

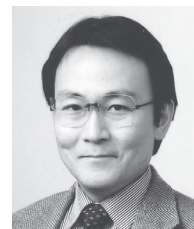
特別講演

□第175回春季講演大会学術功績賞受賞記念特別講演
(平成30年3月20日)

耐熱材料における新規設計指導原理の構築 — 粒界析出制御 —

Novel Design Principles of Grain-boundary Precipitation
Control for High-temperature Alloys

竹山雅夫 東京工業大学
Masao Takeyama 物質理工学院
教授



*脚注に略歴

はじめに

まず図1に示す組織を見比べて頂きたい。左右どちらの組織がより高いクリープ抵抗を示すであろうか。大半の人は(b)と答えるであろう。しかし、否である。解は図2にある。この組織は著者らが先進超々臨界圧(A-USC)発電プラントへの適用を目指して提案、開発している金属間化合物強化型オーステナイト系耐熱鋼Fe-20Cr-30Ni-2Nb (at.%)の組織の一例である¹⁻⁶⁾。粒界および粒内に認められる析出相はいずれもFe₂Nb Laves相である。まず粒内に着目すると、(b)は比較的細かなLaves相が密に析出しているが、(a)の析出密度は粗であり、そのサイズも大きい。しかし、結晶粒界に着目して頂きたい。(a)は粒界の大半がLaves相で覆われており、その平均の被覆率 $\bar{\rho}$ (全粒界面積に対して析出相で覆われている粒界面積の割合)は $\bar{\rho}=89\%$ であるのに対し、(b)では $\bar{\rho}=52\%$ である。図2はこれらの組織を有する試料から得たクリープ曲線である。粒内の析出密度が低いにも関

わらず $\bar{\rho}$ の高い試料の方がクリープ抵抗は大きく、破断時間は3倍以上となる。さらに驚くべきことは、大半の粒界がLaves相で覆われているにも関わらず、クリープ破断延性は低下しない。これらの組織はA1 (fcc) + Fe₂Nb 二相共存領域にて予め時効を施して制御しており、当然ながら破断後の組織も初期組織とほぼ同じであることを確認している。この結果から、高温材料の高強度化にとって最も重要なことは粒界の組織設計制御にあることは明らかである。また、もう一点、大半の人は、Laves相や σ 相といったTCP (Topologically Close Packed) 相は機械的性質を劣化させる有害相と認識していると思うが、必ずしも有害相ではなく、むしろ有望な強化相となり得る、ということも指摘しておきたい。

そこで、以下では、著者らがオーステナイト系耐熱鋼を中

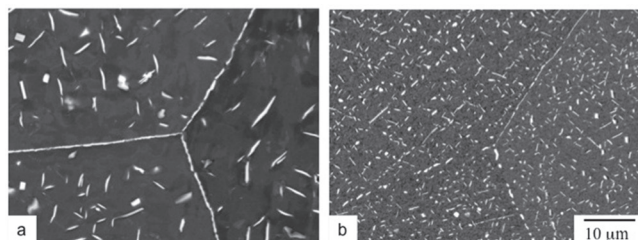


図1 Fe-20Cr-30Ni-2Nb 鋼の800℃/1200h時効材の組織
(a) 0.03 at% B を含む鋼、 $\bar{\rho}=89\%$ 、(b) B 無添加鋼、 $\bar{\rho}=52\%$

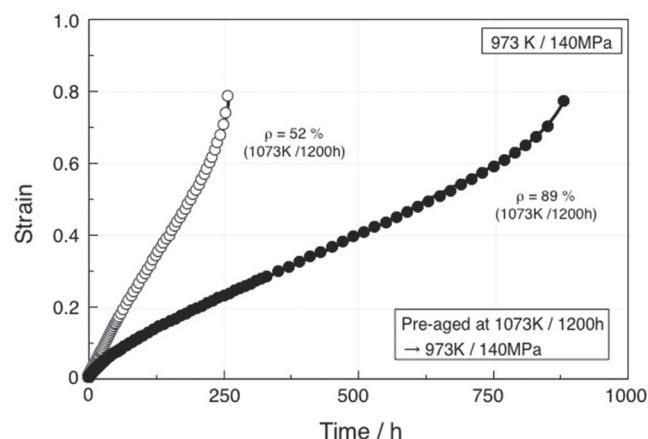


図2 図1に示す組織を有する両鋼の700℃/140 MPa におけるクリープ曲線

* 昭和61年東京工業大学にて工学博士を取得し、米国オークリッジ国立研究所、科学技術庁金属材料技術研究所に在籍、平成5年4月に東京工業大学工学部金属工学科助教授に着任、平成23年10月同大学理工学研究科材料工学専攻(本年4月より物質理工学院)の教授となる。

心に構築してきた組織設計指導原理とそのさらなる可能性について述べる。

2 状態図を利用した組織設計指導原理

図3に超々臨界圧 (USC) 発電プラントのボイラー用材料として使用されている代表的な高Crフェライト系及びオーステナイト系 (SUH347) 耐熱鋼の許容応力を、A-USC用として開発が進められているNi基鍛造合金 (IN740) と併せて示す⁷⁾。ボイラー用材料には10万時間クリープ破断強度100MPa以上が要求され、蒸気温度が約600℃のUSCではフェライト系およびオーステナイト系耐熱鋼ともにその要求を満たしている。しかし、蒸気温度が700℃以上のA-USCになると、フェライト系耐熱鋼は全く対象外、また、オーステナイト系耐熱鋼の許容応力も40MPa以下と激減する。一方、金属間化合物 Ni_3Al (γ') 相を強化相とするIN740は推定ではあるがその耐用温度は約760℃である。したがって、現状はNi基合金を中心に開発が行われている。

この結果から、二つの疑問が浮かぶ。一つは、同じfcc (A1) を母相としているにも関わらず、オーステナイト系耐熱鋼のクリープ強度がNi基合金よりも著しく劣るのは何故か。これは、前者が熱力学的に不安定な遷移金属炭化物を強化相としているからである。この炭化物は使用中に別の炭化物に変化し、さらに長時間時効後にはTCP相 (σ 相やLaves相) の生成を促す。特に、これらの相は結晶粒界に塊状に生成することから、強度低下の主犯と見なされており、これが有害相と言われる所以である。しかし、著者は、強度劣化の原因はTCP相にあるのではなく、そこに到るまでの組織変化、すなわち組織の不安定性にあると考えている。すなわち、TCP相

は平衡相であり、したがって、これらの相を最初から強化相として利用すれば、組織変化は抑制され、高強度化が図れる可能性がある。しかし、金属間化合物を強化相とするオーステナイト系耐熱鋼の研究は著者らが行うまでは、ほとんど行われていなかった。その理由は、上述したようにTCP相が有害相と深く信じられ、これまでその生成を抑制する合金設計手法が取られてきたからにほかならない^{8,9)}。金属間化合物を強化相とする鋼としては唯一マルエージ鋼があるが、これは超高強度鋼であり耐熱鋼ではない。

では、次に金属間化合物を強化相とするオーステナイト系耐熱鋼を設計するにはどうすればよいのか。一つには、Ni基と同様、アルミニウムを添加して粒内を γ' 相により強化する方法が思い浮かぶであろう。しかし、アルミニウムは強力なA2相 (bcc) 安定化元素であり、これを添加すると結局はA1 (fcc) 母相を安定化させる炭素 (C) の添加あるいはNi量を増やす必要があり、結果として通常のオーステナイト系やNi基 (Ni-Fe基) 合金と変わらなくなる。しかも、この手法では粒内ばかりを析出強化して、粒界の組織設計が疎かになり、機能しない。しかし、金属間化合物強化型オーステナイト系耐熱鋼が実現し、その許容応力が向上すれば、コスト面においても計り知れないメリットがある。

そこで、著者らが行ってきたアルミニウム (γ' 相) に頼らず、粒内及び粒界をバランスよく金属間化合物により組織制御する金属間化合物強化型オーステナイト系耐熱鋼の設計に資する組織設計指導原理の設計のフローを図4に示す。析出相は始めから平衡相である金属間化合物が望ましく、そのためには γ 相と平衡する化合物を特定する必要がある。その基本系は、Fe-Ni-M 3元系となる。ここでMは遷移金属元素であり、Fe-M 2元系では Fe_2M (TCP) 相を、一方、Ni-M 2元系では Ni_3M (GCP : Geometrically Close Packed) 相を形成

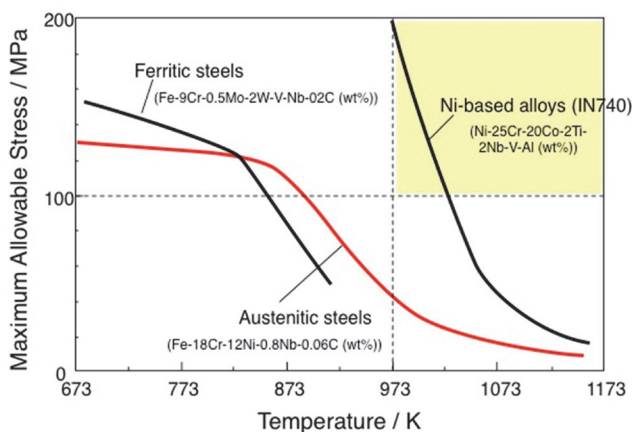


図3 USC 発電プラント用の代表的な高Cr フェライト系およびオーステナイト系耐熱鋼とA-USC用のNi基候補合金の許容応力と温度との関係

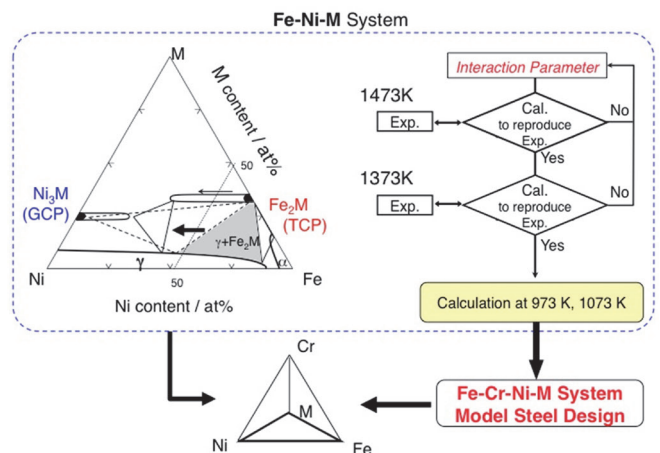


図4 金属間化合物強化型新規オーステナイト系耐熱鋼の設計指導原理の流れ

する元素を選定する。この3元系状態図から γ -Fe + Fe₂M + Ni₃M 3相間の相平衡とその温度に伴う変化の知見が重要となる^{1,10,11)}。ここでは、まず高温(1200℃、1100℃)における状態図を実験的に明らかにし、次に、その両温度での実験状態図を計算によって再現するように各相の3元素間の相互作用パラメータを、その温度および組成依存性を考慮して最適化する。その後、この知見をFe-Ni-Cr-M 4元系に拡張し、使用温度(700℃～800℃)における平衡状態図を計算で求める¹²⁾。

図5にこの手法を用いて800℃級発電プラント (FA-USC) への適用を目標に設計提案したモデル鋼 (Fe-20Cr-35Ni-2.5Nb (at. %)) の組織を示す。その組織の特徴は、粒界にはTCP相であるFe₂Nb Laves相 (C14型構造) を優先的に析出させその大半を覆う ($\rho=89\%$) こと、一方、粒内にはGCP相であるNi₃Nb (δ : D0_a型構造) を均一微細に析出させることにある。また、図6に、この鋼の800℃におけるクリープ破断強度を、他の候補合金を合わせて示す。本モデル鋼はFe基の中では群を抜いて強く、Ni基合金Alloy 617に匹敵するクリープ破断強度を有し、破断延性も約20%を示す^{2,4)}。なお、本鋼の800℃における強度目標 (10万時間クリープ破断強度100 MPa) は、Ni基でさえ満たすのは難しいため、未だ及ばないが³⁾、700℃での目標は十分クリアする^{1,3,11)}。

この鋼の優れたクリープ破断強度は、そのクリープ速度/時間曲線の解析から、GCP相とTCP相の両金属間化合物相の析出の kinetics の違いを有効に利用することによって得られる。すなわち、負荷直後に母相 (fcc) と類似した結晶構造を有する準安定な GCP 相 Ni_3Nb (γ'' : D0_{22} 型構造) の粒内への整合析出により、クリープ速度は著しく減少する。その後、 $\gamma'' \rightarrow \delta$ への変態によりクリープ速度は一旦加速するが、時間の経過に伴い母相と結晶構造の大きく異なる TCP 相が

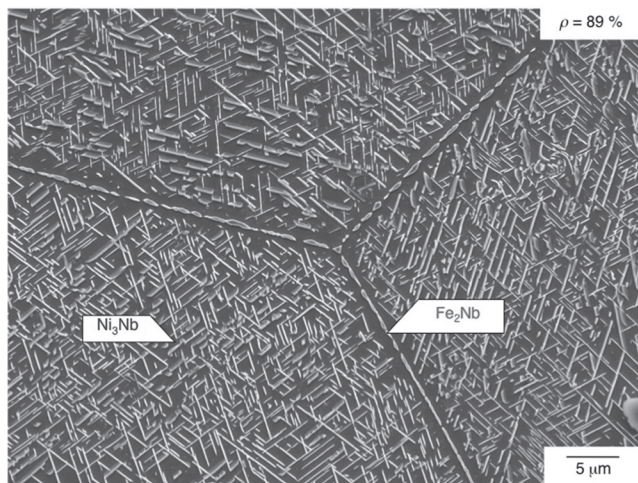


図5 図4に示す設計指導原理に基づいて800℃級A-USC用に提案したモデル鋼(Fe-20Cr-35Ni-2.5Nb, B, Zr)の800℃/1200h時効材の組織

エネルギーの高い結晶粒界にて優先的に核生成・成長して ρ は次第に増加し、その後のクリープ加速の程度は抑制される。すなわち、優れた長時間側強度はTCP 相の粒界への優先析出による「粒界析出強化」(Grain Boundary Precipitation Strengthening: GBPS) に起因する^{1,4,5,11,13,14)}。なお、冒頭でも述べたが、Laves相による相 ρ が9割と高くてもクリープ破断延性は低下せず⁵⁾、また、室温引張試験においても粒界破壊は起きず延性低下は生じない⁶⁾。

3 粒界析出強化

ここで粒界析出強化について述べておく。耐クリープ性を得る上で最も重要なのは結晶粒界の組織設計である。粒界析出強化は、空孔の発生場・消滅場として作用する結晶粒界を析出物で被覆して強化する手法である。結晶粒界は、常温では転位の障害物として働くため、結晶粒径が小さいほど強度は向上する(Hall-Petchの法則)。しかし、高温において結晶粒界は上述した理由で弱化因子として働く。この結晶粒界を排除して優れた高温強度を得ているのがNi基単結晶超合金である。多結晶材におけるクリープ速度の結晶粒径依存性は、Nabarro-Herringのモデル($\dot{\epsilon} = d^{-2}$)¹⁵⁾やCobleのモデル($\dot{\epsilon} = d^{-3}$)¹⁶⁾として知られている。前者が空孔の体積拡散、後者が粒界拡散に基づいてモデルを導いており、いずれも結晶粒径が細かいほど耐クリープ性は低下する。著者らは、1980年代に原子力製鉄プロジェクトによって開発が試みられた固溶強化型Ni基合金Ni-Cr-W系合金においてWを15wt%以上添加すると、結晶粒界に α -W(bcc)相が析出してクリープ抵抗が向上し、クリープ速度($\dot{\epsilon}$)と平均の被覆率 $\bar{a}$ との間に以下の関係があることを見出し¹⁷⁻¹⁹⁾：

$$\dot{\epsilon} = \dot{\epsilon}_0 (1 - \bar{\rho}) \dots\dots\dots (1)$$

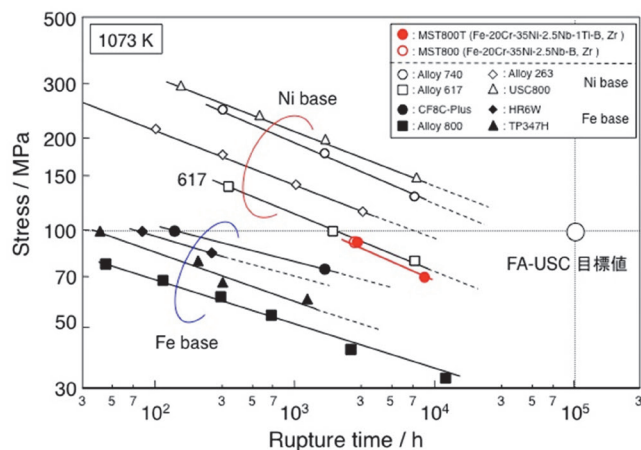


図6 A-USC 発電プラント用の種々のFe 基およびNi 基候補合金の800℃における応力/破断時間曲線

$\dot{\epsilon}_0$ は析出相が粒界に析出していない時のクリープ速度である。本モデル鋼から得られた両者の関係は、図7に示すように(1)式と良く一致する。したがって、本鋼の優れたクリープ破断強度は、このGBPSに起因することは明らかである。この強化機構の特徴は、 $\bar{\rho}$ の値が高ければ高い程その強化の効果が顕著に現れることである。例えば、 $\bar{\rho}$ が50%から5%増加してもクリープ速度の減少の程度は1割であるが、90%から5%増加すると速度は半減する。この強化機構はもう一つの重要なことを示唆している。図右側の組織の模式図において点線で囲った枠の領域に着目して頂きたい。ある粒界の ρ が当初99%であったものが(上図)、90%に減少すると(下図)、その局所領域のクリープ速度は一桁増大する。すなわち、被覆していない粒界にて変形が優先的に生じることを意味し、事実、被覆していない粒界近傍に方位差の大きな亜粒界が多く形成される^{5,15)}。したがって、粒界析出相が互いに凝集粗大化すると、それによって現れる被覆されていない粒界において変形が優先的に生じクリープ加速が促進される。したがって、A-USC発電プラント用材料のように、優れた長時間クリープ破断強度が要求される材料にとっては粒界を安定な析出相でしっかりと被覆する組織制御が重要となる。

4 他の化合物相による粒界制御

ここまでは、Fe-Ni-M 3元系において、 Fe_2M Laves相の中でも最も融点(1640℃)が高い Fe_2Nb を粒界強化相とする組織制御法について述べてきたが、Fe-Ni-Cr3元系に出現するFeCr- σ (TCP) 相(*tP30*型構造)による粒界析出強化のための組織制御は可能であろうか。図8にその結果を示す。(a)はFe-Ni-Cr系オーステナイト系耐熱鋼(例えばSUS310)の長時間時効後に認められる典型的な粒界 σ 相の形態であり、

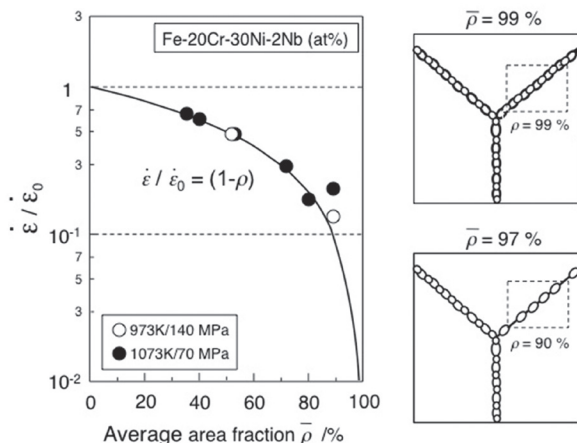


図7 A-USC 発電プラント用材として提案した金属間化合物強化型モデル鋼の Fe_2Nb Laves 相による粒界析出強化、および、その強化機構が示唆する組織の模式図

10 μm 以上の粗大な塊状を呈する。一方、(b) に示す粒界析出相も σ 相であり、大きさ約1~2 μm 程度の粒状相が大半の粒界を覆うように($\bar{\rho}=98\%$)析出しているのが分かる。Fe-Ni-Cr 3元系には σ 相は平衡相として存在し、約1150℃において包析反応により α 相(A2)と γ 相(A1)に分解($\sigma \rightarrow \alpha + \gamma$)する。また、その析出のノーズ温度は約650℃と低い²⁰⁾。したがって、この鋼をノーズ温度以上の700℃で時効すると σ 相が粒界に塊状に生成するのは必然である。(b)の組織は、Fe-Ni-Cr3元系に存在する相安定性の低い σ 相とFe-Mo2元系およびCr-Mn 2元系に存在する高温 σ 相(それぞれ熱力学的に安定に存在する上限温度は1611℃および1312℃)が連続固溶体を作るよう成分設計し^{21,22)}、 γ 母相と平衡する σ 相の析出のノーズを約1300℃まで高めたFe-Ni-Cr-Mn-Mo 5元系の鋼の800℃/1440 h 時効後の組織である。したがって、相安定性の低い金属間化合物であっても、その状態図に基づいて相安定を高め、時効温度がノーズ以下となる温度域にて熱処理を施すことにより粒界析出制御は可能である。

では、Fe-Ni-M3元系における Ni_3M 型のGCP相による粒界析出制御は可能であろうか。図9にその一例を示す。このタイプのGCP相¹⁾はA1 (fcc) 母相と強い方位関係を有するため、(a)に示す白いコントラストの相(ここでは Ni_3Nb - δ 相)のように、その核生成サイトは結晶粒界であってもその後直ぐに粒内へと成長し、結晶粒界ごとの ρ 値は著しく変化し、 $\bar{\rho}$ は60%程度にしかない²³⁾。したがって、これらのGCP相、例えばNi基鍛造合金IN 718の Ni_3Nb - δ 相のように、意図的に析出させるものの、その役割は鍛造プロセス中

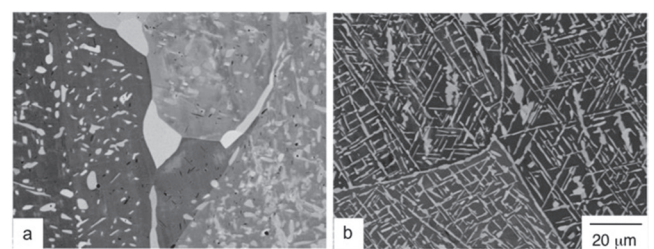


図8 Fe-Ni-Cr系オーステナイト系耐熱鋼において生成するFeCr- σ 相の粒界析出制御: (a) Fe-Ni-Cr 3元系合金、800℃/3600 h、(b) Fe-Ni-Cr-Mn-Mo 5元系合金、800℃/1440 h

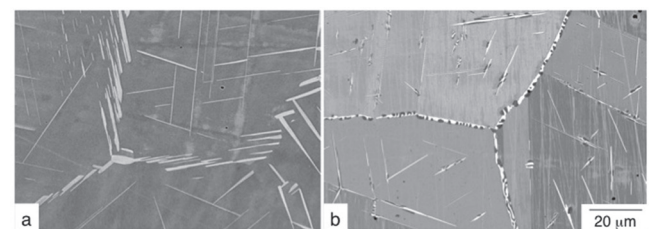


図9 Ni基合金に析出するGCP Ni_3Nb - δ 相の粒界析出制御: (a) Ni-Nb-Fe 3元系合金、1150℃/24h、(b) Ni-Nb-Cr 3元系合金、1000℃/100h

に生じる結晶粒成長を抑制するためのピン留め効果相程度にしか利用されておらず、GCP 相を積極的に粒界強化相として利用する組織設計制御は著者の知る限り皆無である。この相を粒界強化相として利用するには、核生成後の粒内への成長を抑制し、 $\bar{\rho}$ を高める必要がある。(b) はそのようにして GCP 相の粒界析出制御に成功した例である²⁴⁾。ここで白いコントラストの相は Ni_3Nb - δ 相またそれに隣接して存在する暗いコントラストの相は α -Cr (bcc) 相である。 δ 相の粒界から粒内への成長は抑制され、両相による $\bar{\rho}$ はほぼ 100% となる。図 10 に、この粒界組織制御の形成過程を Ni-Nb-Cr3 元系等温断面図を用いて模式的に示す。この温度において $\gamma + \text{GCP} (\delta) + \text{bcc} (\alpha\text{-Cr})$ 3 相共存領域にある合金 (図中赤丸) を溶体化後、この温度で時効すると、母相との結晶構造の類似性からまず GCP 相が①で示す非平衡タイラインに沿って粒界に析出する。その際、GCP 相中には Cr はほとんど固溶しないため、析出した GCP 相に隣接する母相の濃度は、 $\gamma/\gamma + \text{GCP}$ 相境界線の延長線 (図中②) と非平衡タイラインとの交点 (図中の黒丸) となる。すなわち、Nb 濃度は減少し、一方、Cr 濃度は増加し、その局所的な組成は $\gamma + \text{bcc} (\alpha\text{-Cr})$ 2 相領域となる。その時、 δ 相の粒内への成長に必要な Nb の過飽和度 (化学的駆動力) は減少し、一方、 α -Cr 相の析出に対する Cr の過飽和度は増加するため、 δ 相の粒内への成長に先んじて α -Cr 相が粒界 δ 相に隣接して生成する。したがって、GCP 相の粒界析出制御には、(1) GCP 相中への M_1 元素の固溶限が小さいこと、(2) Ni- M_1 2 元系において A1 相と結晶構造が大きく異なる TCP 相 (あるいは bcc 相) が存在し、 $\gamma/\text{GCP}/\text{TCP}$ (bcc) 相間にて 3 相共存領域を形成すること、の条件を満たす系であれば、可能となる。

5 おわりに

本稿では、小職がこれまで行ってきた耐熱材料の粒界組織制御について、金属間化合物相をいかに利用するかを中心に述べた。特に、TCP 相は、有害相としてそれを避ける組織設

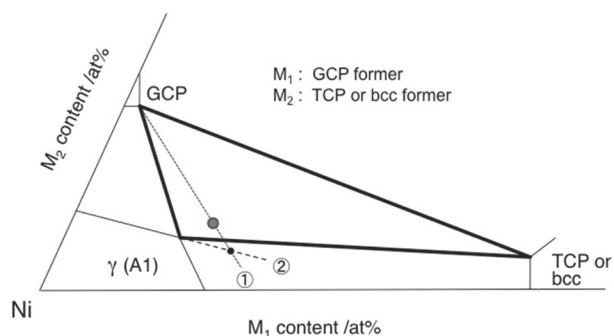


図10 図9に示したGCPの粒界析出制御のメカニズムを示す模式図

計がなされてきたが、有望な強化相となり得ることが少しでも理解頂ければ幸いである。十数年前にLaves相は強化相として使えるという話を学会でした際には、「何を馬鹿なことを」という雰囲気が漂っていたが、一つ一つ実験的証拠を積み重ねてきた甲斐あってか、最近では国内外の学会においてTCP相の強化相としての利用に関する研究が増えてきている。また、「粒界析出強化」が長時間クリープ強度を向上させる重要な強化法であるという認識もかなり広まっている。

現在、著者らは、本稿で述べたオーステナイト系耐熱鋼の組織設計指導原理を、Ni基合金に拡張する研究に取り組んでいる。まだprimitiveではあるが、新たな組織設計の可能性を示唆する結果も得られており、手応えを掴んでいる。しかし、Ni基合金の世界では、未だにTCP相は有害相と見なされている。これは、その組織設計が、「神様からの贈り物」、である Ni_3Al (γ') 相に過度に依存しているからであろう。Ni基合金はその開発の歴史から、欧米にて開発された合金を使うことが多い。しかし、数十年前に書かれたテキストが必ずしも正しいとは限らず、先入観に捕われず、 γ' 相に頼らない新たな発想も必要であろう。

今世界が直面するエネルギー問題、環境問題の解決に向けて、金属材料の高温・高強度化への期待と要求は今後一層増すことになろう。我国の高温材料設計に対する考え方およびそれを形作るプロセス技術は世界の最高水準にある。事実、日本で開催した耐熱材料に関する国際会議には多くの外国の研究者、技術者が集まる。これは、新たな発想に基づいた基礎研究を行える土壌が我々にはあるからだと思う。

最近、米国のMGI (Materials Genome Initiative) やICME (Integrated Computational Materials Engineering) プロジェクトを意識して、我国でもAI (計算科学) やMI (Materials Informatics/Materials Integration) による材料創成が謳われている。AIやMIは既存の中から最適解を探すのには有効と思うが、新たな材料を生み出すのにどれだけ役立つかは凡庸な著者には分からない。計算材料科学が過度にもてはやされブラックボックス化が進むと、その背後にある学問の衰退を招くことになり兼ねない。本稿で述べた組織設計指導原理は、その根幹に状態図があり、金属学がある。やはり、しっかりとした基礎研究に基づいたデータの積み重ねが必要に思う。

最後に、本稿は、日本鉄鋼協会より荣誉ある學術功績賞を拝受し、執筆の機会を与えられたものであり、改めて貴会に感謝致します。本報告の一部は、先端的低炭素化技術開発 (ALCA) における研究課題「革新的800℃級火力発電プラント用超耐熱鋼の設計原理」および、戦略的イノベーション創造プログラム (SIP) 「革新的構造材料」の研究開発項目「耐熱合金・金属間化合物等の開発」における研究開発課題「ジェットエンジン用高性能TiAl基合金の設計・製造技術の開発」

の支援による成果である。また、本稿の内容は、多くの学生諸君と共にを行った実験結果に基づくものであり、彼らの研究に対する真摯な取り組みがなければ到底なし得ないものであることを記し、謝意を表します。

参考文献

- 1) 竹山雅夫：耐熱材料の材料科学－微細組織制御－，第194回，195回西山記念講座，日本鉄鋼協会，(2008)，1.
- 2) 先端的低炭素化技術開発 (ALCA)，実用技術化プロジェクト「低CO₂排出型次世代火力発電用新規耐熱材料の開発」，革新的800℃級超耐熱鋼の設計要素技術 (竹山雅夫)，科学技術振興機構 (JST)，http://www.jst.go.jp/alca.kadai/pri_03.html
- 3) 竹山雅夫：電気製鋼，83 (2012) 1，27.
- 4) 竹山雅夫：まてりあ，56 (2017) 3，145.
- 5) I.Tarigan, K.Kurata, N.Takata, T.Matsuo and M.Takeyama：Mater. Res. Soc. Symp. Proc., 1295 (2011), 317.
- 6) N.Kanno.K.Yoshimura, N.Takata, I.Tarigan and M.Takeyama：Materials Sci. & Eng. A, 662 (2016), 551.
- 7) R.Viswanathan and J.Singledecker：2nd ECCC Creep Conference Proceedings, DEStech Publications, Inc., (2009), 31.
- 8) W.J.Boesch and J.S.Slaney：Metal Progress, 86 (1964), 105.
- 9) B.Seiser, R.Drautz and D.G.Pettifor：Acta Mater., 50 (2011), 749.
- 10) 竹山雅夫：金属，76 (2006) 743.
- 11) 鉄鋼便覧 第5版，材料の組織と特性 (第3巻)，日本鉄鋼協会，403.
- 12) 長谷部優作，橋本清，竹山雅夫：日本金属学会誌，75 (2011)，265.
- 13) 橋詰直也，高田尚記，松尾孝，竹山雅夫：学振123委研究報告，49 (2008)，151.
- 14) I.Tarigan, N.Takata and M.Takeyama：学振123委研究報告，52 (2011)，63.
- 15) C.Herring：J. Appl. Phys., 21 (1950)，437.
- 16) R.L.Coble：J. Appl. Phys., 34 (1963)，1679.
- 17) 田中良平，松尾孝：鉄と鋼，68 (1982)，226.
- 18) 竹山雅夫：博士論文，東京工業大学，(1986)
- 19) T.Matsuo, M.Kikuchi and M.Takeyama：Strengthening Mechanisms of Ni-Cr-W Based Superalloys for Very High Temperature Gas Cooled Reactors, Proc. 1st Inter. Conf. Heat-Resistant Materials, (1991)，601.
- 20) J.Barcik：Metall. Trans. A, 14A (1983)，635.
- 21) 廣澤拓，高田尚記，竹山雅夫：学振123委研究報告，55 (2014)，1.
- 22) 熊谷祥希，小林覚，竹山雅夫：学振123委研究報告，56 (2015)，143.
- 23) S.Ida, S.Kobayashi and M.Takeyama：J. Alloys and Compounds, 764 (2018)，1033.
- 24) 井田駿太郎：東京工業大学 学位論文，(2018)

(2018年6月13日受付)