$	0.02	0.01	$5.1 \times 10^{-5}$
	本研究	5.6	88.8	5.3	$2.1 \times 10^{-6}$	$2.7 \times 10^{-4}$	0.3	$3.6 \times 10^{-7}$

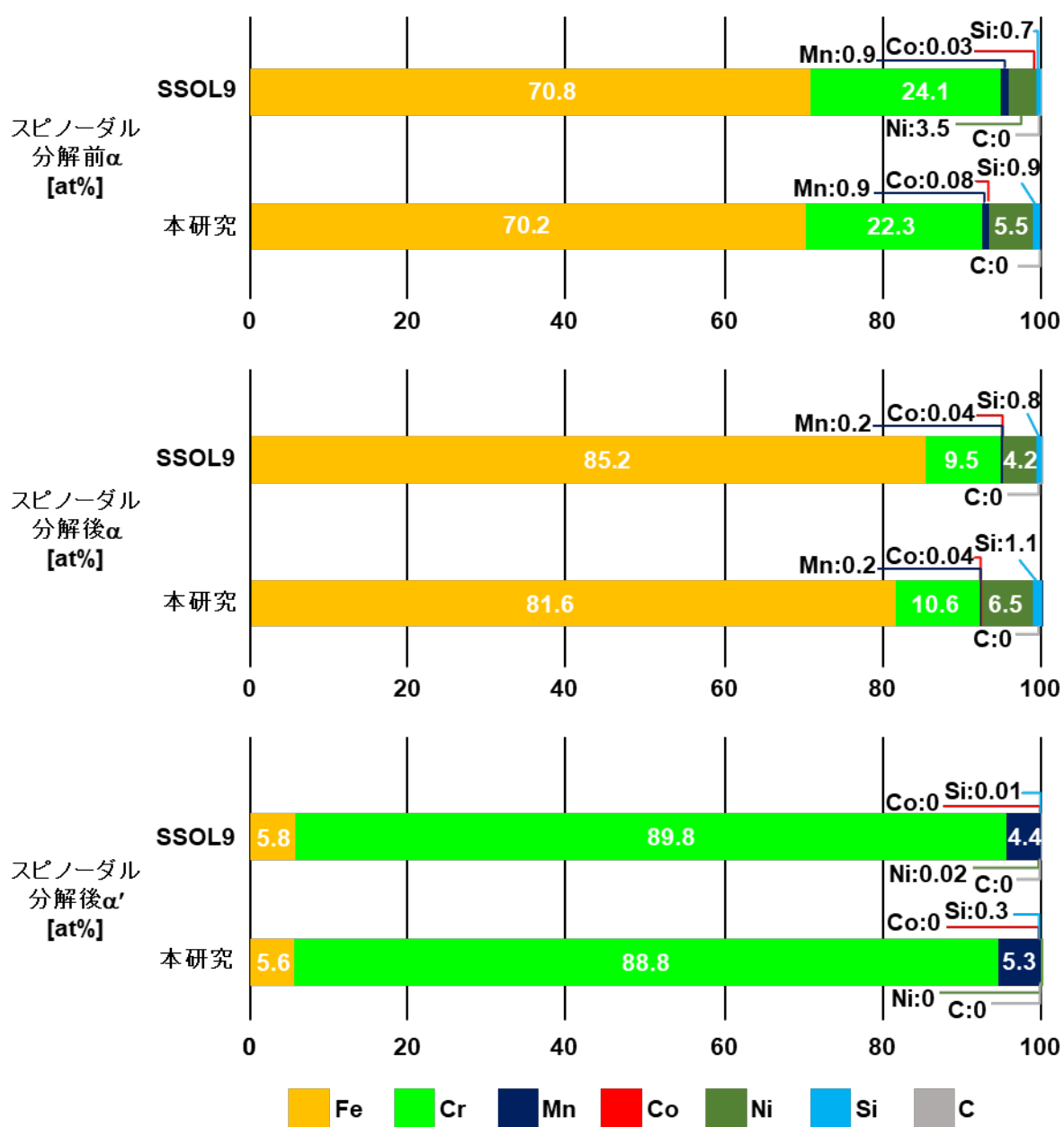


図 3. 2-5 従来の研究[3. 2-8]で用いた SUS308L 溶接金属の 400 °Cにおけるスピノーダル分解前の $\alpha$ 相、スピノーダル分解後の $\alpha$ 相および $\alpha'$ 相の組成の計算結果

400℃	析出時間[h]	
平均粒径	1nm	3nm
スピノーダル分解前 $\alpha$	2.2	106
スピノーダル分解後 $\alpha$	0.4	38
スピノーダル分解後 $\alpha'$	137年で1nm未満	

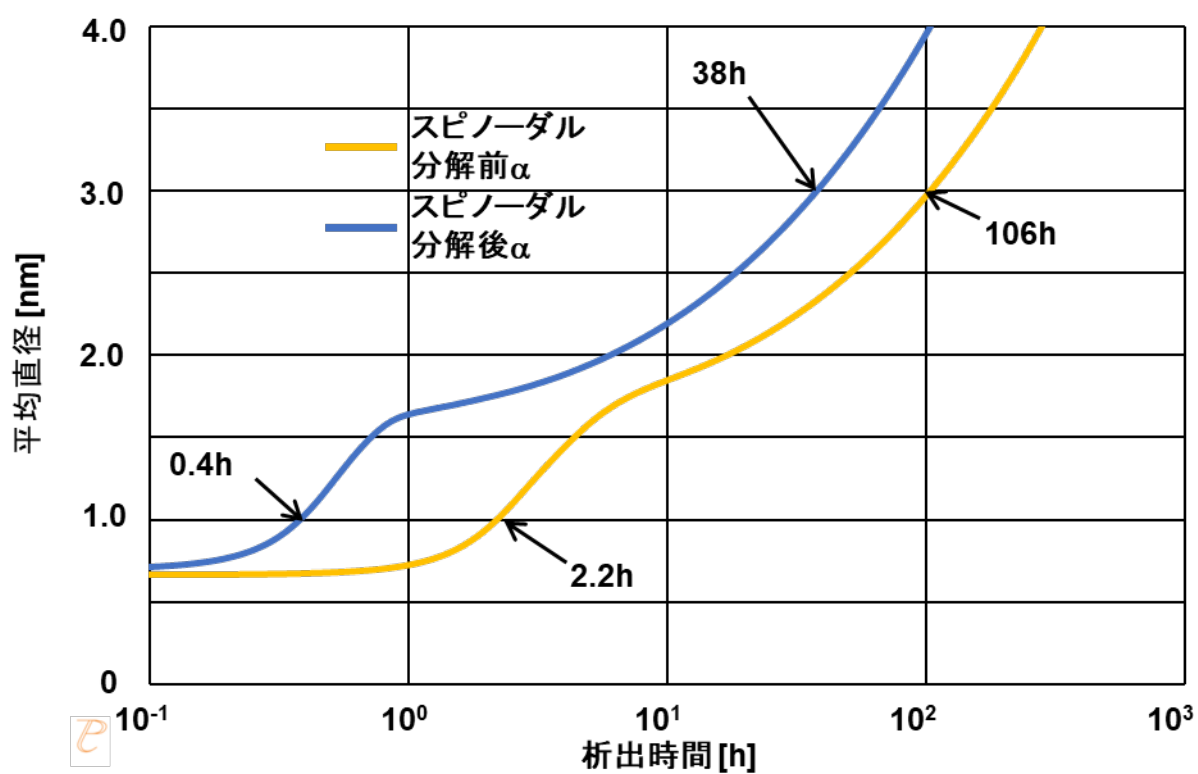


図 3. 2-6 従来の研究[3. 2-8]で用いた SUS308L 溶接金属の 400 ℃におけるスピノーダル分解前の $\alpha$ 相、スピノーダル分解後の $\alpha$ 相および $\alpha'$ 相の組成に対する G 相析出挙動の計算結果



組成at%		Fe	Cr	Mn	Mo	Ni	Si	C
スピノーダル 分解前 $\alpha$	SSOL9	68.3	25.5	1.8	1.6	2.1	0.7	$9.6 \times 10^{-8}$
	本研究	67.2	22.9	0.5	1.4	6.6	1.4	$4.1 \times 10^{-8}$
スピノーダル 分解後 $\alpha$	SSOL9	90.5	3.8	0.1	1.8	2.8	0.9	$1.3 \times 10^{-7}$
	本研究	84.0	4.6	0.02	1.4	8.2	1.7	$5.1 \times 10^{-8}$
スピノーダル 分解後 $\alpha'$	SSOL9	1.3	90.8	6.9	1.0	0.01	0.01	$5.8 \times 10^{-9}$
	本研究	2.0	94.2	2.2	1.4	$5.2 \times 10^{-5}$	0.2	$5.9 \times 10^{-10}$

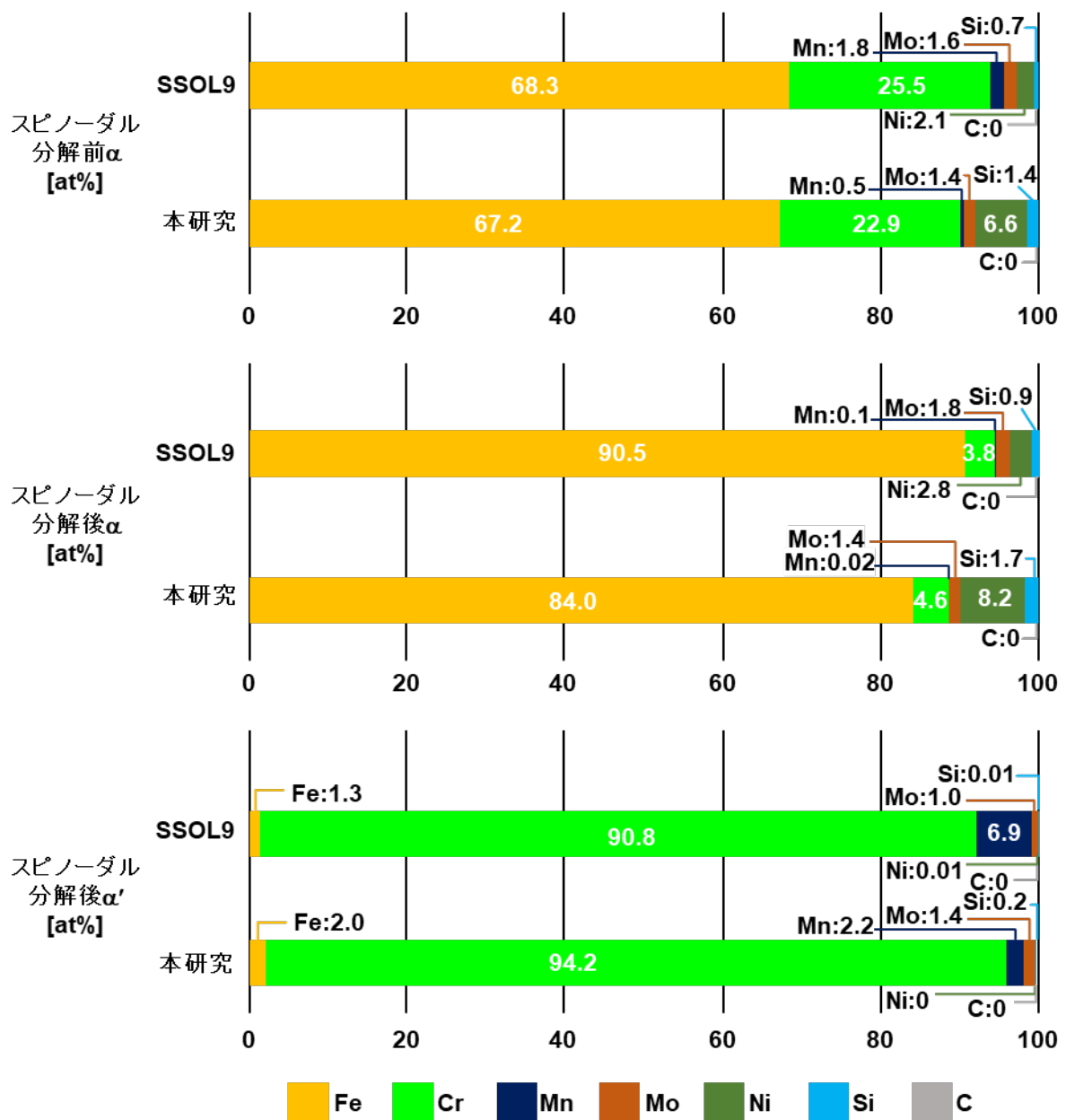


図 3. 2-7 従来の研究[3. 2-8]で用いた SUS316L 溶接金属の 300 °Cにおけるスピノーダル分解前の $\alpha$ 相、スピノーダル分解後の $\alpha$ 相および $\alpha'$ 相の組成の計算結果

300℃	析出時間[h]	
平均粒径	1nm	3nm
スピノーダル分解前 $\alpha$	1889	360365
スピノーダル分解後 $\alpha$	228	44961
スピノーダル分解後 $\alpha'$	137年で1nm未満	

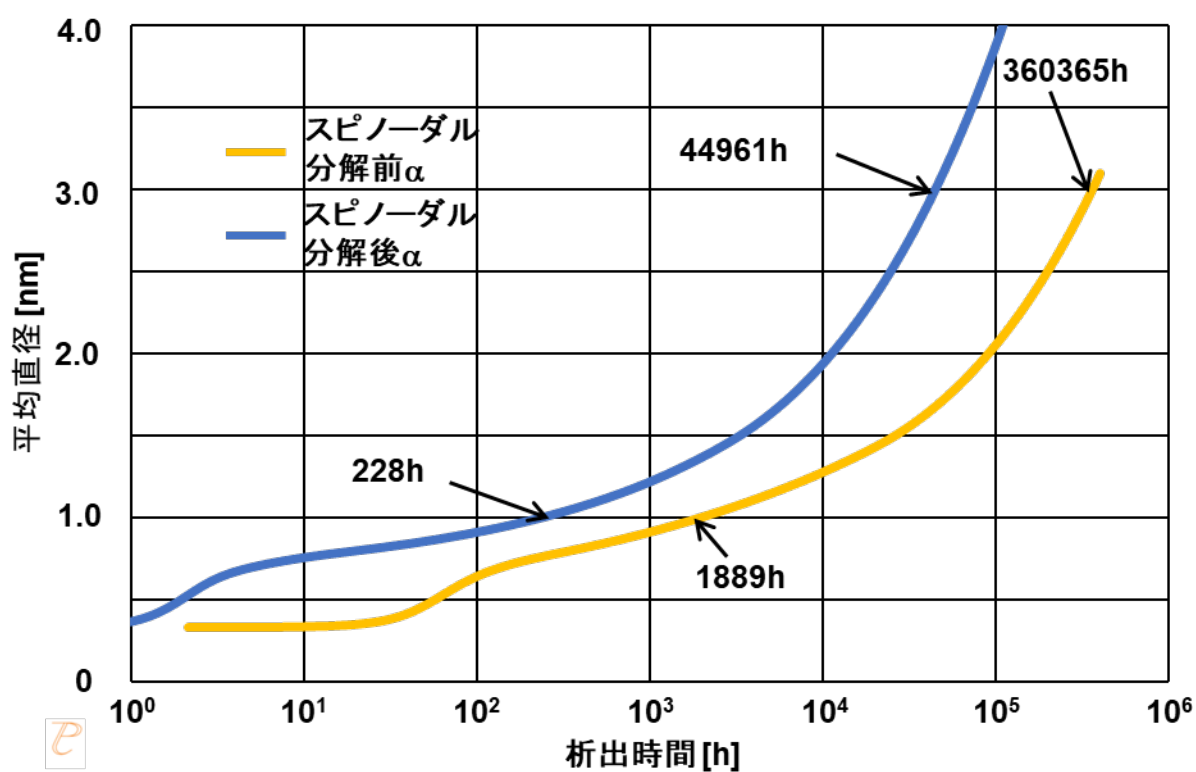


図 3. 2-8 従来の研究[3. 2-8]で用いた SUS316L 溶接金属の 300 ℃におけるスピノーダル分解前の $\alpha$ 相、スピノーダル分解後の $\alpha$ 相および $\alpha'$ 相の組成に対する G 相析出挙動の計算結果

組成at%		Fe	Cr	Mn	Mo	Ni	Si	C
スピノーダル 分解前 $\alpha$	SSOL9	67.7	25.7	0.7	1.5	3.5	1.0	$2.2 \times 10^{-5}$
	本研究	66.4	22.9	0.6	1.4	7.3	1.5	$6.3 \times 10^{-6}$
スピノーダル 分解後 $\alpha$	SSOL9	83.6	9.3	0.1	1.5	4.4	1.2	$2.7 \times 10^{-5}$
	本研究	77.8	10.4	0.1	1.4	8.7	1.6	$7.5 \times 10^{-6}$
スピノーダル 分解後 $\alpha'$	SSOL9	5.8	89.7	3.0	1.5	0.02	0.02	$2.1 \times 10^{-6}$
	本研究	5.6	89.1	3.0	1.5	$3.5 \times 10^{-4}$	0.7	$1.6 \times 10^{-7}$

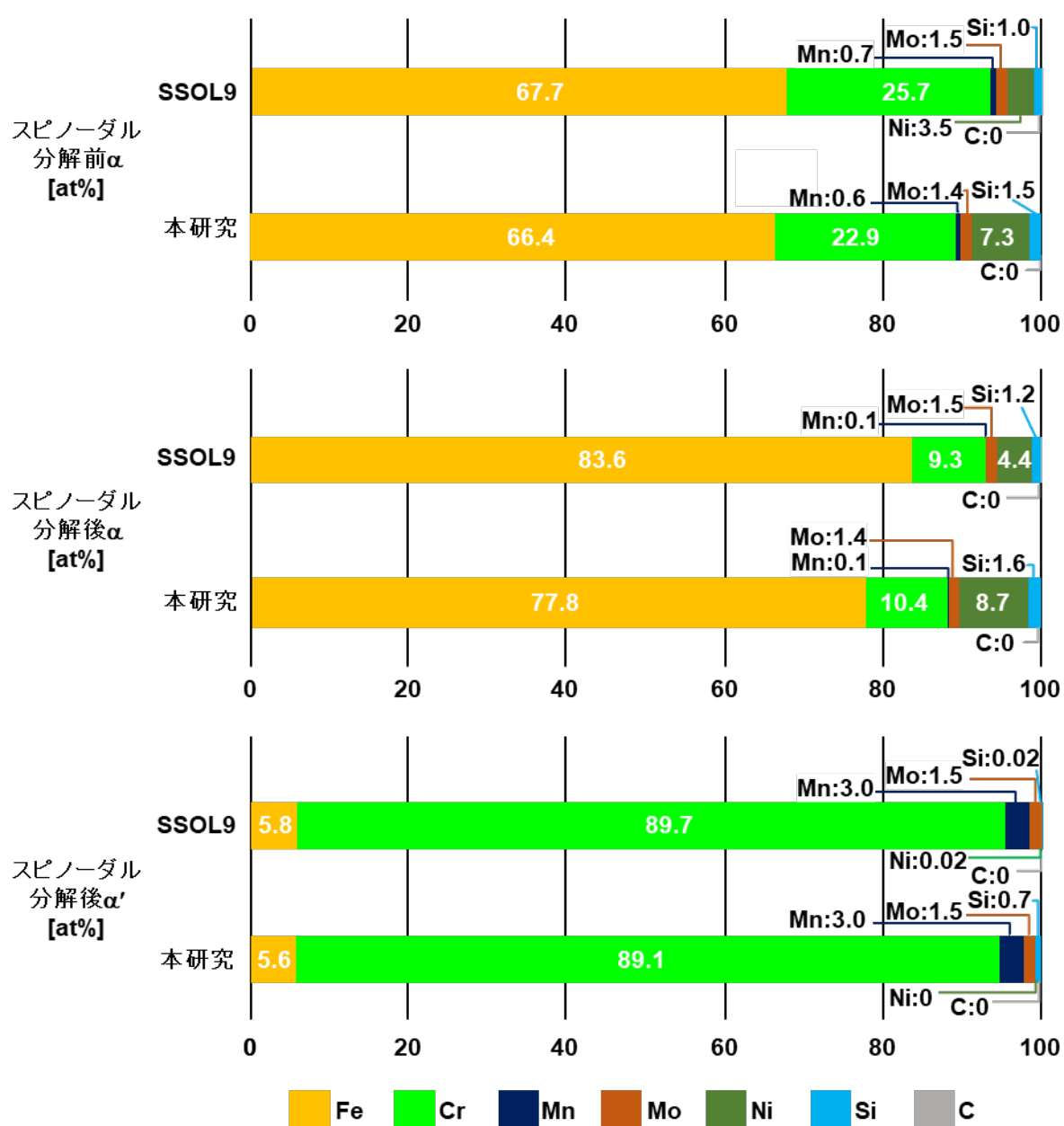


図 3. 2-9 従来の研究[3. 2-8]で用いた SUS316L 溶接金属の 400 °Cにおけるスピノーダル分解前の $\alpha$ 相、スピノーダル分解後の $\alpha$ 相および $\alpha'$ 相の組成の計算結果

400℃	析出時間 [h]	
平均粒径	1nm	3nm
スピノーダル分解前 $\alpha$	3.5	558
スピノーダル分解後 $\alpha$	0.8	262
スピノーダル分解後 $\alpha'$	137年で1nm未満	

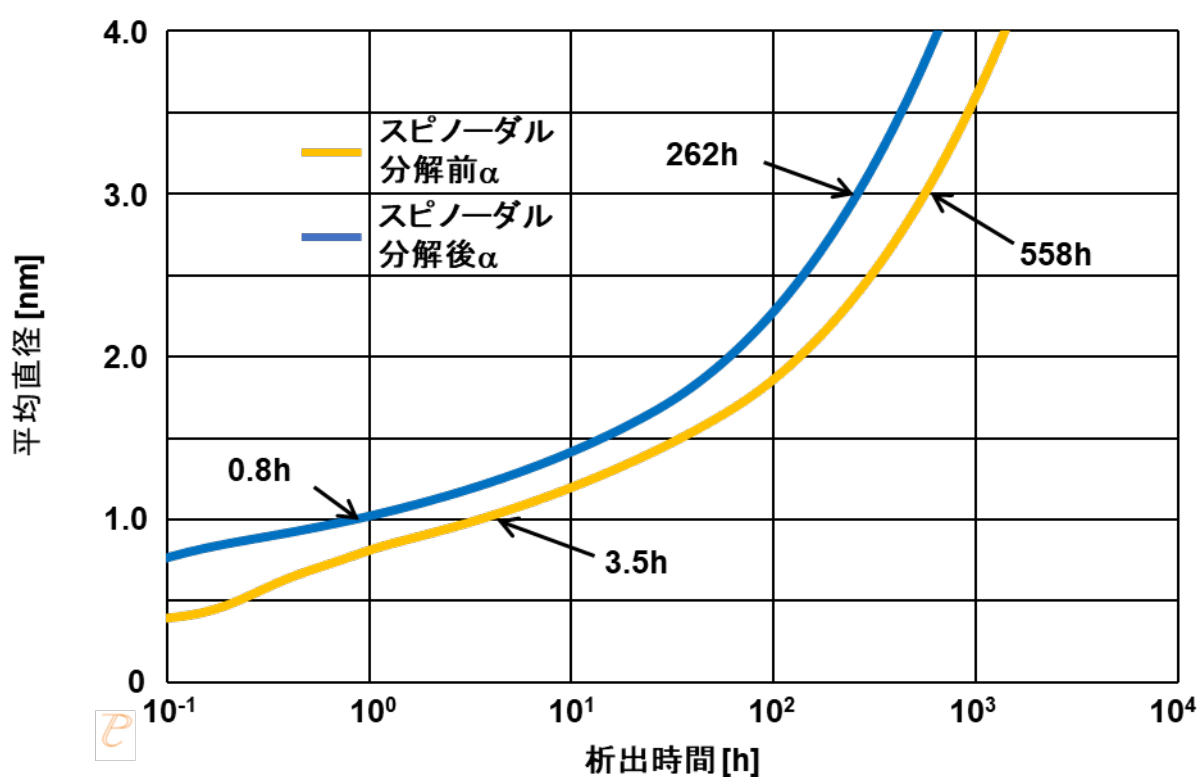


図 3.2-10 従来の研究[3.2-8]で用いた SUS316L 溶接金属の 400 °Cにおけるスピノーダル分解前の $\alpha$ 相、スピノーダル分解後の $\alpha$ 相および $\alpha'$ 相の組成に対する G 相析出挙動の計算結果

組成at%		Fe	Cr	Mn	Mo	Ni	Si	C
スピノーダル 分解前 $\alpha$	SSOL9	71.0	22.8	1.7	1.9	2.2	0.5	$1.1 \times 10^{-7}$
	本研究	70.2	20.5	0.3	1.6	6.2	1.1	$3.8 \times 10^{-9}$
スピノーダル 分解後 $\alpha$	SSOL9	90.4	3.9	0.1	2.1	2.8	0.6	$1.4 \times 10^{-7}$
	本研究	84.8	4.6	0.02	1.6	7.6	1.4	$4.6 \times 10^{-9}$
スピノーダル 分解後 $\alpha'$	SSOL9	1.2	90.3	7.4	1.1	$9.9 \times 10^{-4}$	$3.9 \times 10^{-4}$	$6.2 \times 10^{-9}$
	本研究	2.0	94.5	1.8	1.6	$4.9 \times 10^{-5}$	0.1	$5.2 \times 10^{-11}$

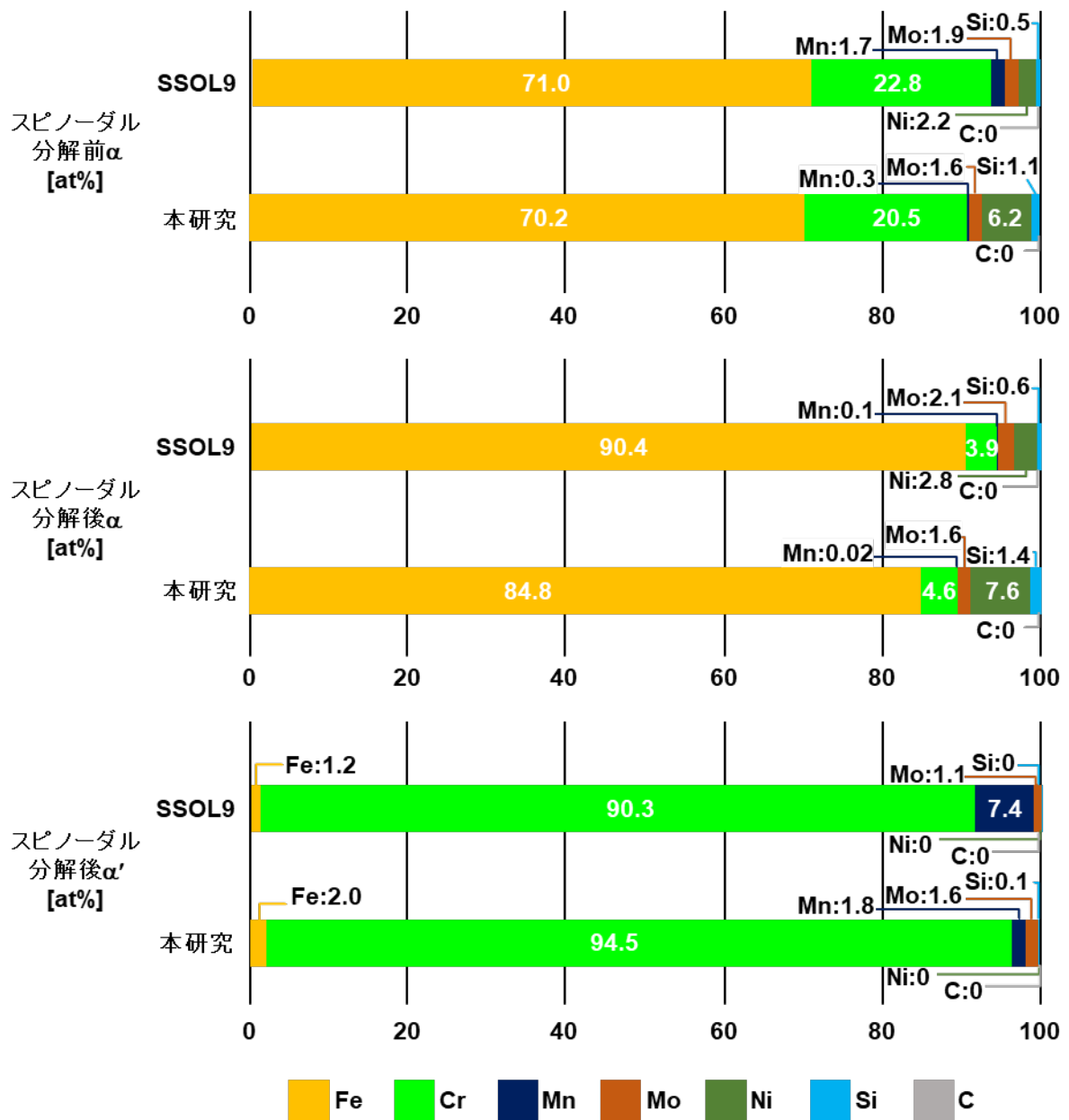


図 3. 2-11 本研究で用いた SUS316NG 母相の 300 °Cにおけるスピノーダル分解前の $\alpha$ 相、スピノーダル分解後の $\alpha$ 相および $\alpha'$ 相の組成の計算結果

300℃	析出時間 [h]	
平均粒径	1nm	3nm
スピノーダル分解前 $\alpha$	1807	548707
スピノーダル分解後 $\alpha$	761	246418
スピノーダル分解後 $\alpha'$	137年で1nm未満	

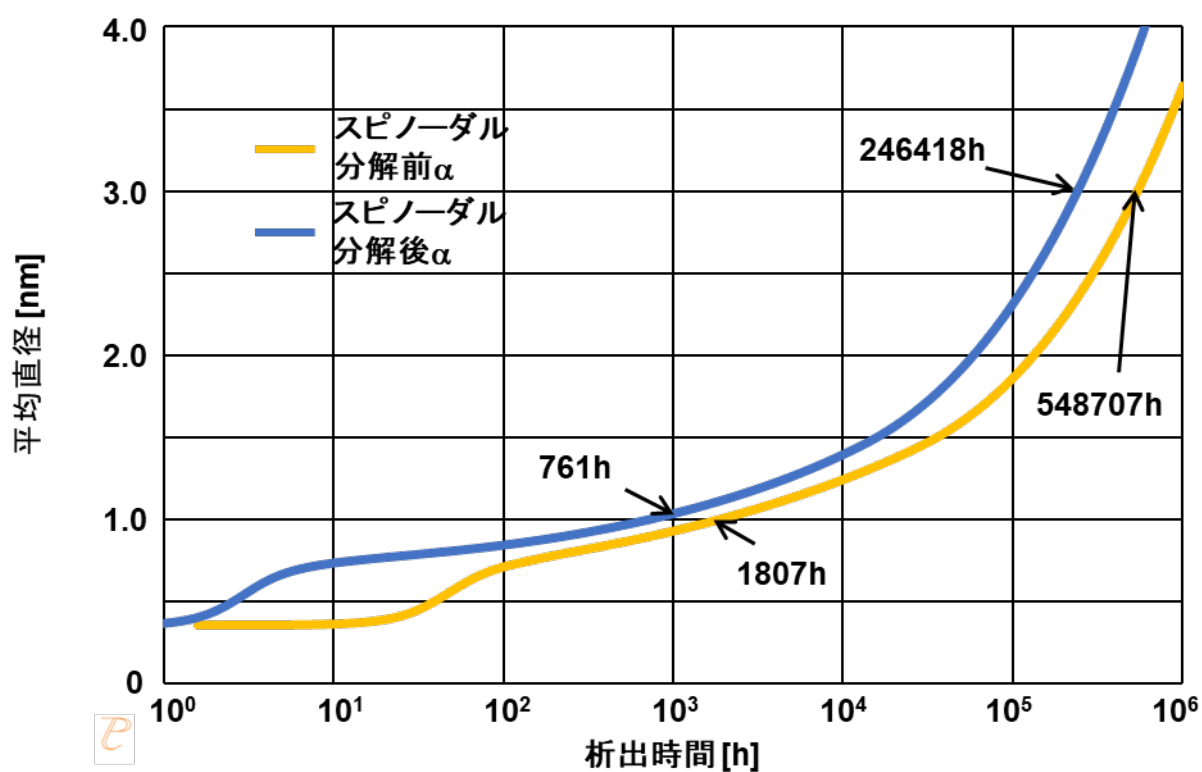


図 3. 2-12 本研究で用いた SUS316NG 母相の 300 ℃におけるスピノーダル分解前の $\alpha$ 相、スピノーダル分解後の $\alpha$ 相および $\alpha'$ 相の組成に対する G 相析出挙動の計算結果

組成at%		Fe	Cr	Mn	Mo	Ni	Si	C
スピノーダル 分解前 $\alpha$	SSOL9	70.7	22.6	0.7	1.7	3.6	0.7	$2.7 \times 10^{-5}$
	本研究	69.4	20.5	0.5	1.6	6.9	1.2	$2.1 \times 10^{-6}$
スピノーダル 分解後 $\alpha$	SSOL9	83.5	9.5	0.1	1.7	4.3	0.9	$3.2 \times 10^{-5}$
	本研究	78.7	10.4	0.1	1.6	7.9	1.3	$2.4 \times 10^{-6}$
スピノーダル 分解後 $\alpha'$	SSOL9	5.8	89.1	3.4	1.7	0.02	0.01	$2.2 \times 10^{-6}$
	本研究	5.6	89.4	2.8	1.8	$3.3 \times 10^{-4}$	0.4	$5.5 \times 10^{-8}$

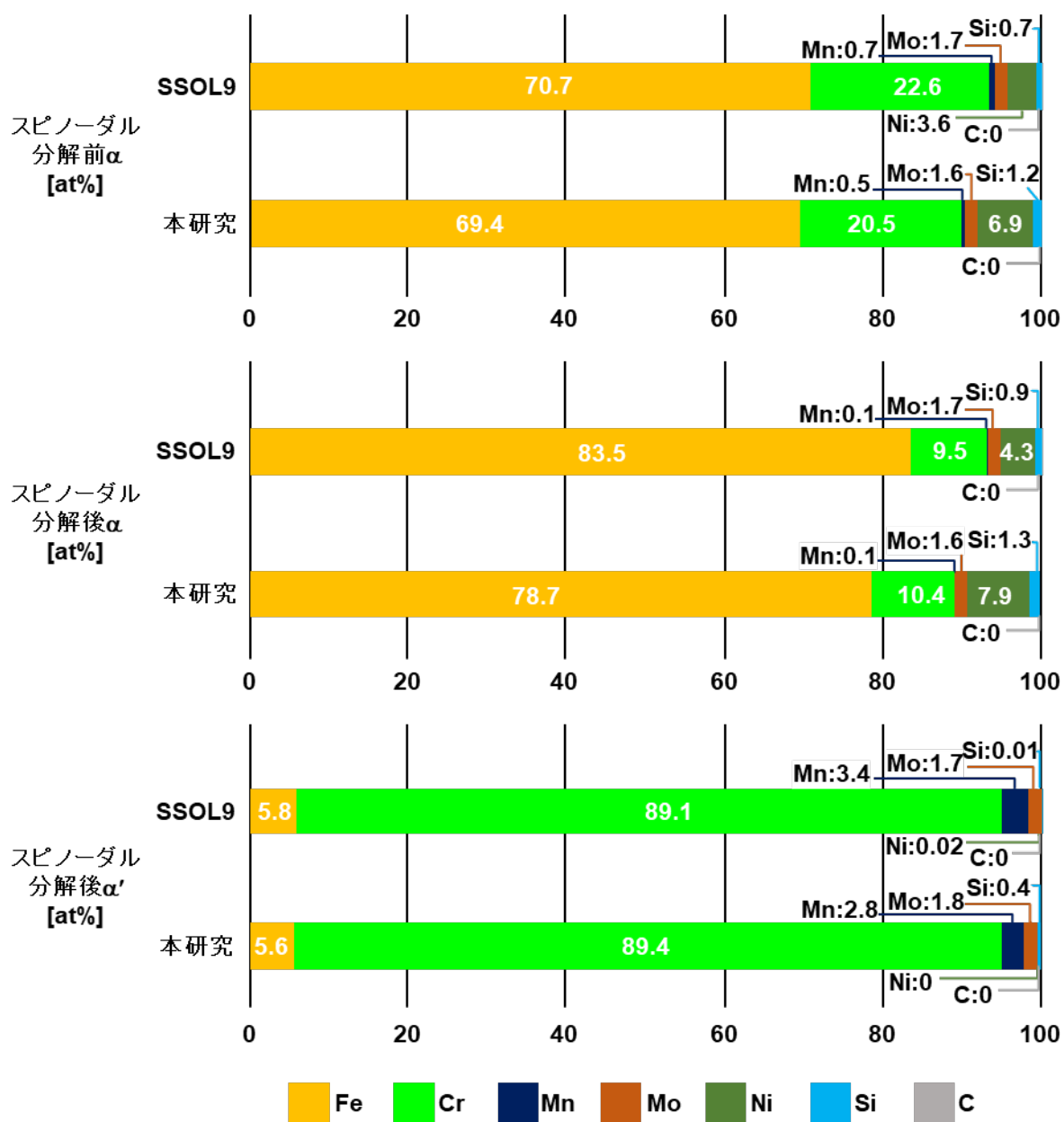


図 3. 2-13 本研究で用いた SUS316NG 母相の 400 °Cにおけるスピノーダル分解前の $\alpha$ 相、スピノーダル分解後の $\alpha$ 相および $\alpha'$ 相の組成の計算結果

400℃	析出時間 [h]	
平均粒径	1nm	3nm
スピノーダル分解前 $\alpha$	2.7	616
スピノーダル分解後 $\alpha$	0.9	356
スピノーダル分解後 $\alpha'$	137年で1nm未満	

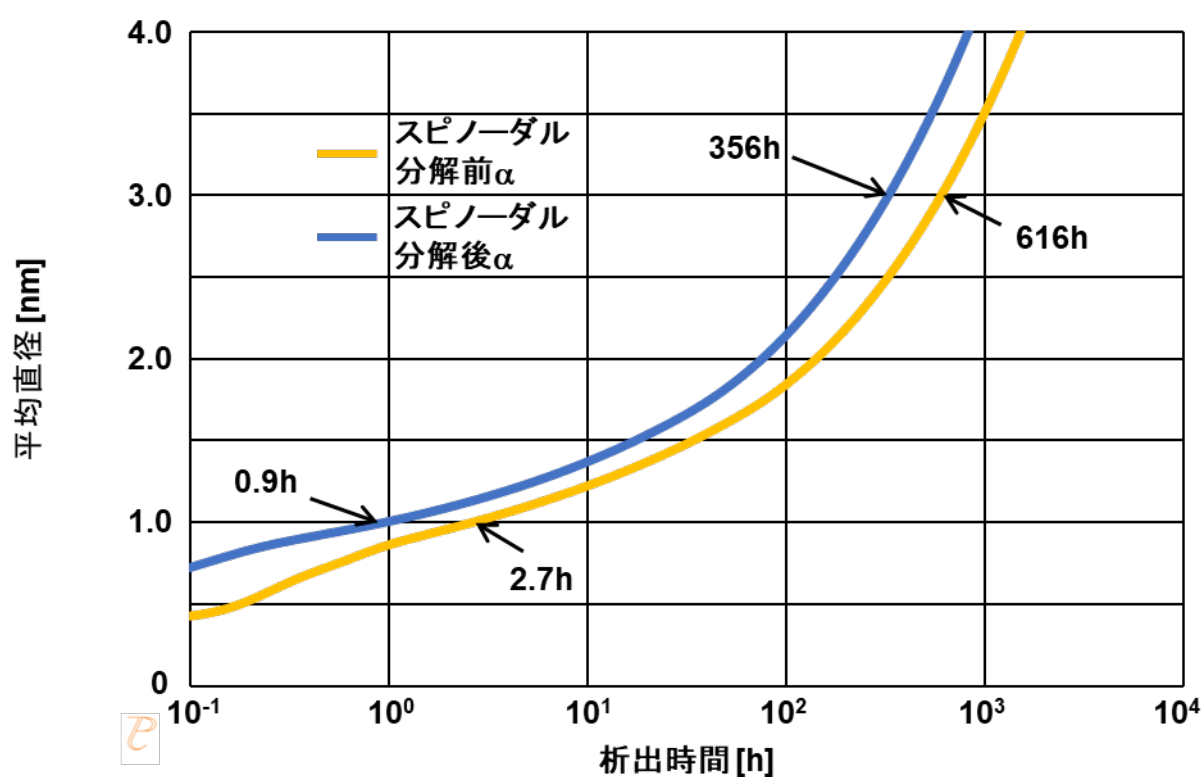


図 3.2-14 本研究で用いた SUS316NG 母相の 400 °Cにおけるスピノーダル分解前の $\alpha$ 相、スピノーダル分解後の $\alpha$ 相および $\alpha'$ 相の組成に対する G 相析出挙動の計算結果



組成at%		Fe	Cr	Mn	Mo	Ni	Si	C
スピノーダル 分解前 $\alpha$	SSOL9	69.1	24.9	2.3	1.4	2.1	0.2	$1.1 \times 10^{-7}$
	本研究	68.8	22.7	0.5	1.3	5.8	1.1	$1.4 \times 10^{-8}$
スピノーダル 分解後 $\alpha$	SSOL9	91.0	3.9	0.7	1.3	2.8	0.3	$1.4 \times 10^{-7}$
	本研究	85.4	4.6	0.02	1.3	7.3	1.4	$1.8 \times 10^{-8}$
スピノーダル 分解後 $\alpha'$	SSOL9	1.2	89.8	7.4	1.6	$9.8 \times 10^{-4}$	$4.1 \times 10^{-4}$	$6.2 \times 10^{-9}$
	本研究	2.0	94.4	2.2	1.3	$4.8 \times 10^{-5}$	0.1	$2.2 \times 10^{-10}$

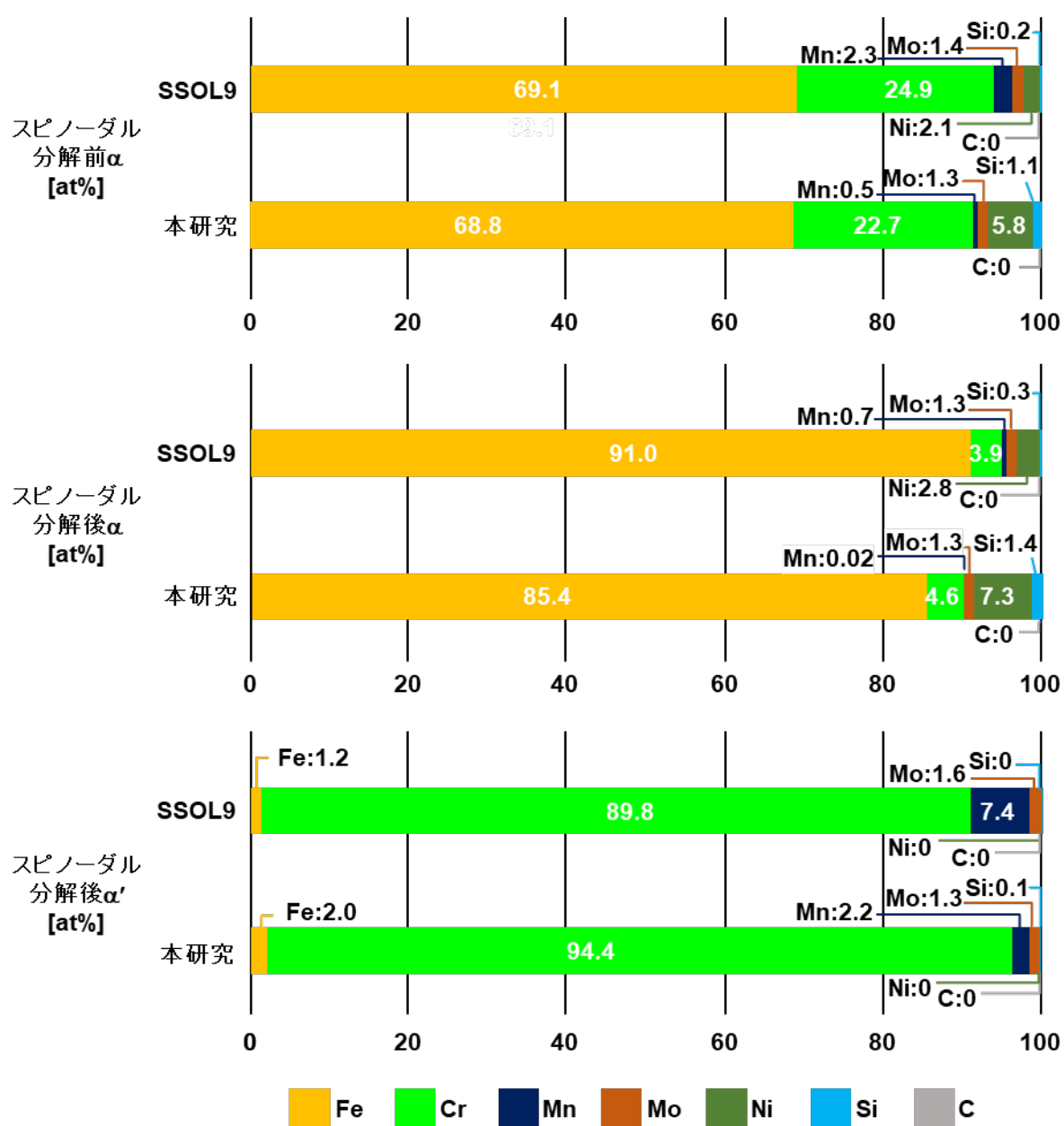


図 3.2-15 本研究で用いた SUS316L 溶接金属の 300 °C におけるスピノーダル分解前の $\alpha$ 相、スピノーダル分解後の $\alpha$ 相および $\alpha'$ 相の組成の計算結果

300℃	析出時間 [h]	
平均粒径	1nm	3nm
スピノーダル分解前 $\alpha$	1886	406640
スピノーダル分解後 $\alpha$	285	58259
スピノーダル分解後 $\alpha'$	137年で1nm未満	

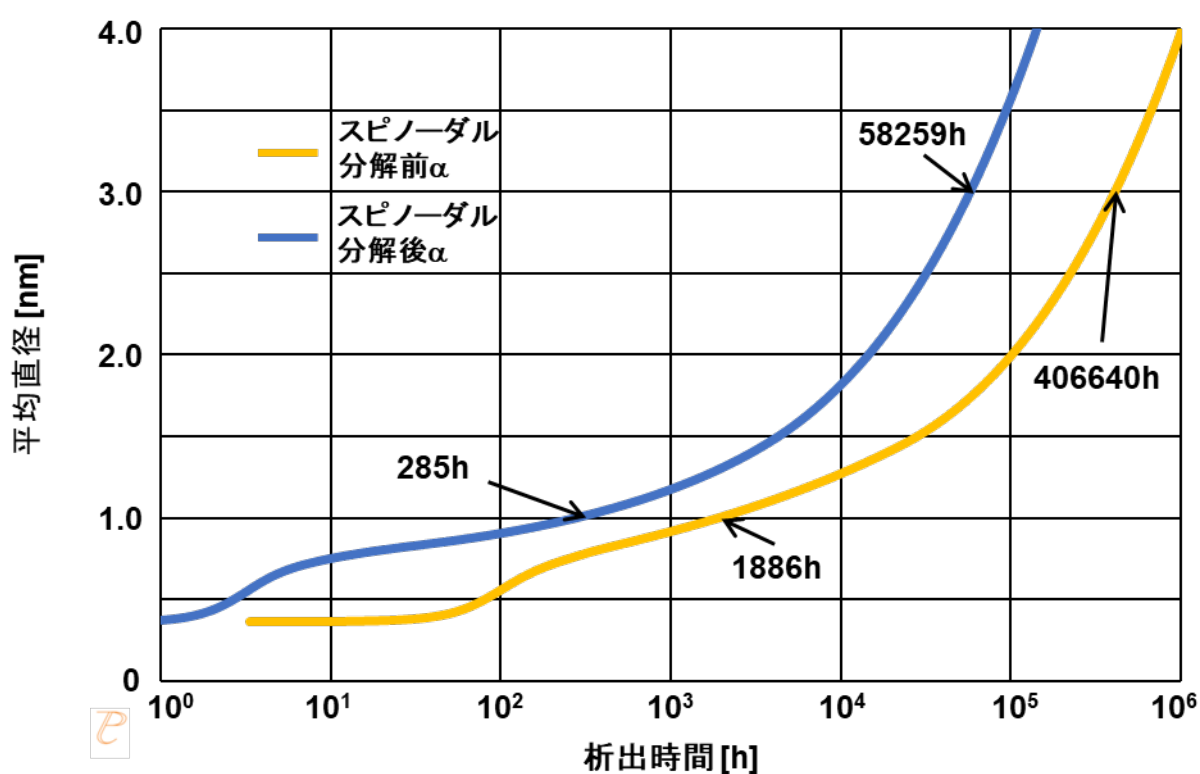


図 3.2-16 本研究で用いた SUS316L 溶接金属の 300 ℃におけるスピノーダル分解前の $\alpha$ 相、スピノーダル分解後の $\alpha$ 相および $\alpha'$ 相の組成に対する G 相析出挙動の計算結果

組成at%		Fe	Cr	Mn	Mo	Ni	Si	C
スピノーダル 分解前 $\alpha$	SSOL9	68.7	25.0	0.8	1.3	3.4	0.8	$2.5 \times 10^{-5}$
	本研究	67.8	22.7	0.6	1.3	6.5	1.2	$4.0 \times 10^{-6}$
スピノーダル 分解後 $\alpha$	SSOL9	83.9	9.5	0.1	1.3	4.3	0.9	$3.1 \times 10^{-5}$
	本研究	79.2	10.3	0.1	1.3	7.7	1.3	$4.7 \times 10^{-6}$
スピノーダル 分解後 $\alpha'$	SSOL9	5.8	89.3	3.5	1.3	0.02	0.01	$2.3 \times 10^{-6}$
	本研究	5.7	89.4	3.1	1.4	$3.3 \times 10^{-4}$	0.4	$1.1 \times 10^{-7}$

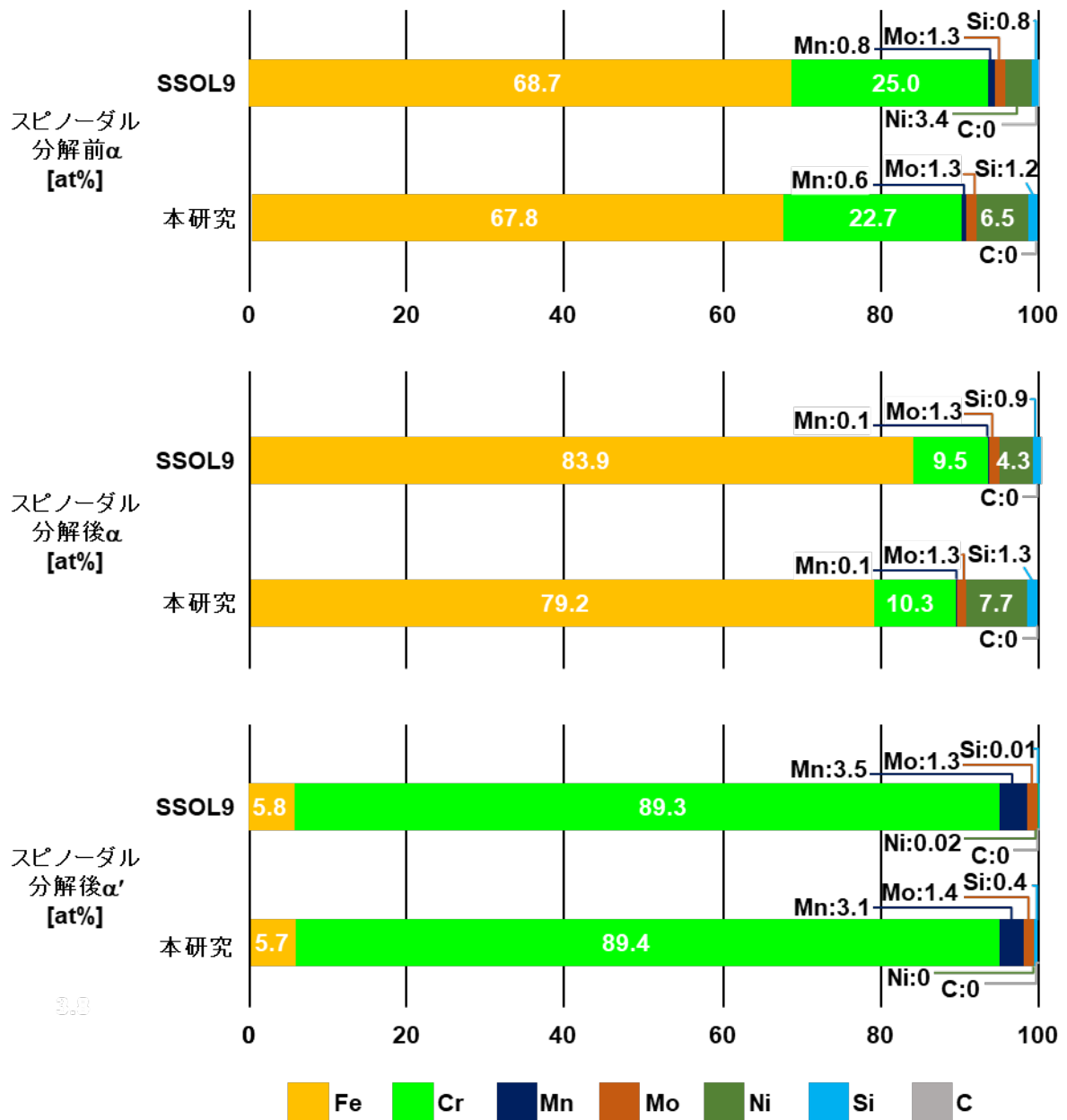


図 3. 2-17 本研究で用いた SUS316L 溶接金属の 400 °C におけるスピノーダル分解前の $\alpha$ 相、スピノーダル分解後の $\alpha$ 相および $\alpha'$ 相の組成の計算結果

400℃	析出時間 [h]	
平均粒径	1nm	3nm
スピノーダル分解前 $\alpha$	3.4	550
スピノーダル分解後 $\alpha$	0.8	274
スピノーダル分解後 $\alpha'$	137年で1nm未満	

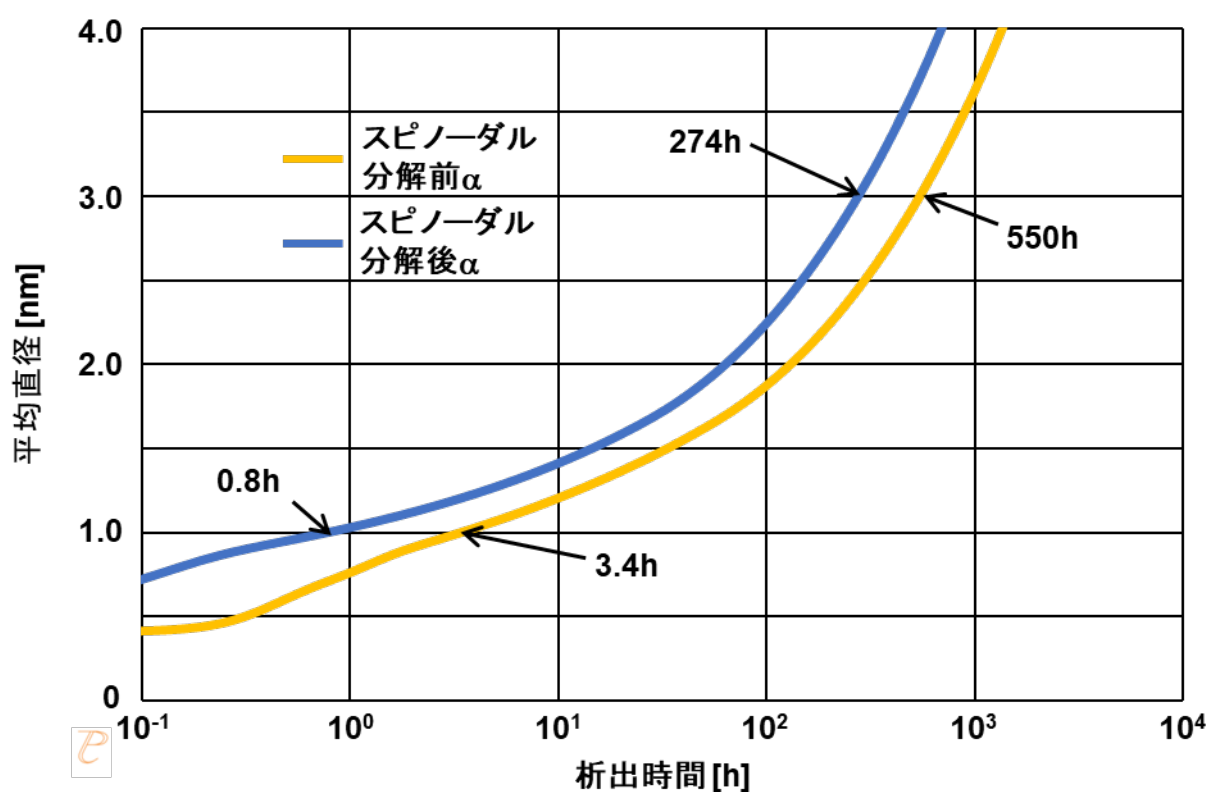
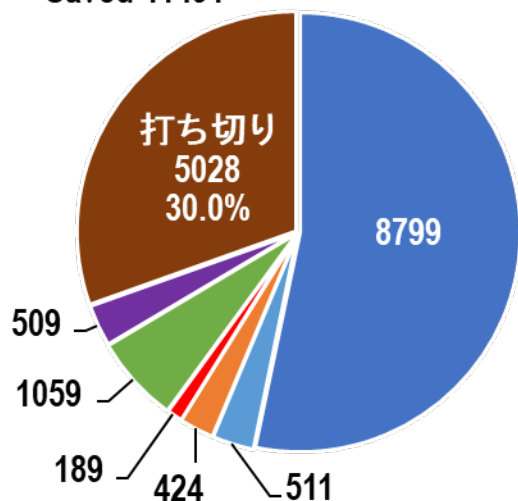
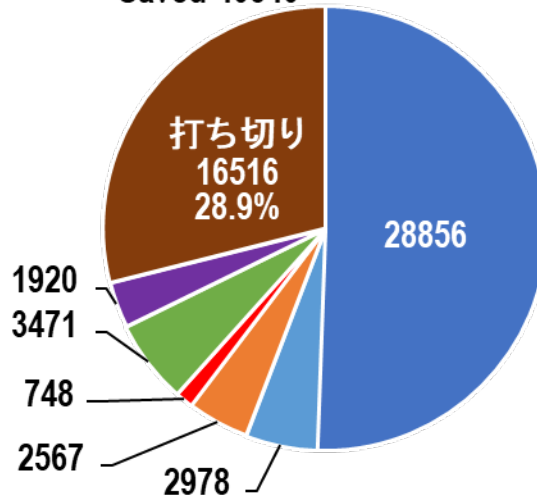


図 3.2-18 本研究で用いた SUS316L 溶接金属の 400 °C におけるスピノーダル分解前の $\alpha$ 相、スピノーダル分解後の $\alpha$ 相および $\alpha'$ 相の組成に対する G 相析出挙動の計算結果

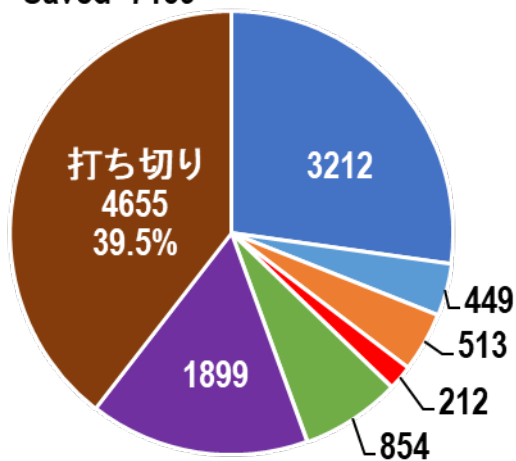
Cr: 0～18wt%  
Trial 16519  
Saved 11491



Cr: 18～25wt%  
Trial 57056  
Saved 40540



Cr: 25～65wt%  
Trial 11794  
Saved 7139



Cr: 65～83wt%  
Trial 54351  
Saved 15541

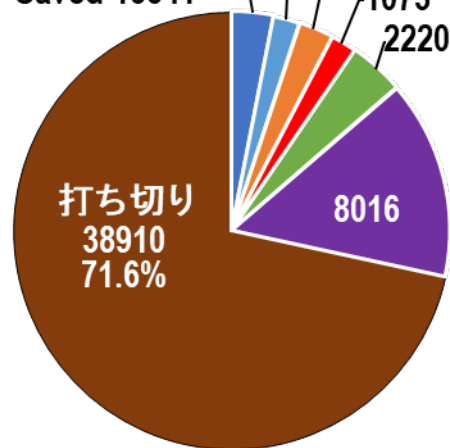
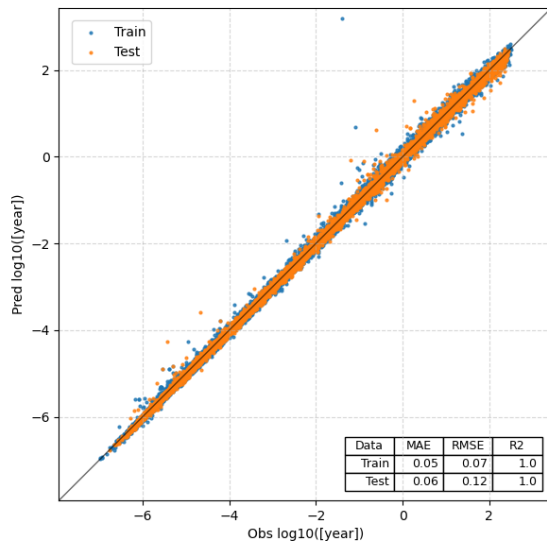
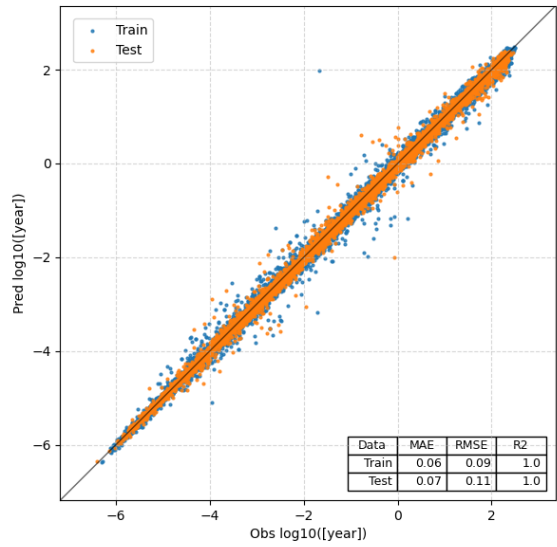


図 3. 2-19 機械学習モデルの構築に向けた G 相析出計算結果の概要

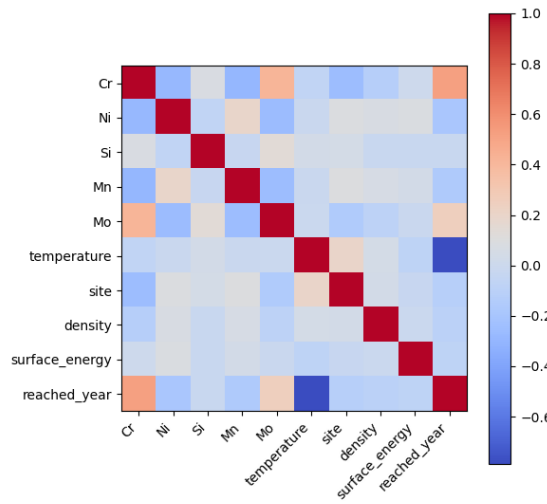


(a) 1nm 予測モデル

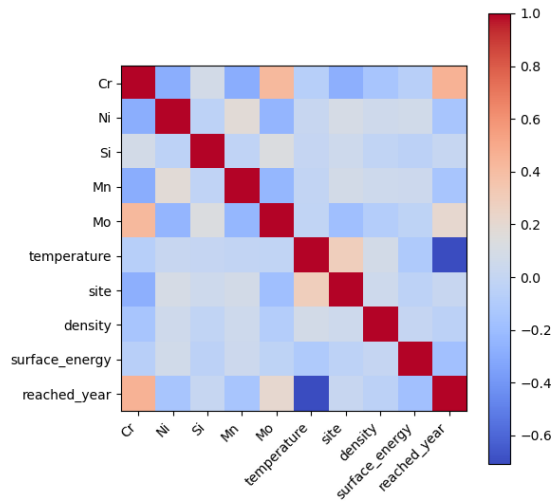


(b) 3nm 予測モデル

図 3.2-20 機械学習予測モデルによる汎化性能の確認  
(青：訓練データ、橙：検証データ(常用対数化処理))



(a) 1nm モデル



(b) 3nm モデル

図 3.2-21 析出データにおける因子の相関関係

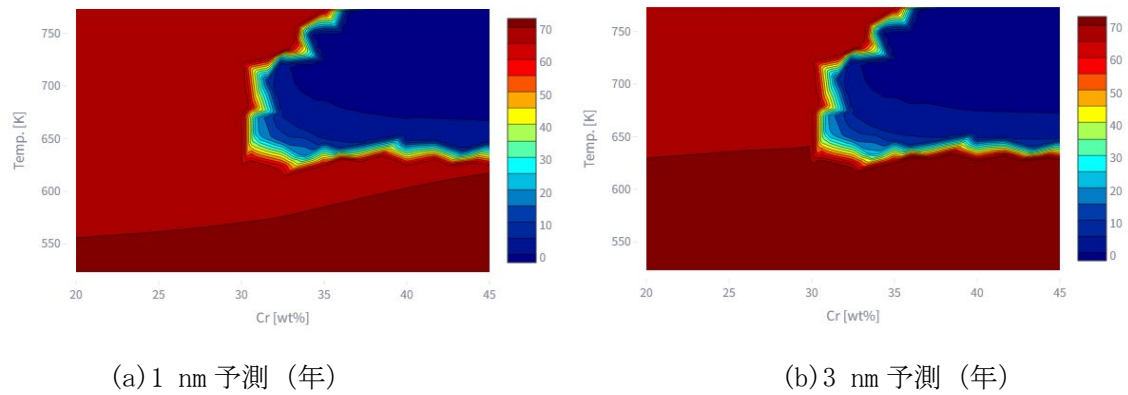


図 3.2-22 スピノードル分解開始時間評価モデルと 1 nm, 3 nm の成長予測モデルとの融合



図 3.2-23 GitHub に開設された G 相パラメータ公開のための web サイト  
(<https://github.com/materialsintegration/Thermodynamic-parameters-for-G-phase>)

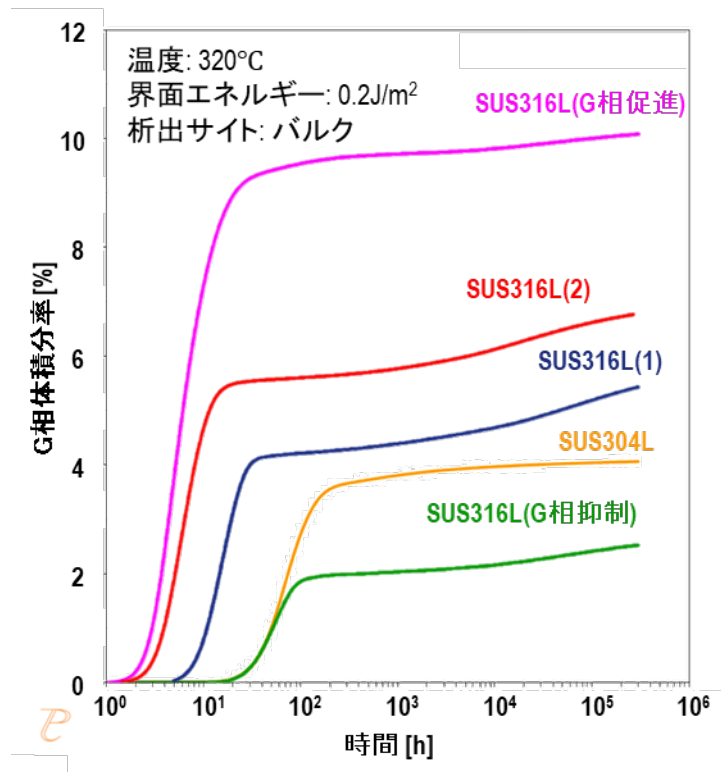


図 3.2-24 表 3.2-4 に示した各合金の $\alpha$ 相組成に対する 300 °Cにおける G 相体積分率計算結果

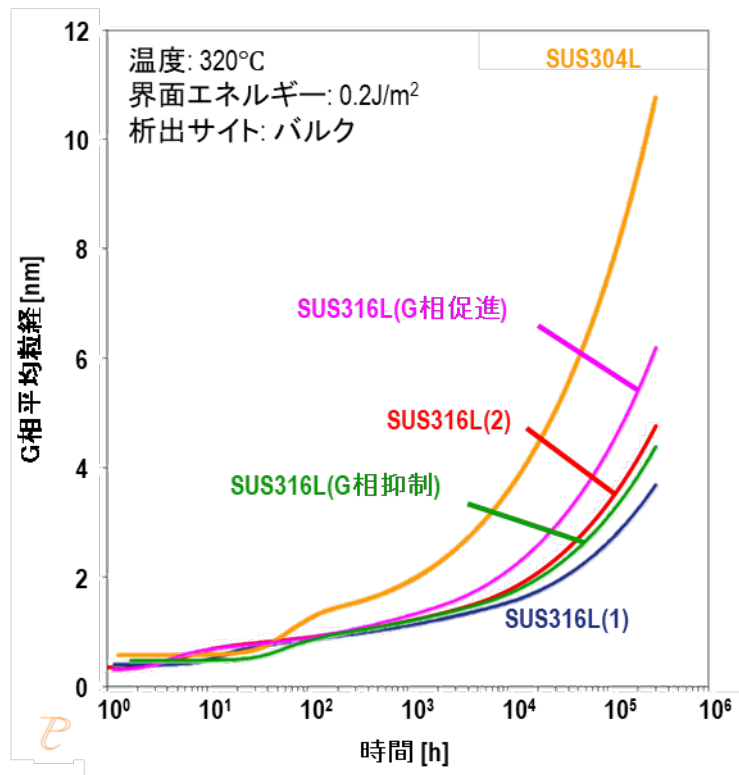
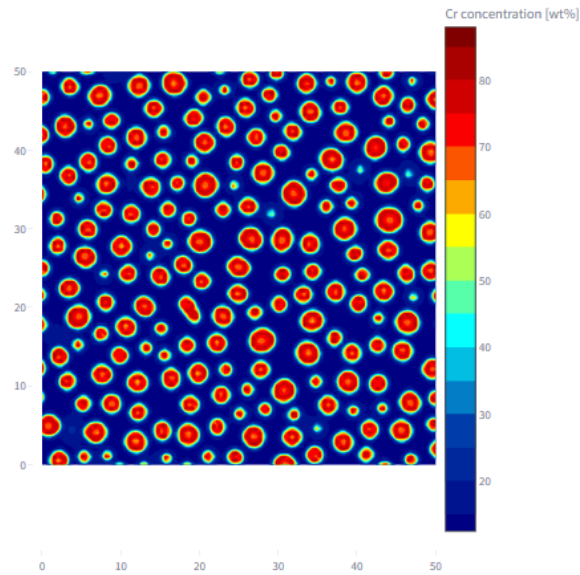


図 3.2-25 表 3.2-4 に示した各合金の $\alpha$ 相組成に対する 300 °Cにおける G 相平均粒径計算結果

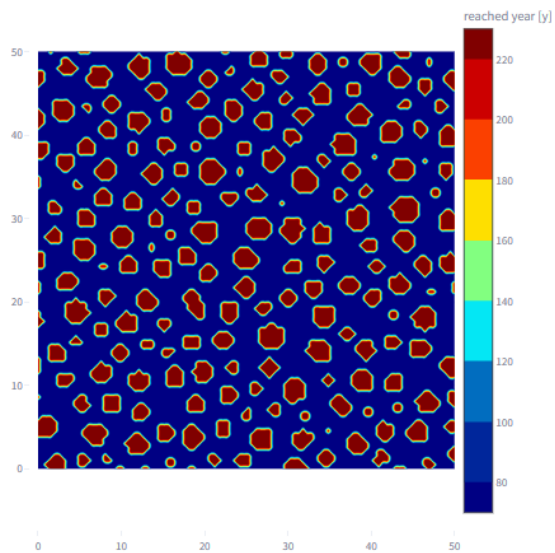


### spinodal

Temp.: 651.844 [K] time: 70.000 [year] Cr.: 31.983 [%]



1 [nm]



3 [nm]

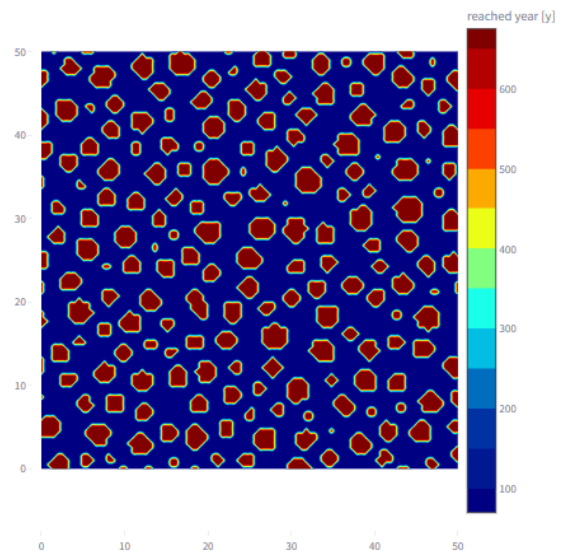


図 3.2-26 31 %Cr においてスピノーダル分解が十分に起きた後の Cr 量等高線（上）、その状態からの G 相の 1 nm 成長時間（左下）と 3 nm 成長時間の等高線（右下）

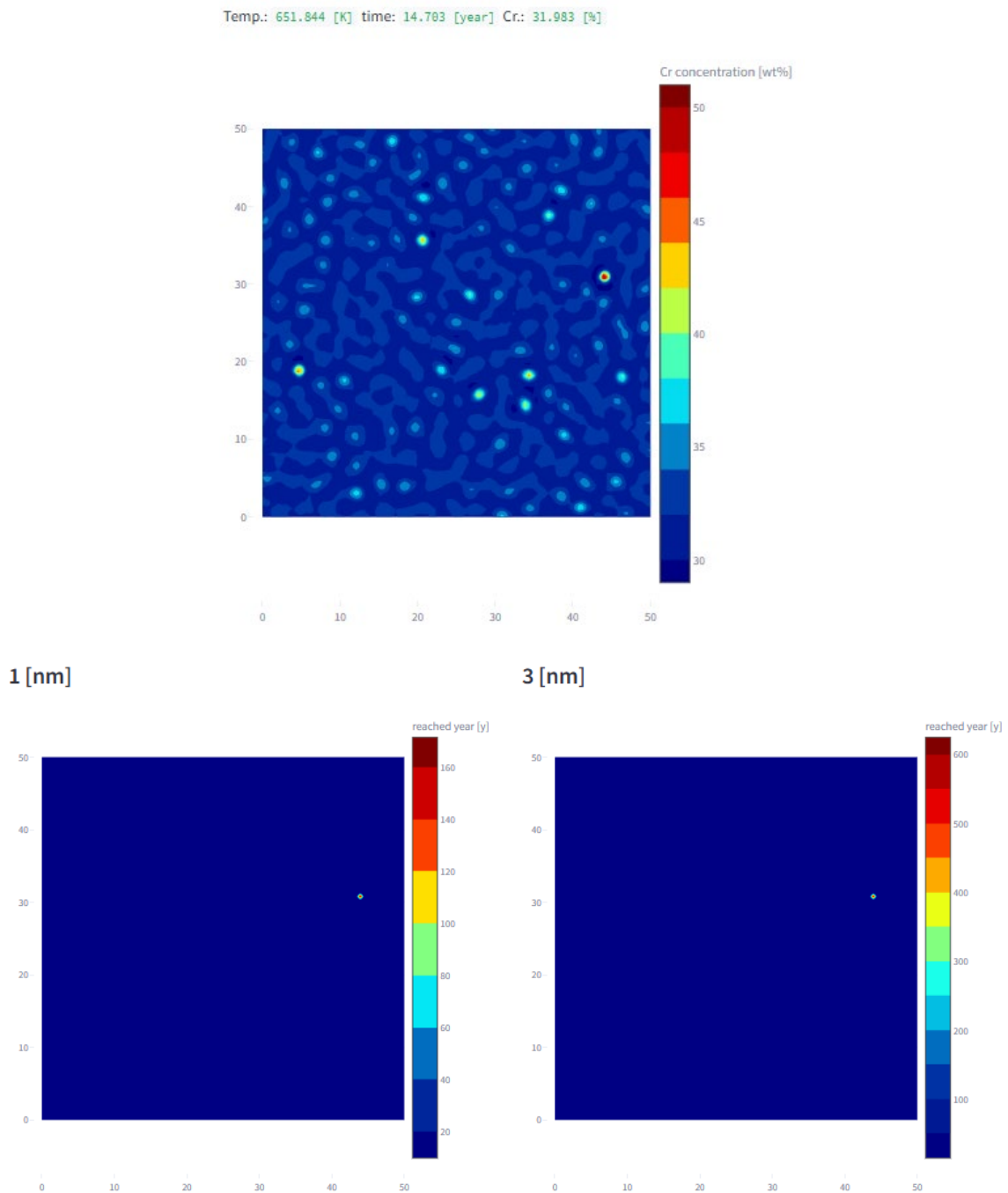
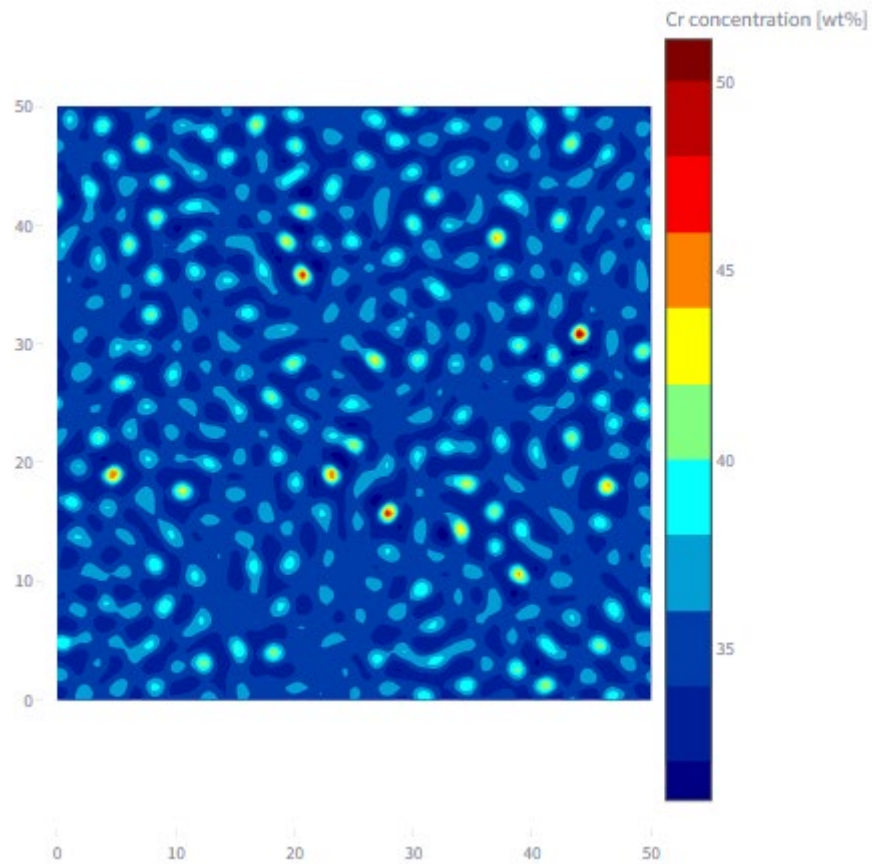
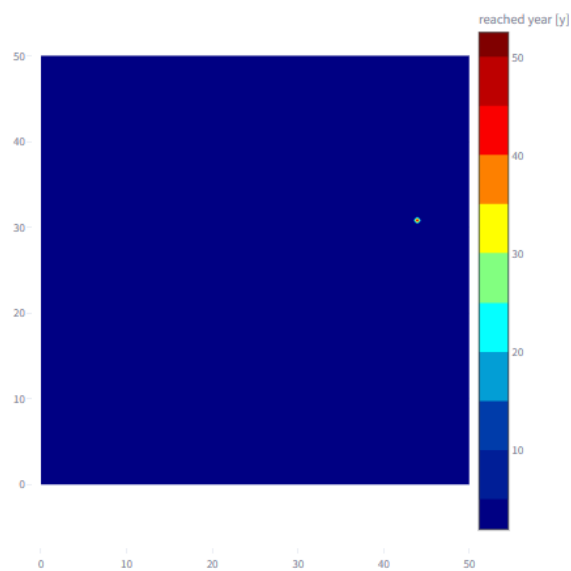


図 3.2-27 Fe-31 %Cr に対するスピノーダル分解開始時間後の Cr 量等高線（上）、そこを起点とした G 相の 1 nm 成長時間（左下）、3 nm 成長時間の等高線（右下）

Temp.: 673.150 [K] time: 1.939 [year] Cr.: 35.000 [%]



1 [nm]



3 [nm]

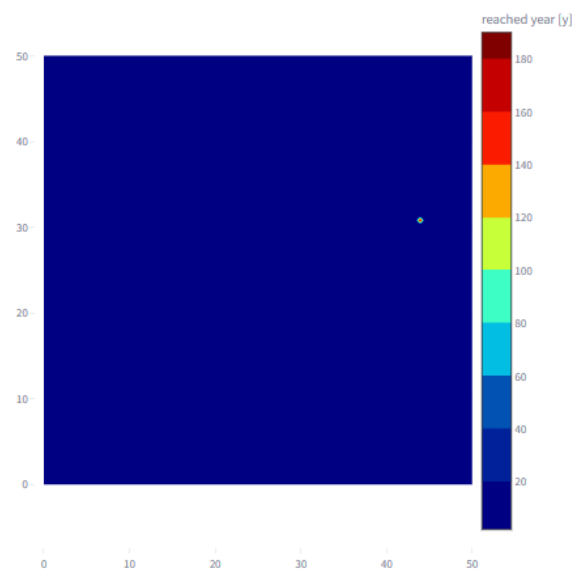


図 3.2-28 Fe-35 %Cr に対するスピノーダル分解開始時間後の Cr 量等高線 (上)、そこを起点とした G 相の 1 nm 成長時間 (左下)、3 nm 成長時間の等高線 (右下)

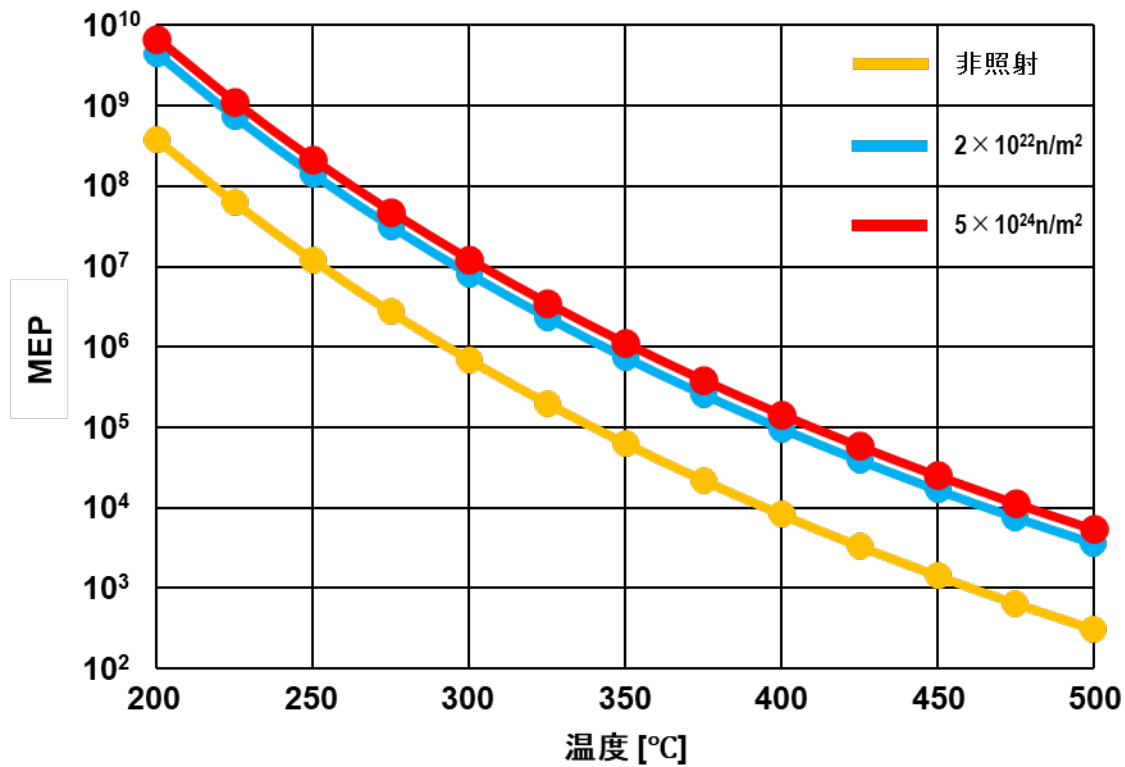


図 3.2-29 各温度に対する中性子照射条件及び非照射条件における MEP の値

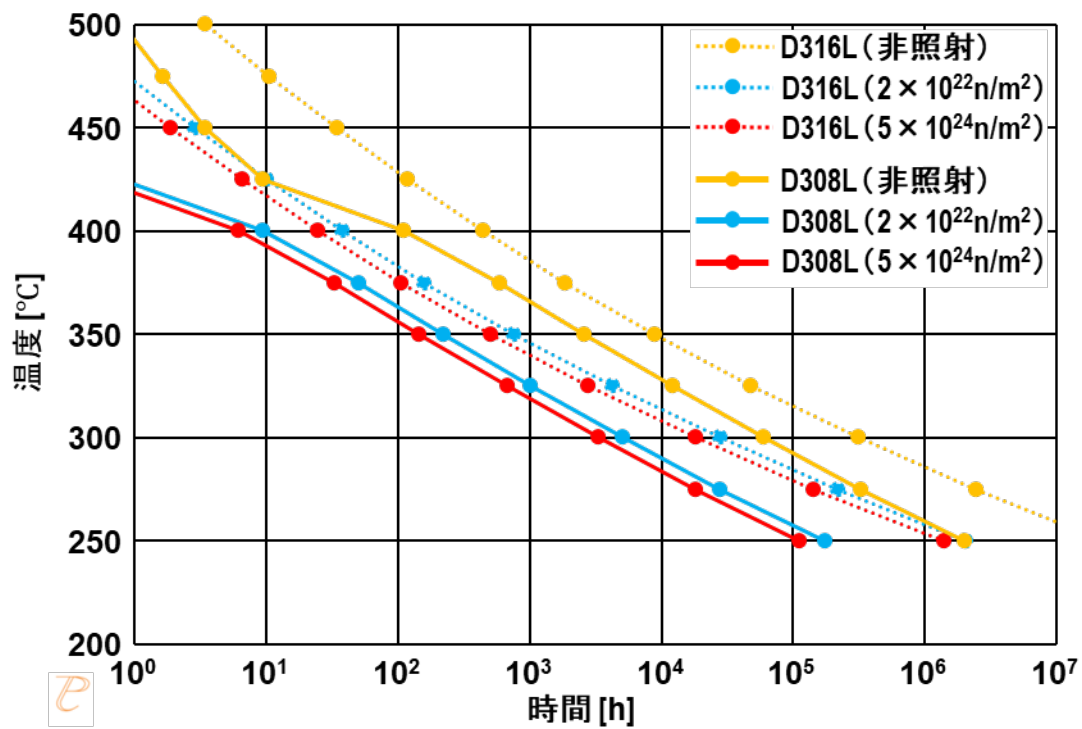


図 3.2-30 表 3.2-8 及び表 3.2-11 に示したステンレス溶接金属 D316L 及び D308L に対する中性子照射下及び非照射下における Time-Temperature-Precipitation (TTP) 線図計算結果

### 3.3 応力腐食割れ進展抵抗性に優れた2相組織の創成

#### 3.3.1 粒界島状フェライト相分布組織の作製【R4-R5】

##### 【令和5年度までの実施内容および成果（概要）】

令和4年度は、316L ステンレス鋼試料を、高周波誘導加熱により融点近傍まで昇温した後に急冷することで、粒界のみが優先的に溶融・凝固して島状 $\delta$ 相が分布した組織を作製した。316L ステンレス鋼試料を対象として、溶接時の熱履歴を再現した熱処理を実施した。金属組織観察ならびにフェライト率測定により、所望の組織を作製できたと判断した。

令和5年度は、令和4年度に引き続き、粒界に島状フェライト相が広く分布した組織を安定して作製できる熱処理条件を絞り込んだ。粒界に島状フェライト相が広く分布した組織を安定して作製できる熱処理条件が、鋼種（化学組成あるいはCr等量/Ni等量比）によってどのように異なるのかを明らかにすることを目的として、新たに対象を316 NG ステンレス鋼とした評価を実施した。当該材料においてはピーク温度1430℃、保持時間は5～7秒が最適な熱処理条件と判断された。

#### 3.3.2 島状フェライト相の成分・硬さのキャラクタリゼーション【R4-R5】

##### 【令和5年度までの実施内容および成果（概要）】

令和4年度は、熱処理条件をパラメータとして、それらが島状フェライト相の分布形態に与える影響を調べることで、最も支配的なパラメータを抽出した。粒界に晶出した島状フェライト相に対して、硬さならびに成分、ミクロ変調組織形成の有無を調べ、併せて、熱時効試験で用いる溶接試験体の溶融境界に晶出したフェライト相との差異を考察した。複数条件下での溶接模擬熱処理を実施し、それらの組織観察結果から、熱処理時のピーク温度が支配的なパラメータと判断した。溶接熱模擬熱処理により粒界に晶出したフェライト相に加えて、溶接試験体における溶接金属と溶融境界近傍に分布するフェライト相の成分・ミクロ変調組織形成の有無、硬さデータを取得するとともにそれらの特徴を考察した。

令和5年度は、3.3.1で作製した試料において、フェライト相以外の機械特性に悪影響を与えると考えられる介在物などの析出が無いこと、フェライトが過度に硬化していないことを確認した。また、得られたフェライトの相硬さ・成分・ミクロ組織に関するデータセットを計算側タスク3.2に提供することで、当該熱処理により母材粒界に分布した島状フェライト相の、広範な温度条件下における熱時効挙動予測に繋げた。加えて令和5年度に引き続き、上記の観察・測定データを拡充した。溶接熱模擬熱処理によって母材粒界の局所溶融・凝固を経て晶出した $\delta$ 相の化学組成を考慮した上で、計算側タスクのG相析出計算条件を設定することで、広範な温度条件下における熱時効挙動予測に繋げた。

#### 3.3.3 島状フェライト相分布組織のSCC進展抵抗性の評価【R5-R6】

##### 【令和5年度までの実施内容および成果（概要）】

令和5年度は、上記3.3.1ならびに3.3.2の結果を踏まえて、SCC進展抵抗性の観点から適切と考えられる試料を選定し、SCC試験片を作製した。令和5年度新たに溶接模擬熱処理の対象とした316NG ステンレス鋼においては、粒界に島状 $\delta$ 相が広く分布した組織がより高いSCC進展抵抗性を有するとの立場から、ピーク温度1430℃、保持時間は5～7秒が最適な熱処理条件と判断

されたため、これを用いて高温水中 SCC 試験に供するための試験片を作製した。

## 【令和 6 年度の実施内容および成果】

### (1) 概要

令和 5 年度に作製した、粒界に島状フェライト相が広く分布した試験片を用いて、高温水中 SCC 試験を実施し、フェライト相の SCC 進展抵抗性を評価した。オートクレーブを用いた高温水中 SCC 進展試験と電位差法によるき裂進展モニタリングを併用することによって、SCC 進展速度データを取得する手法を中心に検討した。粒界に島状フェライト相が広く分布した試験片の SCC 進展速度と母材のみの進展速度を比較することで、フェライト相の進展抵抗効果を定量的に求めた。破面解析または、き裂先端の高解像度観察により、フェライト相のき裂進展抵抗への寄与をメカニズムの観点から検討した。

### (2) 研究内容ならびに成果

316NG ステンレス鋼試料を対象として、高周波誘導加熱により溶接熱履歴を模擬した熱処理を施した。熱処理には、熱間加工再現装置（富士電波工機製、サーメックマスターZ）を用いた。熱処理試験片は 15 角・長さ 100 mm の角柱を用いた。熱処理後は試験片を長さ方向に切断して、熱電対取り付け位置を中心とした組織観察を実施した。熱処理条件（設定値）の一例を図 3.3-1 に示す。予備試験によって、設定値と測定値は精度良く一致することを確認している。試験チャンバー内部ならびに加熱中の様子を図 3.3-2 に示す。令和 5 年度までの検討結果に基づいて、粒界に島状  $\delta$  相が広く分布した組織を得るための熱処理条件を絞り込んだ。本試験において採用した熱処理条件は、ピーク温度 1,430 °C・保持時間 3 秒ならびに 5 秒の 2 条件を採用した。これらについてそれぞれ 2 個の熱処理試験片と、熱処理なし試験片 2 個の計 6 個を準備した。

上記の試験片と 316L ステンレス鋼板材を電子ビーム溶接により接合することで、粒界に島状  $\delta$  相が広く分布した組織がき裂進展経路となるよう CT 試験片を採取するための試験体を作製した。試験体における CT 試験片採取位置のイメージを図 3.3-3 に示す。作製した CT 試験片に対し、約 1 mm を目標に大気中疲労予き裂を導入した（図 3.3-4）。次に、高温水中 SCC 進展試験セットアップの概略を図 3.3-5 に示す。オートクレーブ内は 2 本の荷重軸があり、それぞれに CT 試験片を直接に 3 個設置した。試験中は、イオン交換樹脂に通水することで電気伝導度を低く保った高純度水を循環させた。き裂進展は、直流電位差(DCPD, Direct Current Potential Drop) 法を用いてモニタリングした。試験温度 288 °C、試験圧力 10 MPa に達した後、環境中予き裂を導入した。その際の荷重条件を図 3.3-6 に示す。第 1 段階として三角波、その後台形波に移行して、き裂の進展経路を粒界に遷移させることを試みた。ある程度のき裂進展が認められたところで、定荷重に切り替えた。その際のき裂先端の応力拡大係数は、25 MPa $\sqrt{\text{m}}$  を目標とした。

高温水中 SCC き裂進展試験における DCPD 信号から求めたき裂進展の経時変化を図 3.3-7 に示す。定荷重に切り替えてから約 250 時間経過後、全ての試験片でき裂進展が極めて限定的であったことから、き裂進展を促進する目的で目標電気伝導度を 0.2  $\mu\text{S}/\text{cm}$  として硫酸ナトリウムを添加した。その後、4 つの試験片ではき裂進展速度の急速な増大が認められたが、一定時間経過後に再びき裂進展速度が顕著に低下した。一方、残り 2 つの試験片については水質変更のき裂進展への影響は認められず、試験終了まで一貫して極めて低いき裂進展速度を示した。ここで、この

2つの試験片に着目すると、一方は熱処理なし（ $\delta$ 相分布なし）で、もう一方は熱処理により $\delta$ 相が晶出・分布した試験片である。すなわち、 $\delta$ 相分布の有無によらず、極めて低いき裂進展速度を示したことから、 $\delta$ 相分布がき裂進展速度に影響しなかった可能性がある。試験後は、試験片を板厚方向に半分に切断し、一方は大気中疲労き裂進展により破断させ破面観察に用いた。もう1方については、さらに4等分に切断し、断面方向から観察することでき裂進展挙動と $\delta$ 相分布の関係を調査した。試験後の試験片6個について、破面観察結果を図3.3-8に示す。き裂進展方向は上から下である。大気中予き裂／環境中予き裂と、粒内SCC／粒界SCCの境界を赤線で示している。また、写真右側が試験片中央、左側が試験片端面に相当する。全ての試験片に共通して、粒界SCC破面は試験片中央部で顕著になる傾向が認められた。破面観察結果から実際のき裂進展量を求めて、DCPD信号から評価した暫定のき裂進展量を補正した。その結果を表3.3-1に示す。実際のき裂進展量は、DCPD信号から求めた値と比較して約1～1.6倍程度であった。破面観察ならびにDCPD信号から求めたき裂進展速度を図3.3-9に示す。以上の結果から、求めたき裂進展速度と $\delta$ 相分布には有意な関係は認められなかったことから、期待された $\delta$ 相のSCCき裂進展遅延効果は認められなかった。き裂進展経路に占める $\delta$ 相分布の程度について図3.3-10に示す。 $\delta$ 相の分布は極めて限定的であり、今回定荷重下で進展したき裂進展量から考えると、SCCき裂と $\delta$ 相の遭遇確率は大きくなかったことが分かる。

次に、試験片断面観察結果を図3.3-11～16に示す。いずれの試験片においても、試験片中央側でよりき裂進展量が顕著であることが分かる。個々で特筆すべきは、き裂進展方向に垂直に顕著な2次き裂あるいは粒界腐食が認められた試験片が存在することであり、当該試験片はいずれも硫酸ナトリウムを環境中に添加した後に急激なDCPD信号の上昇が認められたものであった。すなわち、急激なき裂進展速度の増大と考えられた特徴は、隙間水質の悪化に伴う粒界腐食によるものと考えられた。き裂進展経路と $\delta$ 相分布の関係をより詳細に調査する目的で、2次き裂にも着目した観察を実施したところ、き裂先端が $\delta$ 相に位置するものが複数認められた（図3.3-17,18）。したがって、 $\delta$ 相をさらに広範に分布させることができれば、き裂進展遅延への効果が期待できるものと判断した[3.3-1～3]。

### (3) まとめ

粒界に島状フェライト相が広く分布した試験片のSCC進展速度と母材のみの進展速度を比較することで、フェライト相の進展抵抗効果を定量的に求めた。破面解析または、き裂先端の高解像度観察により、フェライト相のき裂進展抵抗への寄与をメカニズムの観点から検討した。き裂進展速度に及ぼす $\delta$ 相分布の影響については認められなかったものの、き裂先端が $\delta$ 相に位置している例が複数認められたことから、 $\delta$ 相は一定のき裂進展遅延効果を有する可能性が示された。

### 参考文献

- 3.3-1 Y. Xu, H. Jing, L. Xu, Y. Han, and L. Zhao, Journal of Materials Research and Technology, vol. 8, no. 6, 2019, pp. 6420-6426.
- 3.3-2 J. Wang, H. Su, K. Chen, D. Du, L. Zhang, and Z. Shen, Corros. Sci, vol. 158, 2019, pp. 108079.
- 3.3-3 H. Abe and Y. Watanabe, Journal of Nuclear Materials 424, 2012, pp. 57-61.



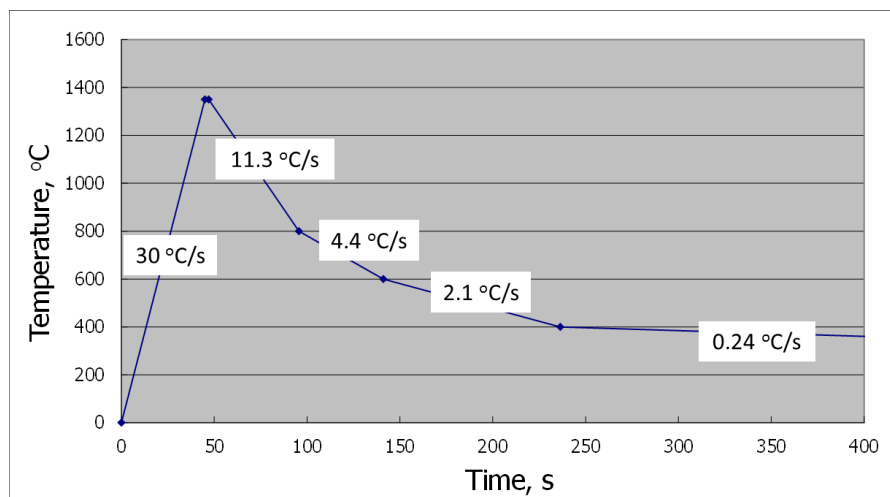


図 3.3-1 試験チャンバー内部ならびに加熱中の様子

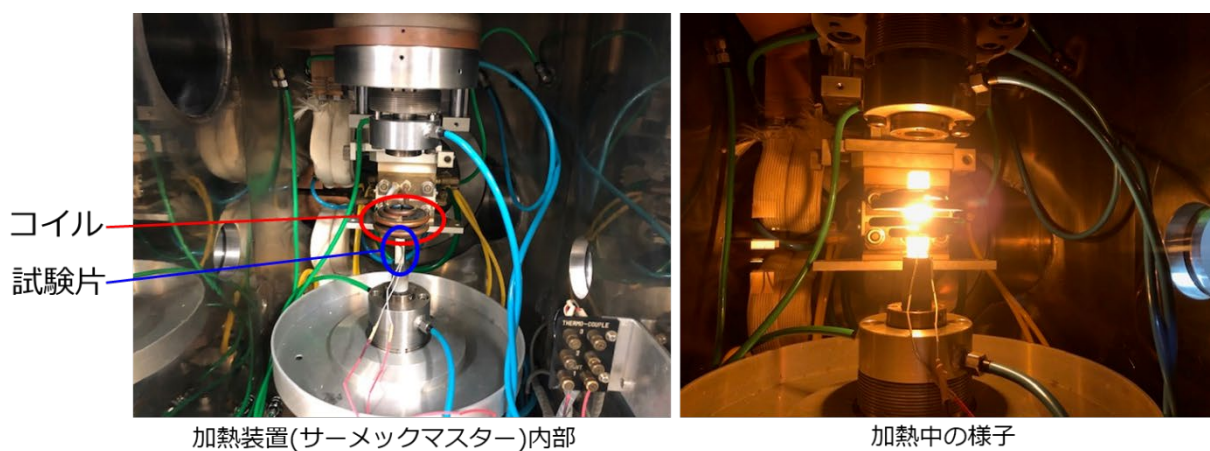


図 3.3-2 試験チャンバー内部ならびに加熱中の様子

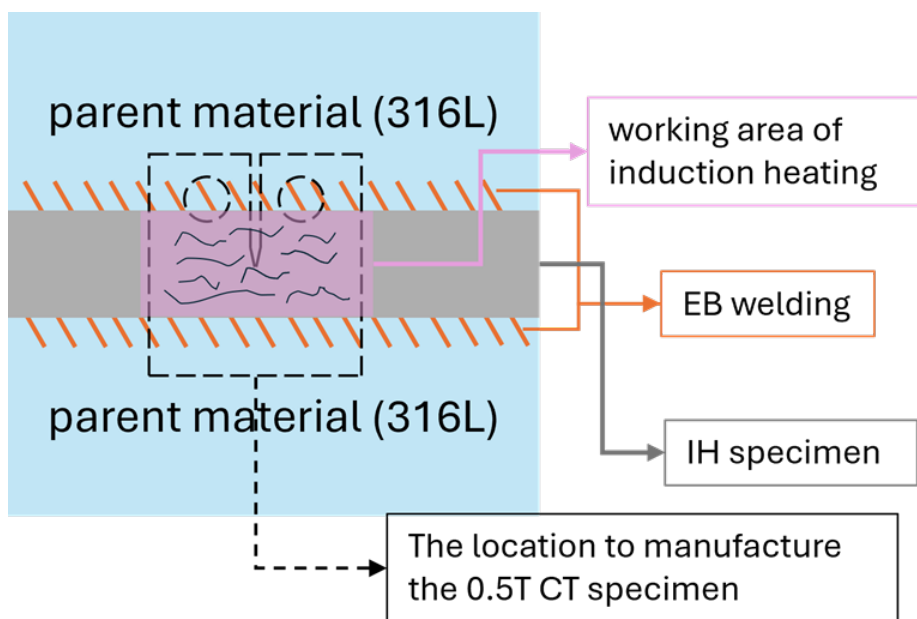


図 3.3-3 電子ビーム溶接試験体からの CT 試験片採取位置のイメージ



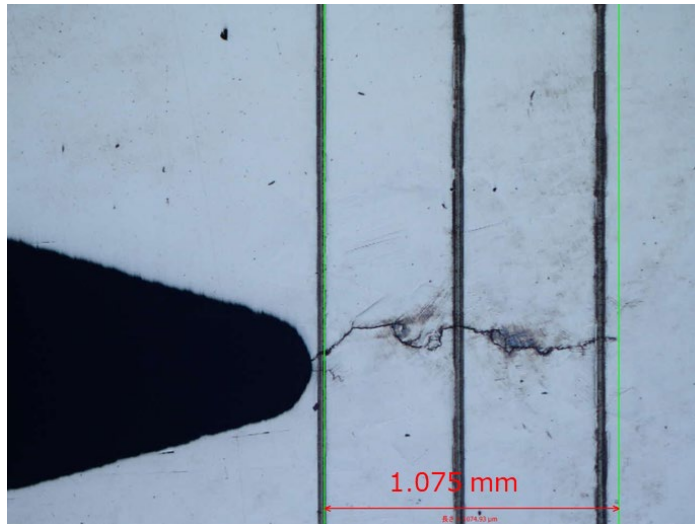


図 3.3-4 大気中予き裂導入例

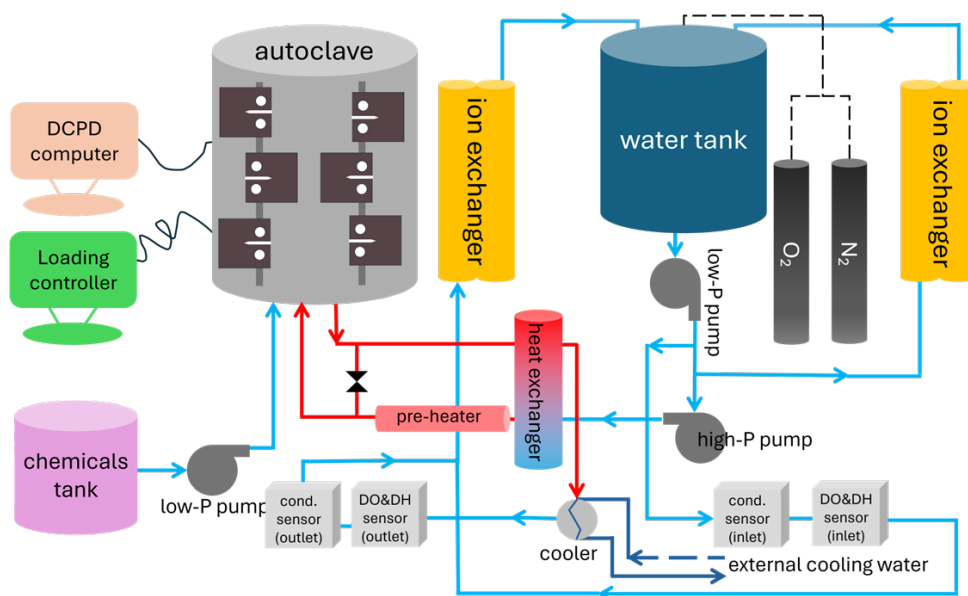


図 3.3-5 高温水中 SCC 進展速度評価試験ループの概略図

Phase	Max. Loading, $P_{\max}$ (kN)	Loading Time (sec)	Holding Time (sec)	Min. Loading, $P_{\min}$ (kN)	Unloading Time (sec)	Target Length (mm)
1 triangular	5.5	90	0	2.75	10	0.15
2 trapezoidal	5.5	90	100	2.75	10	0.15
3 trapezoidal	5.5	90	900	2.75	10	0.20
4 constant load	5.5	90	x	x	x	x

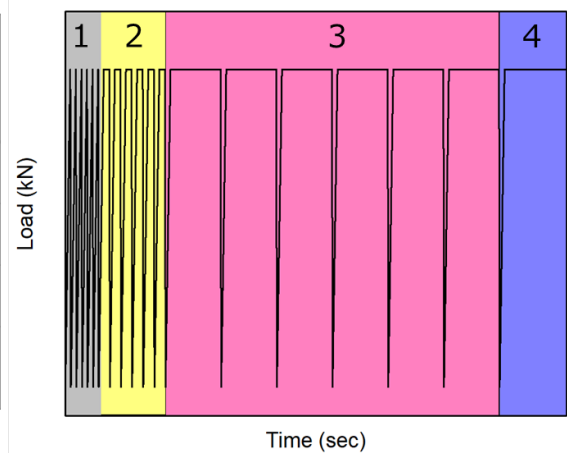


図 3.3-6 環境中予き裂導入条件

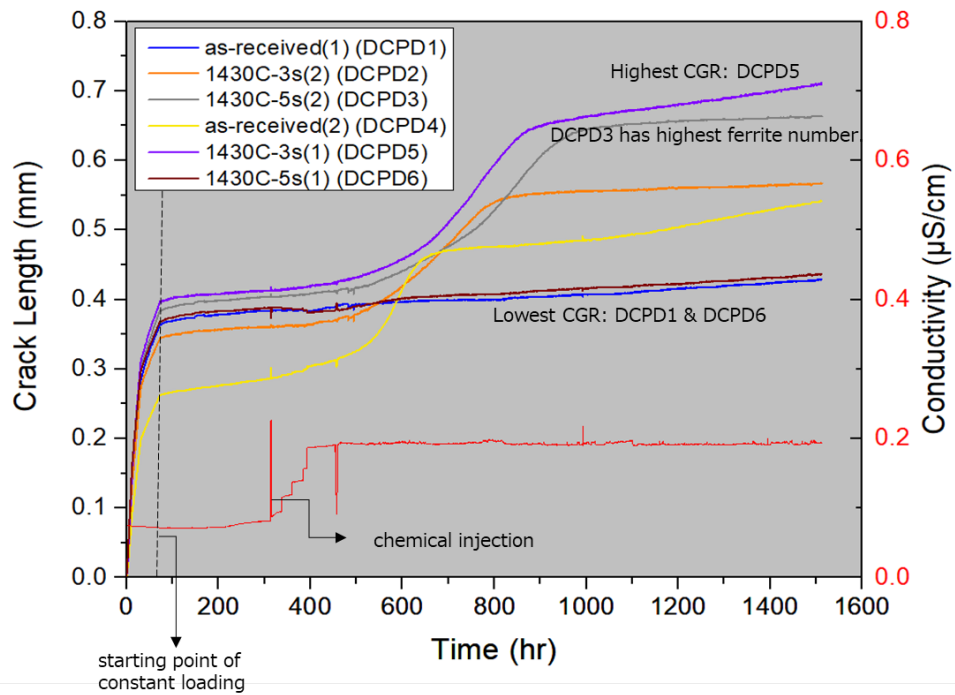


図 3.3-7 高温水中 SCC き裂進展試験中の DCPD 信号から求めたき裂進展量の経時変化

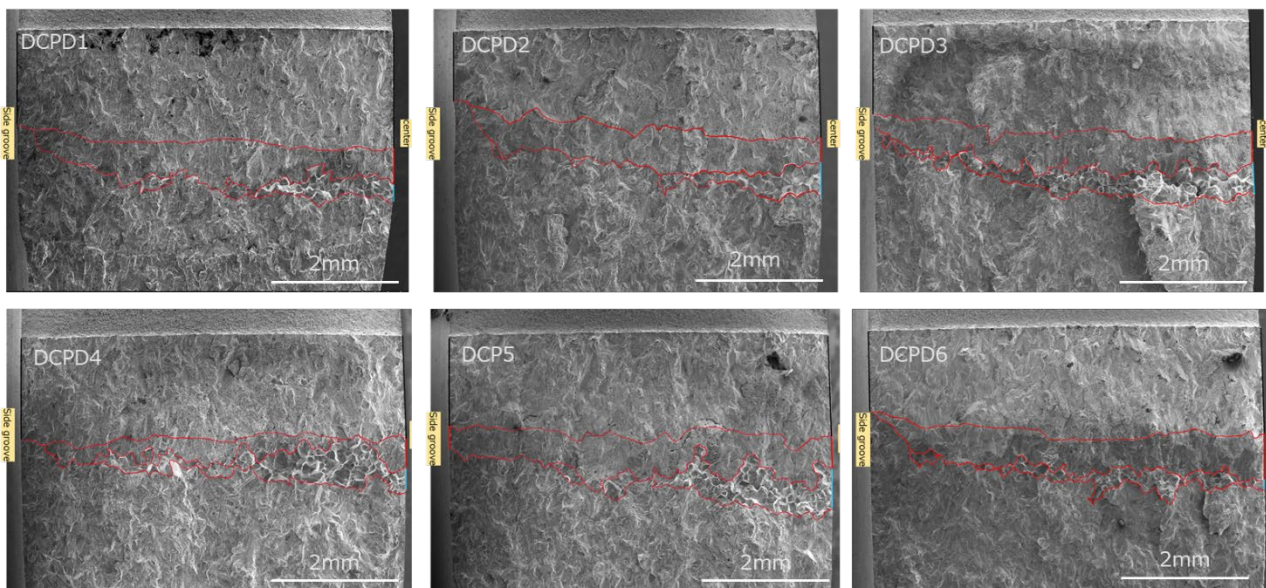


図 3.3-8 各試験片の破面 SEM 観察結果

表 3. 3-1 DCPD ならびに破面観察から求めたき裂進展量

	A. pre-crack length (SEM, mm)	B. total length after constant loading (SEM, mm) (A+C2)	C1. crack growth in env. (DCPD, mm)	C2. crack growth in env. (SEM, mm)	D1. crack growth in env. during constant loading stage (DCPD, mm)	D2. crack growth in env. during constant loading stage (SEM, mm)	E. Ratio(D2/D1)
DCPD1	1.805	2.503	0.430	0.698	0.065	0.105	1.615
DCPD2	1.548	2.530	0.568	0.682	0.223	0.268	1.202
DCPD3	1.714	2.580	0.664	0.866	0.280	0.365	1.303
DCPD4	1.593	2.151	0.539	0.558	0.279	0.289	1.035
DCPD5	1.561	2.394	0.713	0.833	0.313	0.366	1.169
DCPD6	1.589	2.275	0.439	0.686	0.068	0.106	1.559

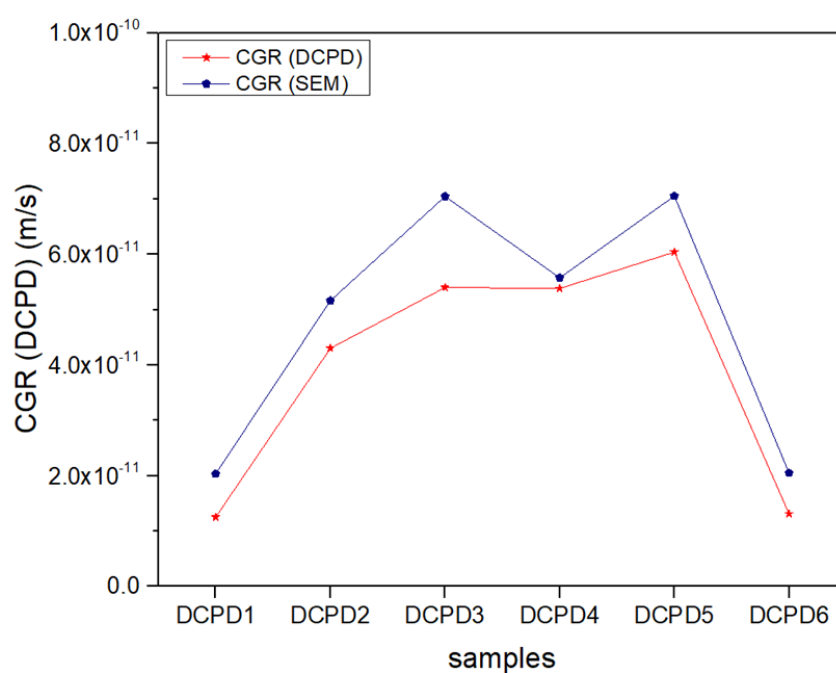


図 3. 3-9 破面観察ならびに DCPD 信号から求めたき裂進展速度

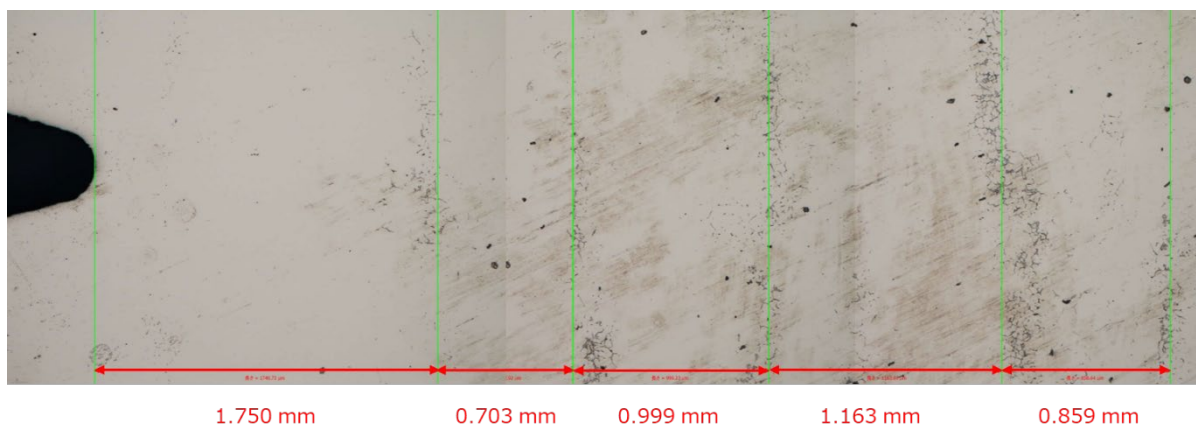


図 3.3-10 試験片 DCPD5:1430 °C-3s-(1) のき裂進展領域における  $\delta$  相分布

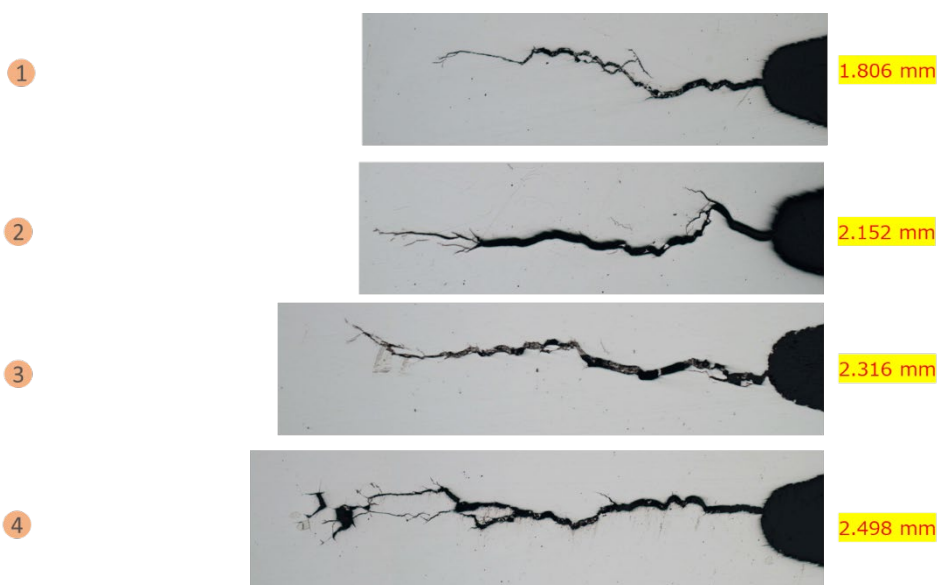


図 3.3-11 試験片 DCPD1: As-received (no IH) のき裂断面 SEM 観察結果

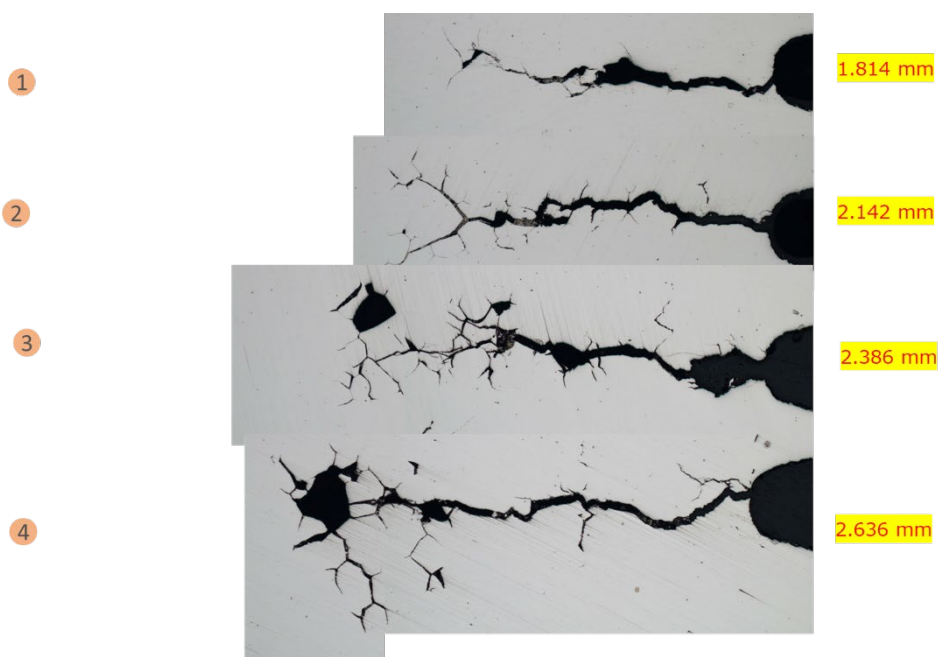


図 3.3-12 試験片 DCPD2: 1430 °C-3s-(2) のき裂断面 SEM 観察結果

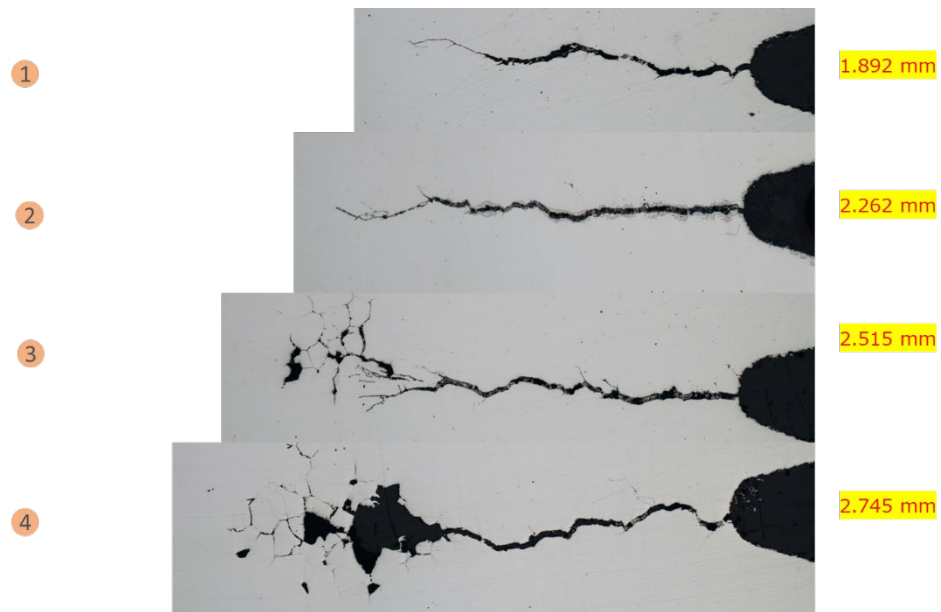


図 3.3-13 試験片 DCPD3: 1430 °C-5s-(2) のき裂断面 SEM 観察結果

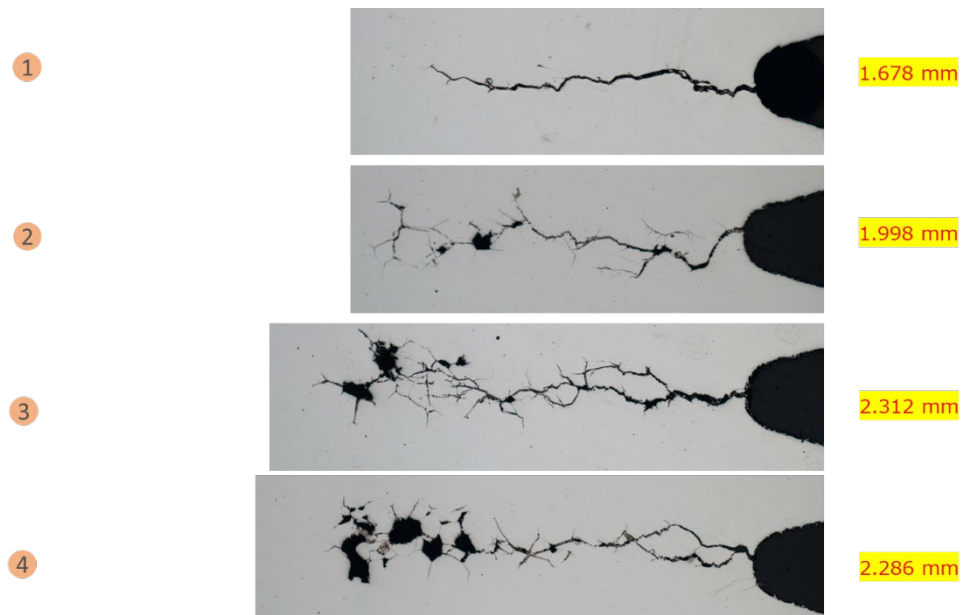


図 3.3-14 試験片 DCPD4: As-received (no IH) のき裂断面 SEM 観察結果



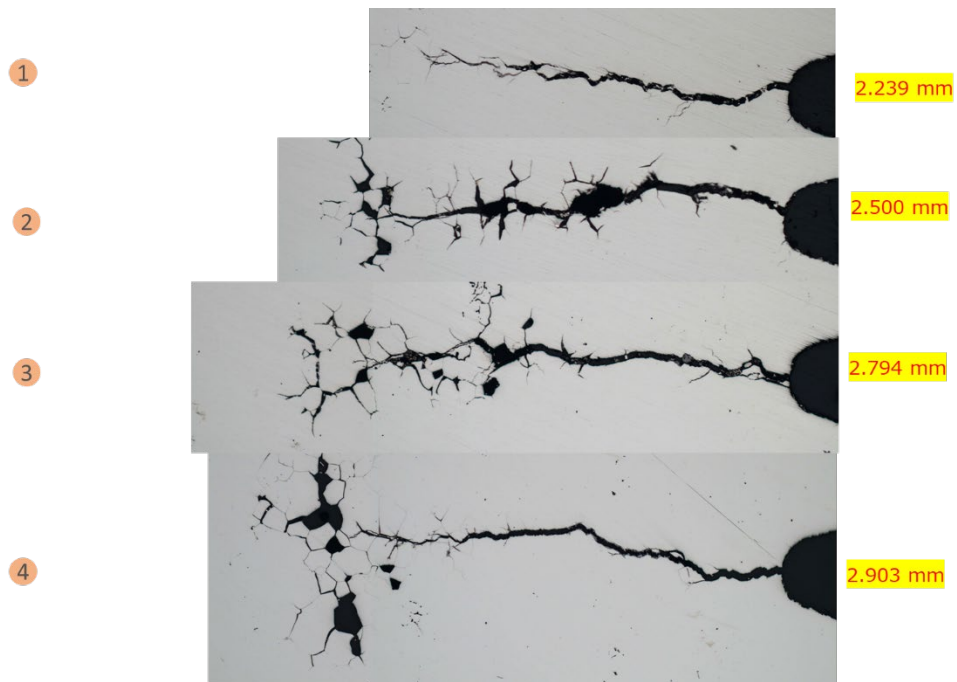


図 3.3-15 試験片 DCPD5: 1430 °C-3s-(1) のき裂断面 SEM 観察結果

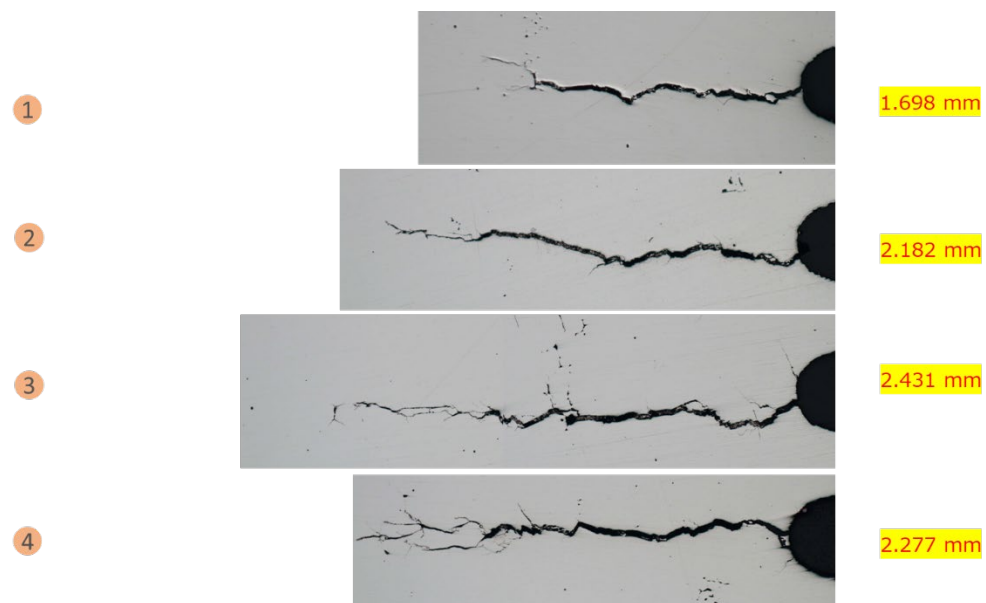


図 3.3-16 試験片 DCPD6: 1430 °C-5s-(1) のき裂断面 SEM 観察結果

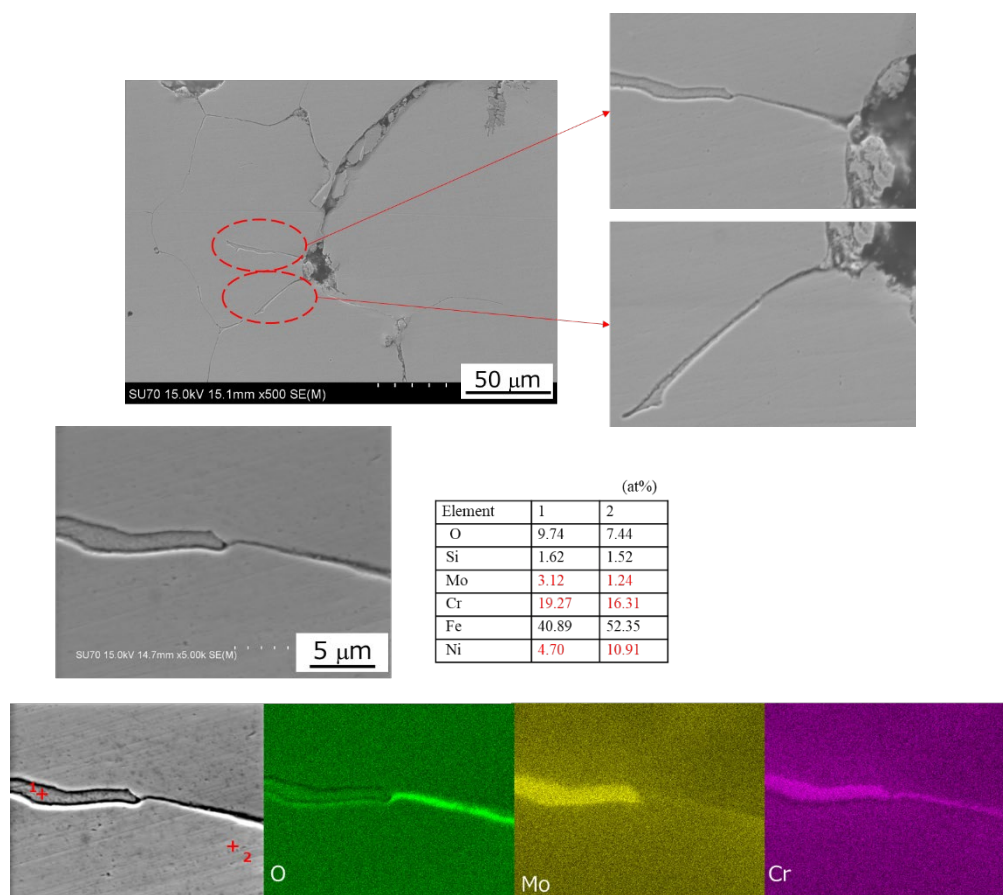


図 3.3-17 試験片 DCPD3: 1430 °C-5s-(2) のき裂断面 SEM (+EDX) 観察結果

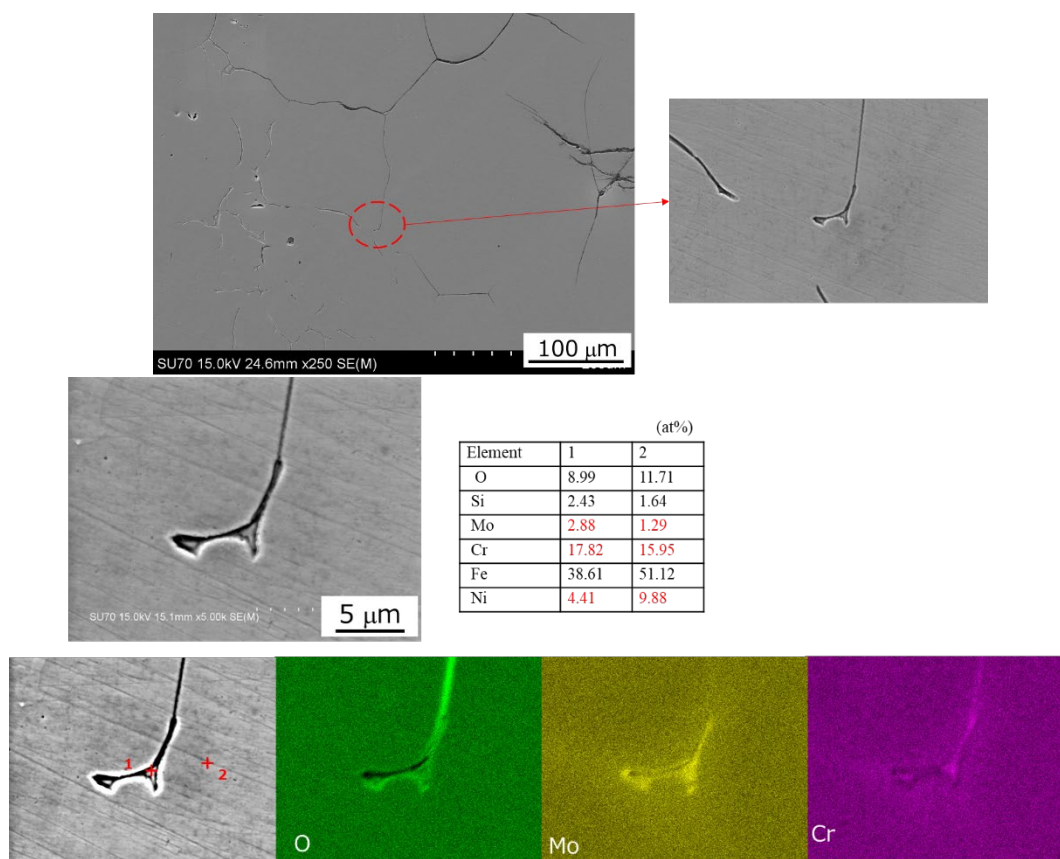


図 3.3-18 試験片 DCPD5: 1430 °C-3s-(1) のき裂断面 SEM (+EDX) 観察結果

### 3.4 総合評価

#### 3.4.1 経年劣化耐性に優れた次世代ステンレス鋼溶接金属の設計指針提案【R6】

3.3.1～3の連携によって得られた知見を総括し、熱時効硬化ならびに応力腐食割れ耐性に優れたステンレス鋼溶接金属の設計指針を提案した。熱時効硬化については、使用温度範囲に応じて最も熱時効劣化感受性の低いフェライト組成の設計指針を検討した（表 3.2-3, 4、図 3.2-24, 25）。応力腐食割れに関しては、き裂進展抵抗性に優れたフェライト分布形態と、フェライト相の熱時効硬化の速度論を検討した。粒界に島状  $\delta$  相が広く分布した組織を作製するためには、高 Cr 等量/Ni 等量比の組成が望ましいと考えられた。加えて、 $\delta$  相の高耐食性を維持するには、熱時効に伴うミクロ組織変化による耐食性低下の速度を把握することが重要と考えられた。



### 3.5 研究推進【R4-R6】

#### 【令和5年度までの実施内容および成果（概要）】

令和4年度は、研究代表者の下で各研究項目間における連携を密にして研究を進めるとともに、研究実施計画等を協議するため業務参加者が集まって委員会を開催した。複数回のオンライン打ち合わせに加えて、対面での打ち合わせを実施した。研究タスク間の連携や課題、当該年度の成果まとめなどについて議論を実施することで、効率的に業務を推進できた。

令和5年度は、研究代表者の下で各研究項目間における連携を密にして研究を進めるとともに、研究実施計画等を協議するため業務参加者が集まって委員会を開催した。研究タスク間の連携や課題、研究期間を通じた成果まとめなどについて議論を実施することで、効率的に業務を推進できた。

#### 【令和6年度の実施内容および成果】

研究代表者の下で各研究項目間における連携を密にして研究を進めるとともに、研究実施計画等を協議するため業務参加者が集まって委員会を開催した。特に、当初の想定を超える成果の学術的インパクトや、これらを含む最終的な成果のまとめ、ならびに論文投稿計画について、タイムリーかつ具体的な連携を実施した。

#### 4. 結言

本研究は、オーステナイト系ステンレス鋼溶接金属に数～十数%含まれる $\delta$ -フェライト相に着目して、将来顕在化する可能性が高い劣化モード（熱時効脆化ならびに応力腐食割れ）への耐性を有する次世代ステンレス鋼の設計指針を提案することを目的としている。具体的には、(1) 溶融凝固過程を考慮した熱時効硬化・ミクロ組織変化挙動評価、(2) データサイエンスを駆使した汎化性能の高いミクロ組織変化予測モデル構築、(3) 応力腐食割れ進展抵抗性に優れた2相組織の創成、をデータ駆動型の研究アプローチにより推進することを目的としている。上述した通り、業務計画書に記載した事項については全て問題なく達成された。以下に、本研究期間を通して得られた業務成果について列記する。

##### 『(1) 溶融凝固過程を考慮した熱時効硬化・ミクロ組織変化挙動評価』

本項目では、溶接部 $\delta$ 相の熱時効に伴う硬化ならびにミクロ組織変化挙動を評価した。これまで同様の研究は多くなされてきたものの、溶融凝固過程を考慮した上で、溶接金属中央部と溶融境界に分布する $\delta$ 相を分けて評価した先行研究は見当たらない。部位毎に分類した $\delta$ 相の熱時効データを拡充するとともに、硬化とミクロ組織変化の関係をメカニズムの観点から考察した。400℃以下の時効温度領域において、本研究の熱時効条件範囲では $\delta$ 相の硬化に対応する主たるミクロ組織変化はスピノーダル分解であると考えられた。一方で、475℃においてはG相前駆体と考えられるNi-Si-MoクラスターならびにMo濃化領域が形成されていた。この結果は、タスク3.2.3における計算結果「MnとMoを含む合金においては、G相の第2副格子を主として占有するのはMnではなくMoである。」と整合すると考えられたことから、本事業におけるG相析出予測の信頼性を担保するものと考えられた。

##### 『(2) データサイエンスを駆使した汎化性能の高いミクロ組織変化予測』

本項目では、原子炉構造材料等で長期にわたり使用されるステンレス鋼の健全性を評価する上で極めて重要な課題である、熱時効や中性子照射環境下でのミクロ組織変化、特にG相析出とそれに先行または競合するスピノーダル分解の挙動を高精度に予測するモデル構築を目的としてきた。この複雑な現象を解明するため、CALPHAD法（熱力学計算）、Phase Field法（PFM）、マテリアルズ・インフォマティクス（MI）/機械学習（ML）といった最先端の計算科学的手法を統合的に活用し、信頼性と汎用性を兼ね備えた予測基盤の構築を目指した。令和6年度は、これまでに築き上げてきた成果とツールを基盤とし、予測モデルのさらなる高度化、スピノーダル分解とG相析出が絡み合う連成挙動のメカニズム解明、そして実環境における合金組成のばらつきや中性子照射の影響評価に重点を置いて研究を推進した。

令和6年度における主要な成果の一つは、独自に開発・精緻化を進めてきた熱力学データベース（TDB）を用いたCALPHAD計算によるG相析出メカニズムの深化である。計算により、ステンレス鋼中のフェライト相がスピノーダル分解を起こすと、生成する二相のうちNiとSiに富む $\alpha$ 相ではG相の析出が顕著に促進される一方、Niをほとんど含まないCrリッチな $\alpha'$ 相ではG相析出が抑制されることが明確になった。この結果は、G相形成におけるNiとSi元素の決定的な重要性を裏付けると共に、従来必須元素と考えられていたMnが必須ではない可能性を示唆した。

また、Mn と Mo を含む合金においては、G 相の第 2 副格子を主として占有するのは Mn ではなく Mo であるという計算結果が得られ、本事業で実施した熱時効試験においても、この傾向が実験的に確かめられた。さらに、実用鋼種である SUS316L を対象に、その化学成分規格の範囲内で合金組成（特に Si 量）を精密に調整することにより、長時間供用後の G 相析出量を最大で約 5 倍も変化させ得ることを定量的に示し、耐 G 相析出性に優れた材料を設計するための具体的な指針を提供した。

次に、スピノーダル分解と G 相析出の複雑な連成挙動を効率的に予測するため、機械学習技術の応用をさらに高度化させた。G 相析出に関する膨大な熱力学計算（約 7.5 万ケース）結果を教師データとし、マルチレイヤーパーセプトロン（MLP）アルゴリズムを用いて高速な G 相析出時間予測モデルを構築・改良した。このモデルは、合金組成、温度、転位密度などの入力情報から、G 相が特定のサイズ（1 nm, 3 nm）に成長するまでの時間を瞬時に予測することが可能であり、高い汎化性能を有することを確認した。さらに重要な進展として、この ML モデルと、別途 PFM 計算で得られたスピノーダル分解開始時間マップとを統合し、温度-組成空間上に両現象の時間スケールを等高線として表示する評価ツールを開発した。これにより、合金組成や温度がスピノーダル分解と G 相析出の速度論的な競合関係や相互作用に及ぼす影響を、視覚的かつ網羅的に評価するための強力な基盤を確立した。

加えて、当初計画を上回る成果として、実環境因子である中性子照射が G 相析出に与える影響の定量的な評価に成功した。照射による影響を、主に原子の拡散速度の増加（照射誘起拡散）としてモデル化し（G 相自体の熱力学的な安定性は変化しないと仮定）、既存の照射下熱時効実験データを高精度に再現するように、照射量に応じた拡散促進係数（MEP）を導出した。このモデルの妥当性は、異なる合金の照射下実験データとの比較によっても確認された。この照射影響モデルを用いて、各種ステンレス鋼に対する照射下および非照射下での G 相析出 Time-Temperature-Precipitation（TTP）線図を作成し、中性子照射による析出開始時間の大幅な短縮（約 10 倍）や、その影響が合金種や温度域によって異なることなどを定量的に予測した。これは、実際の原子炉環境に近い条件下での材料劣化挙動予測に向けた大きな前進である。研究を通じて開発・精緻化された G 相に関する熱力学データは、成果の透明性と再現性の観点から、GitHub での公開準備を完了した。

総括すると、令和 6 年度の研究活動により、ステンレス鋼における複雑なマイクロ組織変化、特に G 相析出とスピノーダル分解の連成挙動および中性子照射影響に関する予測・評価基盤が大幅に強化された。熱力学計算による詳細なメカニズム解明と、機械学習による高速予測モデルの構築・連携は、複雑な材料挙動の理解深化と効率的な評価を両立させる道筋を示した。本プロジェクトの成果は、原子力材料をはじめとするステンレス鋼部材の長期健全性評価の精度向上、さらには耐 G 相析出性に優れた次世代材料の設計・開発に大きく貢献することが期待される。

### 『(3) 応力腐食割れ進展抵抗性に優れた 2 相組織の創成』

本項目では、溶融境界の粒界に局所的に存在する島状  $\delta$  相分布組織を、溶接熱を模擬した熱処理により広範な範囲で作製することに成功した。粒界に島状フェライト相が広く分布した試験片の SCC 進展速度と母材のみの進展速度を比較することで、フェライト相の進展抵抗効果を定量的に求めた。破面解析または、き裂先端の高解像度観察により、フェライト相のき裂進展抵抗への

寄与をメカニズムの観点から検討した。き裂進展速度に及ぼす $\delta$ 相分布の影響については認められなかったものの、き裂先端が $\delta$ 相に位置している例が複数認められたことから、 $\delta$ 相は一定のき裂進展遅延効果を有する可能性が示された。

#### 『(4) 総合評価』

3.3.1～3の連携によって得られた知見を総括し、熱時効硬化ならびに応力腐食割れ耐性に優れたステンレス鋼溶接金属の設計指針を提案した。熱時効硬化については、使用温度範囲に応じて最も熱時効劣化感受性の低いフェライト組成の設計指針を検討した（表 3.2-3, 4、図 3.2-24, 25）。応力腐食割れに関しては、き裂進展抵抗性に優れたフェライト分布形態と、フェライト相の熱時効硬化の速度論を検討した。粒界に島状 $\delta$ 相が広く分布した組織を作製するためには、高 Cr 等量/Ni 等量比の組成が望ましいと考えられた。加えて、 $\delta$ 相の高耐食性を維持するには、熱時効に伴うマイクロ組織変化による耐食性低下の速度を把握することが重要と考えられた。

#### 『(5) 研究推進』

研究代表者の下で各研究項目間における連携を密にして研究を進めるとともに、研究実施計画等を協議するため業務参加者が集まって委員会を開催した。研究タスク間の連携や課題、研究期間を通じた成果まとめなどについて議論を実施することで、効率的に業務を推進できた。