



挤压态新型镍基粉末高温合金的热变形行为

任 帅, 张 华, 于子超, 刘 伟, 刘志凌, 周 鑫, 黄海亮, 张尚洲, 朱礼龙, 江 亮

(烟台大学 精准材料高等研究院, 烟台 264010)

摘 要: 镍基粉末高温合金的变形抗力大、热塑性较差、热加工窗口窄, 而且在热加工过程中易产生裂纹和流动不稳定等缺陷。本文采用 Gleeble-3500 热模拟实验机对挤压态新型镍基粉末高温合金进行热压缩, 压缩温度为 1050~1150 °C、应变速率为 0.001~1 s⁻¹, 压缩真实应变为 0.69。基于双曲正弦型 Arrhenius 函数, 计算该合金的热激活能 Q 、构建本构方程, 采用多项式拟合摩擦、温度变化、应变补偿的影响, 对应力-应变曲线及本构方程进行修正, 绘制能量耗散图和热加工图。结果表明: 该合金的热激活能 Q 为 536.36 kJ/mol, 其在变形温度为 1075~1150 °C、应变速率为 10⁻³~10^{-1.5} s⁻¹ 的条件下有较好的加工性能, 但当应变速率为 0.001 s⁻¹ 时, 晶粒组织较为粗大, γ' 相溶入基体。

关键词: 挤压态镍基粉末高温合金; 热变形行为; 本构方程; 应力应变曲线修正; 热加工图

文章编号: 1004-0609(2022)-09-2647-17

中图分类号: TF125

文献标志码: A

引文格式: 任 帅, 张 华, 于子超, 等. 挤压态新型镍基粉末高温合金的热变形行为[J]. 中国有色金属学报, 2022, 32(9): 2647-2663. DOI: 10.11817/j.ysxb.1004.0609.2021-42347

REN Shuai, ZHANG Hua, YU Zi-chao, et al. Thermal deformation behavior of a new extruded nickel-base powder superalloy[J]. The Chinese Journal of Nonferrous Metals, 2022, 32(9): 2647-2663. DOI: 10.11817/j.ysxb.1004.0609.2021-42347

镍基粉末高温合金由于具备良好的抗疲劳性、耐腐蚀性、抗高温氧化性、抗裂纹扩展能力以及倚望匠高温强度等优点, 广泛应用于核能、能源、航空航天等领域^[1-3]。

目前, 镍基粉末高温合金制备的主要工艺为: 制粉、热等静压、热挤压、超塑性等温锻造和热处理。然而, 镍基粉末高温合金的变形抗力大、热塑性较差、加工窗口窄, 很难进行大塑性变形加工, 而且在热加工过程中容易产生裂纹和流动不稳定等缺陷, 因此热加工是制备镍基粉末高温合金的关键

环节。热挤压被认为是镍基粉末高温合金进行超塑性等温锻造前的重要工艺, 不仅可以改善合金塑性和变形性能, 而且还能很好地消除原始颗粒边界、破碎非金属夹杂物、细化晶粒组织, 为后续超塑性等温锻造提供高质量坯料^[4-6]。为了改善镍基粉末高温合金的组织以提高热加工性能, 并为后续等温锻造提供支撑, 有必要对挤压态镍基粉末高温合金的热变形行为进行研究, 以获得优异的热加工工艺^[7-8]。

对于包括镍基粉末高温合金在内的金属材料而

基金项目: 烟台市“双百计划”人才计划资助项目(2021); 山东省高等学校青创引育计划创新团队项目(2019); 山东省自然科学基金资助项目(ZR2019MEM012); 山东省泰山学者工程专项经费资助项目(2021); 山东省重大科技创新工程资助项目(2019JZZY010325); 国家重大专项“两机专项”资助项目(J2019-VI-0023-0140)

收稿日期: 2021-09-15; **修订日期:** 2021-10-26

通信作者: 张 华, 教授, 博士; 电话: 0535-6902637; E-mail: zhanghua@ytu.edu.cn

言,通过热压缩变形获得流变曲线从而建立本构方程和热加工图是研究热变形行为、优化热加工工艺的重要手段。但是在实际热压缩变形过程中,试样两端与压头之间存在的摩擦会造成试样的不均匀变形,从而导致试样有明显的鼓肚现象,也会导致流变应力增加,所以有必要对流变曲线进行摩擦修正^[9-10]。此外,在压缩过程中试样的一部分能量转变成热能而使其温度大于设定的压缩温度,会降低试样的流变应力^[11-12];但是试样两端与压头间的热传导及试样的热扩散会降低其温度。虽然 Gleeble 系统可通过调节电流大小对热电偶反馈的温度变化进行调控,使试样保持在设定的温度,但在实际压缩过程中情况较为复杂,尤其是高应变速率条件下 Gleeble 系统可能来不及对温度变化做出调整,从而影响最终的流变应力,所以也需要对流变曲线进行温度变化修正。再者,应变量显著影响热激活能及材料常数等^[13-14],因此引入应变补偿修正亦可以提高流变曲线的精确性。然而,目前关于高温合金热变形行为的研究虽然考虑了摩擦、温度变化等的影响,但均是分别孤立地通过摩擦、温度变化等对流变曲线进行修正,综合考虑摩擦、温度变化、应变补偿三种因素对挤压态镍基粉末高温合金流变曲线及本构方程进行修正的研究尚未见报道。

基于此,本研究对挤压态新型镍基粉末高温合金的热变形行为进行研究,构建本构方程,并综合考虑摩擦、温度变化、应变补偿等因素对流变曲线及本构方程进行修正,使用热加工图并结合显微组织优化热加工工艺参数,以期为该挤压态新型镍基粉末高温合金的后续等温锻造有限元模拟及实验提供支撑。

1 实验

1.1 实验材料

实验材料为本团队研发的一种新型镍基粉末高温合金,主要成分见表1。本文合金制备流程为:采用氩气雾化法(AA)进行制粉,粉末粒度小于 63 μm ,在 1160 $^{\circ}\text{C}$ 、150 MPa 条件下,热等静压(HIP) 4 h 制备坯料;将所制备坯料放入不锈钢包套中,

表1 高Ta镍基粉末高温合金主要成分

Table 1 Chemical composition of high Ta nickel-base powder superalloy (mass fraction, %)

Co	Cr	Mo	W	Al	Ti	Ta	Ni
11.13	11.96	4.02	4.03	2.99	4.03	4.02	Bal.

在 1130 $^{\circ}\text{C}$ 下,以 3.5:1 的挤压比进行热挤压,得到挤压棒材。通过线切割从挤压棒材上切取直径 8 mm、高 12 mm 的圆柱体以进行热压缩实验。

1.2 实验方法

通过 Gleeble-3500 热模拟实验机对圆柱体试样进行等温压缩实验,在试样两端涂抹高温润滑剂并加入 Ta 片和石墨片以防止压头粘连,同时降低摩擦对试样压缩过程中应力状态的影响。实验压缩温度为 1050~1150 $^{\circ}\text{C}$,以 5 $^{\circ}\text{C}/\text{s}$ 的方式升温,并保温 5 min,应变速率为 0.001~1 s^{-1} ,真实应变量约为 0.69。当压缩完成后,立即将试样取出并进行水淬以保留高温变形组织。为保证实验数据的真实可靠性,利用热模拟实验机自动补偿变形温度,同时采集真应力-应变等相关数据。使用德国莱卡光学显微镜、扫描电子显微镜进行微观组织观察。

2 结果与分析

2.1 压缩真应力-应变曲线

图1所示为不同热变形条件下的真应力-应变曲线。由图1可以看出,在不同温度、不同应变速率条件下,在变形初始阶段,应力随着应变量的增加而迅速增大。这是由于变形初期位错密度迅速增加和积累,形成明显的加工硬化^[15-16],而此时位错攀移、滑移和交滑移引起的动态回复效应较弱,无法抵消加工硬化的影响,所以应力迅速增大。随着应变的增大,流变应力达到峰值后逐渐降低。这是由于位错密度增加,当其超过动态再结晶的临界位错密度时,高密度的位错促进了动态再结晶(DRX)的出现,发生动态再结晶形核,增加了动态软化的作用^[5,17]。随着应变的继续增大,当加工硬化和动态软化作用相互平衡时,曲线逐渐趋于平稳状态,即应力出现流变稳定现象。具有这种特征的曲线称

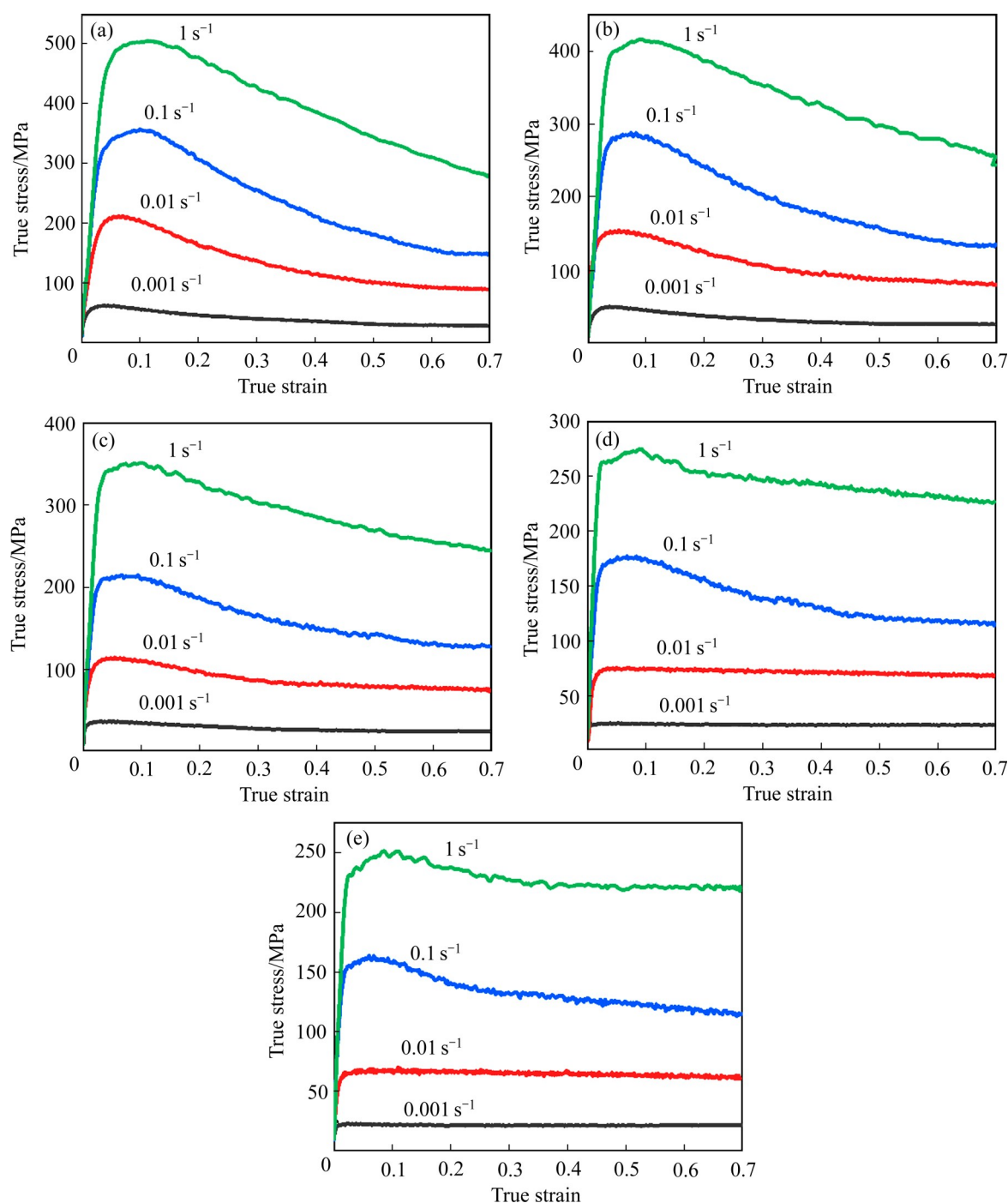


图1 不同温度下镍基粉末高温合金的压缩真应力-真应变曲线

Fig. 1 True stress-true strain curves of nickel-base powder superalloy at different temperatures: (a) 1050 °C; (b) 1075 °C; (c) 1100 °C; (d) 1125 °C; (e) 1150 °C

之为典型动态再结晶流变曲线^[18]。此外, 图1所示的真应力-应变曲线均呈现出锯齿状特征。这是由于动态应变时效(DSA)的出现, 此效应被认为是导致锯齿状特征出现的重要因素^[19], 而且DSA的出现对材料的流动行为及最终的微观结构没有影响^[20]。

2.2 本构方程

假定合金的成分不变, 其在高温塑性变形过程中的流变应力主要有三个因素决定: 应变速率 $\dot{\epsilon}$ 、变形温度 T 和应变变量 $\epsilon^{[1]}$, 其中温度 T 和应变速率 $\dot{\epsilon}$ 对变形过程的影响较为显著。本研究采用基于Arrhenius型双曲正弦函数关系^[21]来表述粉末高温合

金的本构方程:

$$\dot{\varepsilon} = A[\sinh(\alpha\sigma)]^n \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right) \quad (1)$$

$$\dot{\varepsilon} = A_1 \sigma^{n_1} \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right) \quad (2)$$

$$\dot{\varepsilon} = A_2 \exp(\beta\sigma) \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right) \quad (3)$$

式中: $\dot{\varepsilon}$ 为应变速率(s^{-1}); Q 为热变形激活能(kJ/mol); σ 为流变应力(MPa); R 为摩尔气体常数 [$8.31 \text{ J/(mol}\cdot\text{K)}$]; T 为热力学温度(K); A 、 A_1 、 A_2 、 α 、 β 、和 n_1 为材料参数, n 为应力指数, 其中 $\alpha = \beta/n_1$ 。

假设热变形激活能 Q 与变形温度 T 无关, 当变形温度 T 一定时, 对式(1)、(2)、(3)两边分别取自然对数, 可得:

$$\ln \dot{\varepsilon} = \ln A + n \ln[\sinh(\alpha\sigma)] - Q/(RT) \quad (4)$$

$$\ln \dot{\varepsilon} = \ln A_1 + n_1 \ln \sigma - Q/(RT) \quad (5)$$

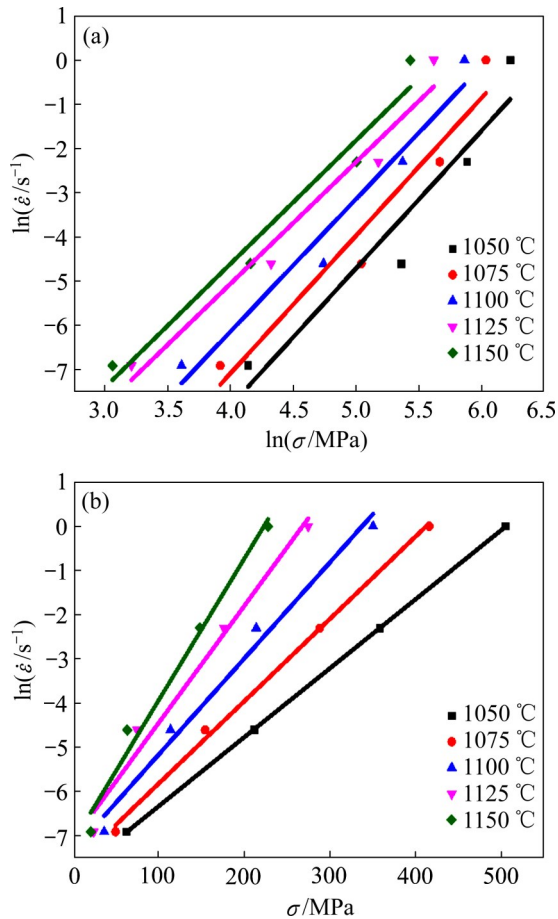


图2 不同变形条件下应变速率与峰值应力的关系

Fig. 2 Relationship between strain rate and peak stress under different deformation conditions: (a) $\ln \dot{\varepsilon} - \ln \sigma$; (b) $\ln \dot{\varepsilon} - \sigma$

$$\ln \dot{\varepsilon} = \ln A_2 + \beta\sigma - Q/(RT) \quad (6)$$

图2所示为挤压态新型镍基粉末高温合金的 $\ln \dot{\varepsilon} - \ln \sigma$ 和 $\ln \dot{\varepsilon} - \sigma$ 关系曲线。对图2(a)和(b)中的数据进行线性拟合, 分别求出其直线斜率的平均值为 $n_1=2.855$ 和 $\beta=0.017155$, 由此得到 $\alpha=\beta/n_1=0.00601$ 。

图3所示为不同变形条件下 $\ln[\sinh(\alpha\sigma)] - \ln \dot{\varepsilon}$ 的关系和 $\ln[\sinh(\alpha\sigma)] - T^{-1}$ 的关系。在一定温度或应变速率条件下, 对式(1)两边取对数并微分得:

$$Q = R \left\{ \frac{\partial \ln \dot{\varepsilon}}{\partial \ln[\sinh(\alpha\sigma)]} \right\}_T \left\{ \frac{\partial \ln[\sinh(\alpha\sigma)]}{\partial \ln(1/T)} \right\}_{\dot{\varepsilon}} \quad (7)$$

式中: $\left\{ \frac{\partial \ln \dot{\varepsilon}}{\partial \ln[\sinh(\alpha\sigma)]} \right\}_T$ 和 $\left\{ \frac{\partial \ln[\sinh(\alpha\sigma)]}{\partial \ln(1/T)} \right\}_{\dot{\varepsilon}}$ 是不同

温度下 $\ln \dot{\varepsilon} - \ln[\sinh(\alpha\sigma)]$ (见图3(a)) 和不同应变速率下 $\ln[\sinh(\alpha\sigma)] - T^{-1}$ (见图3(b)) 中直线斜率的平均值, 经线性拟合后得出其值为 2.352 和 27.429。计算出

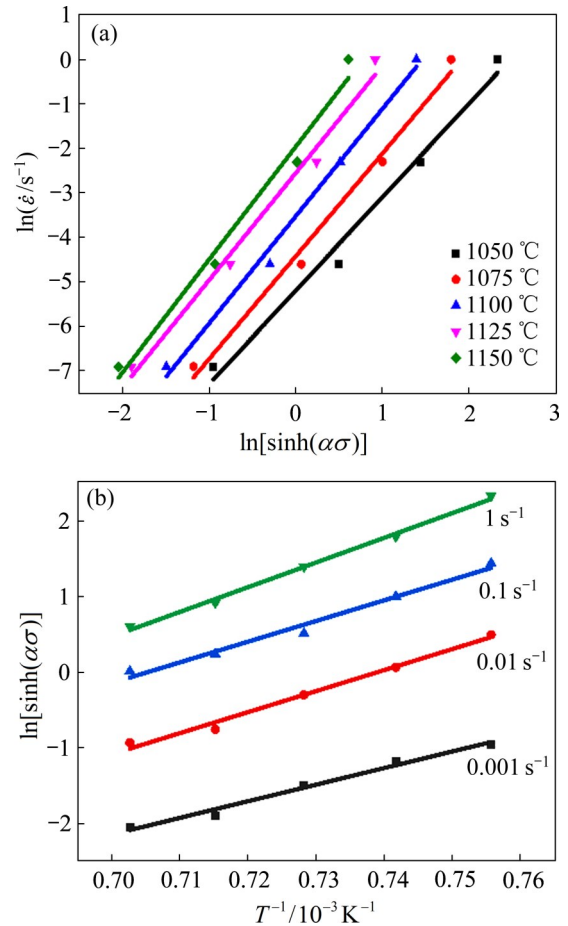


图3 不同变形条件下 $\ln[\sinh(\alpha\sigma)] - \ln \dot{\varepsilon}$ 的关系和 $\ln[\sinh(\alpha\sigma)] - T^{-1}$ 的关系

Fig. 3 Relationships of $\ln[\sinh(\alpha\sigma)] - \ln \dot{\varepsilon}$ (a) and $\ln[\sinh(\alpha\sigma)] - T^{-1}$ (b) under different deformation conditions

挤压态新型镍基粉末高温合金的热激活能 $Q=536.36 \text{ kJ/mol}$ 。

本研究中挤压态新型镍基粉末高温合金的热激活能低于谢兴华等^[22]和NIE等^[23]研究的FGH96合金。热激活能的变化主要与溶质、晶粒尺寸、沉淀物等有关^[1, 24-25]。高温合金较高的热激活能 Q 值与Co的含量有关^[26], 在材料制备过程中, Co原子作为固溶体的主要合金元素, 导致原子有序度降低, 同时其自由扩散可能参与镍钴基合金的热压缩过程, 所以 Q 值会随着Co含量的增加而增加^[27-28]。晶粒尺寸减小, γ' 相分布均匀, 可抑制位错运动, 对提升热激活能有一定作用^[1]。但热激活能高低也与合金中溶质元素含量有关, 合金元素的低添加量可以降低扩散的热激活能^[29-31], 热激活能随合金元素含量的增加呈指数上升趋势^[32]。本研究新型镍基粉末高温合金的溶质元素约为44%、Co含量为11.13%, 低于其他镍基粉末高温合金^[22-23], 所以其热激活能较低。

众所周知, 变形温度和应变速率对金属变形行为的影响可以用Zener-Hollomon^[33]参数表达, 通过温度补偿应变速率 Z 参数来描述, 其表达式如下:

$$Z = \dot{\varepsilon} \exp\left(\frac{Q}{RT}\right) = A[\sinh(\alpha\sigma)]^n \quad (8)$$

将式(8)两边取对数, 可得:

$$\ln Z = \ln A + n \ln[\sinh(\alpha\sigma)] \quad (9)$$

将热变形激活能 Q 代入式(8)、(9)中, 绘制出 $\ln[\sinh(\alpha\sigma)] - \ln Z$ 关系图(见图4)。求得图4中线性回归曲线的截距 $\ln A = 43.41168$, $A = 7.136 \times 10^{18}$ 。

因此, 可以获得挤压态新型镍基粉末高温合金的本构方程, 其表达式如下:

$$\dot{\varepsilon} = 7.136 \times 10^{18} [\sinh(0.006\sigma)]^{2.352} \exp\left(-\frac{536360}{RT}\right) \quad (10)$$

2.3 真应力-应变曲线的修正

2.3.1 摩擦修正

为消除摩擦对高温变形下应力的影响, 尽可能精确地计算热变形过程中的真实应力值, 本研究利用EBRAHIMI等^[34]提出的修正模型对实验测得的真应力-真应变曲线进行摩擦修正, 考虑摩擦效应修正的流变应力可以写成^[31, 34-36]:

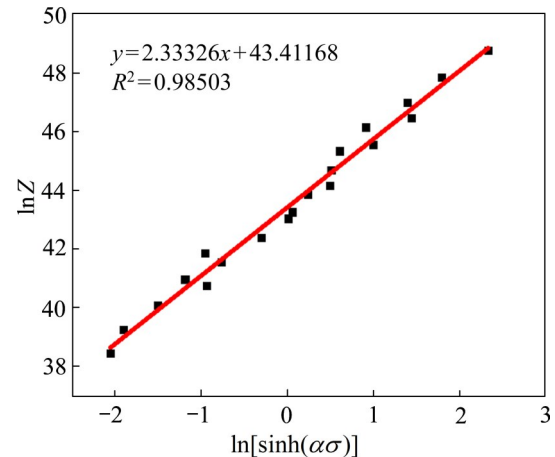


图4 Z 值与峰值应力的关系

Fig. 4 Relationship between Z value and peak stress

$$\sigma_f = \frac{\sigma}{1 + \left(\frac{2}{3\sqrt{3}}\right) f \left(\frac{r_0}{h_0}\right) \exp\left(\frac{3\varepsilon}{2}\right)} \quad (11)$$

式中: σ_f 为修正后的流变应力; σ 为实验测得的流变应力; ε 为应变; f 为摩擦因数; r_0 为圆柱试样的初始半径; h_0 为圆柱试样的初始高度。

根据Ebrahimi和Najafizadeh理论, 摩擦因数 f 可以定义为^[34, 36]

$$f = \frac{(r/h)b}{(4/\sqrt{3}) - (2b/3\sqrt{3})} \quad (12)$$

式中: b 为鼓肚系数; h 为变形后的高度; r 为变形后圆柱的平均半径。

鼓肚系数 b 、变形后圆柱的顶部半径 r_T 、变形后圆柱的平均半径 r 可根据以下公式计算^[35]

$$b = 4 \frac{(r_M - r_T)}{r} \frac{h}{(h_0 - h)} \quad (13)$$

$$r_T = \sqrt{3 \frac{h_0}{h} r_0^2 - 2_M^2} \quad (14)$$

$$r = r_0 \sqrt{\frac{h_0}{h}} \quad (15)$$

式中: r_M 为变形后圆柱体的最大半径。

式(11)~(15)中的参数示意图如图5所示, 根据上述公式可对压缩真应力-真应变曲线进行摩擦修正。

2.3.2 温度变化修正

图6所示为圆柱体试样表面焊接的热电偶实际测量的温度变化曲线。由图6可以看出, 当应变速

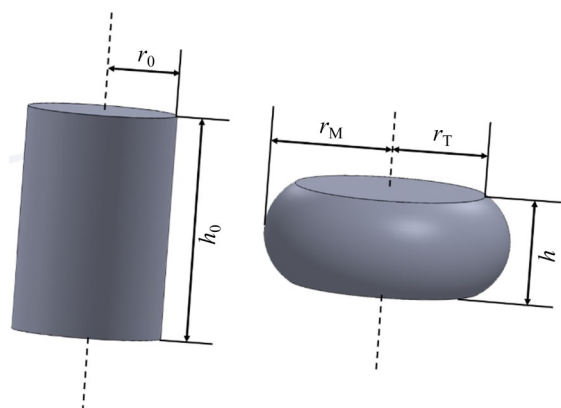


图5 式(11)~(15)中参数的示意图

Fig. 5 Schematic representation of parameters in Equations (11)–(15)

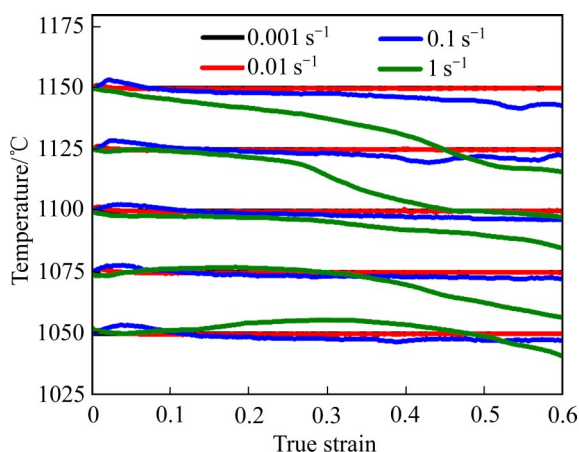


图6 试样在压缩过程中的温度变化曲线

Fig. 6 Temperature change curves of specimens during compression

率为 0.001 s^{-1} 和 0.01 s^{-1} 时,在压缩过程中试样的实际温度能稳定在设定值。当应变速率为 0.1 s^{-1} 时,在压缩过程中试样的真应变达到0.35后,其实际温度略低于设定值,设定的压缩温度为 $1125 \text{ }^{\circ}\text{C}$ 和 $1150 \text{ }^{\circ}\text{C}$ 时更为明显。当应变速率为 1 s^{-1} 时,在压缩过程中试样的真应变达到0.2~0.25后,实际温度出现了持续下降的现象,这是由于热压缩过程中应变速率较大导致Gleeble系统未能及时回调温度。

鉴于圆柱体试样的尺寸较小,在热压缩过程中试样内部不易形成明显的温度梯度,所以假设圆柱体内部的温度均匀分布,用热电偶测定的试样表面温度表示试样的温度分布情况。根据图6中的实际测量温度,对 $\ln \sigma$ 和 $1/T$ 进行线性插值拟合,可以对不同应变下的应力进行修正,其公式如下^[37-38]:

$$\dot{\varepsilon} \exp\left(\frac{Q}{RT}\right) = A_1 \sigma^{n_1} \quad (16)$$

式中: R 为摩尔气体常数; Q 为变形热激活能; A_1 和 n_1 为材料常数。

2.3.3 应变补偿修正

根据 Arrhenius 函数的定义及公式(9),可将应力值 σ 表示成 Z 函数的参数,其公式如下:

$$\sigma = \frac{1}{\alpha} \ln \left\{ \left(\frac{Z}{A} \right)^{1/n} + \left[\left(\frac{Z}{A} \right)^{1/n} + 1 \right]^{1/2} \right\} \quad (17)$$

在真应变0.05~0.65之间以0.05为间隔,确定其所对应的应力值,采用与计算本构方程相同的线性回归方法,求解出各个应变条件下对应的材料参数(n 、 $\ln A$ 、 α 、 Q),分别进行5阶多项式拟合,计算真应变在0.05~0.65间所对应的经应变补偿修正后的应力值。

分别通过摩擦、实际温度效应和应变补偿对流变应力-应变曲线进行修正,图7所示为流变曲线实测结果和预测结果间的对比。由图7可以看出,当应变速率较低时,预测曲线和实测曲线吻合度较高;当应变速率较高时,尤其是应变速率达到 1 s^{-1} ,预测曲线和实测曲线的吻合度下降;在 $1050 \sim 1150 \text{ }^{\circ}\text{C}$ 、 $0.001 \sim 1 \text{ s}^{-1}$ 的变形条件下,随着应变的增加,流变应力值会先升高到一个峰值,然后逐渐降低,最后趋于平稳状态。在 $1125 \text{ }^{\circ}\text{C}$ 、 1 s^{-1} 及 $1150 \text{ }^{\circ}\text{C}$ 、 0.1 s^{-1} 和 $1150 \text{ }^{\circ}\text{C}$ 、 1 s^{-1} 条件下,修正后的流变曲线与实验测得的流变曲线相差相对较大。

2.4 本构方程的修正及验证

综合考虑上述三种修正方式,分别计算摩擦修正、温度变化修正、应变补偿修正下材料的各个参数(α 、 n 、 Q 、 $\ln A$),并进行插值线性拟合,再进行六次多项式拟合,拟合曲线如图8所示。计算得到材料参数与应变之间的关系式如下。

$\alpha - \varepsilon$:

$$\alpha(\varepsilon) = -0.17791\varepsilon^6 - 0.02305\varepsilon^5 + 0.43349\varepsilon^4 - 0.40943\varepsilon^3 + 0.16095\varepsilon^2 - 0.02383\varepsilon + 0.00738 \quad (18)$$

$n - \varepsilon$:

$$n(\varepsilon) = 322.11832\varepsilon^6 - 696.7663\varepsilon^5 + 599.38638\varepsilon^4 - 258.3382\varepsilon^3 + 57.443\varepsilon^2 - 6.00792\varepsilon + 2.54416 \quad (19)$$

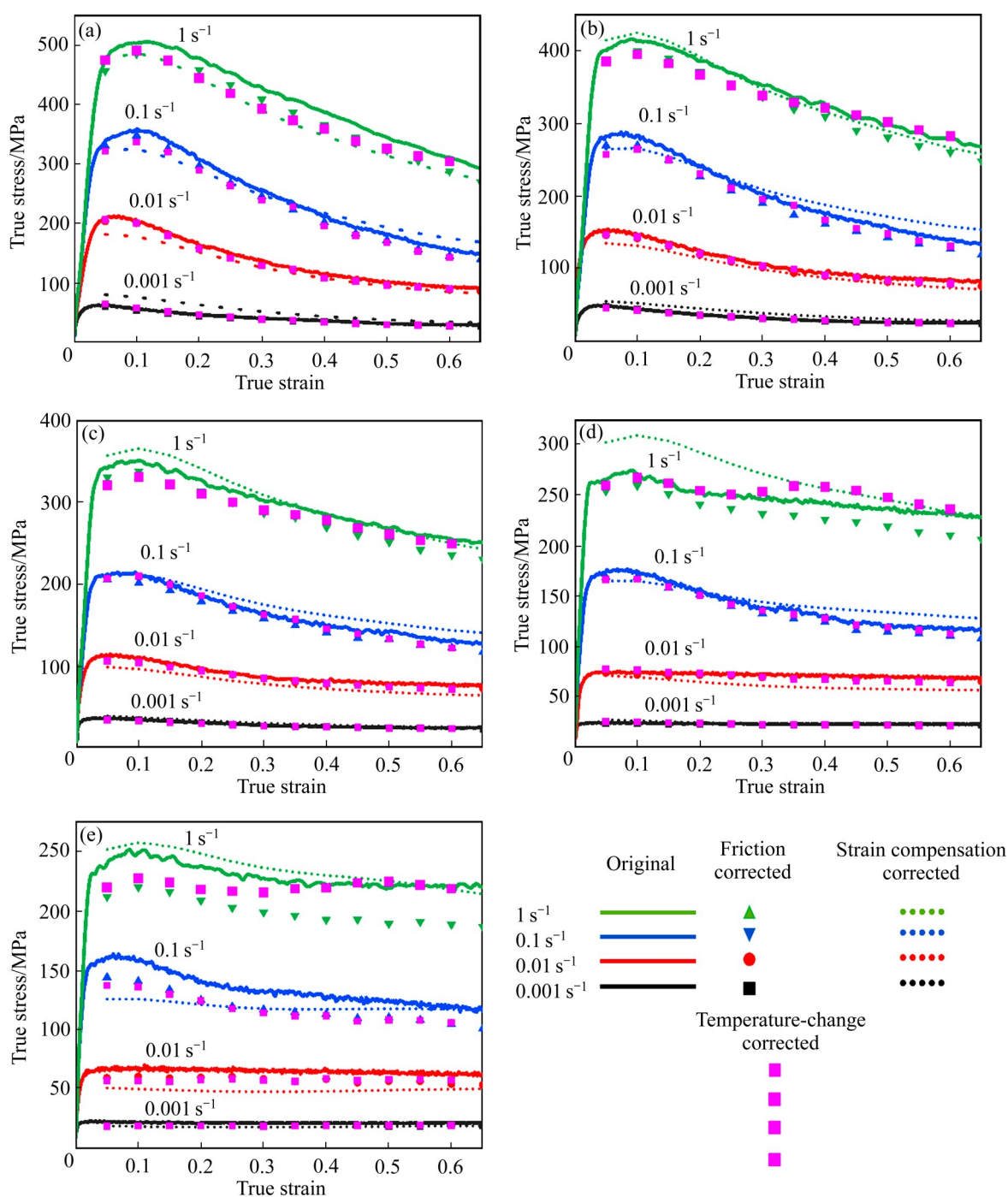


图7 不同压缩温度下的实验流变曲线和预测流变曲线的对比

Fig. 7 Comparison of experimental and predicted flow curves at different compression temperatures: (a) 1050 °C ; (b) 1075 °C ; (c) 1100 °C ; (d) 1125 °C ; (e) 1150 °C

$$\begin{aligned}
 Q-\varepsilon: \\
 Q(\varepsilon) = & -44344.89919\varepsilon^6 + 102087.99509\varepsilon^5 - \\
 & 91335.02591\varepsilon^4 + 41710.27311\varepsilon^3 - \\
 & 10398.08668\varepsilon^2 + 632.77099\varepsilon + 526.06196 \quad (20) \\
 \ln A - \varepsilon: \\
 \ln A(\varepsilon) = & -6242.80573\varepsilon^6 + 13293.88233\varepsilon^5 -
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 & 11037.268\varepsilon^4 + 4655.53929\varepsilon^3 - 1076.6386\varepsilon^2 + \\
 & 70.91107\varepsilon + 41.9263 \quad (21)
 \end{aligned}$$

由式(1)、(4)可知, 当应变速率 $\dot{\varepsilon}$ 、温度 T 一定时, 将各个含应变的材料参数代入式(4)中可得关于应力和应变之间的本构方程:

$$\ln \dot{\varepsilon} = \ln A(\varepsilon) + n(\varepsilon) \cdot \ln [\sinh(\alpha(\varepsilon) \cdot \sigma)] - \frac{Q(\varepsilon)}{RT} \quad (22)$$

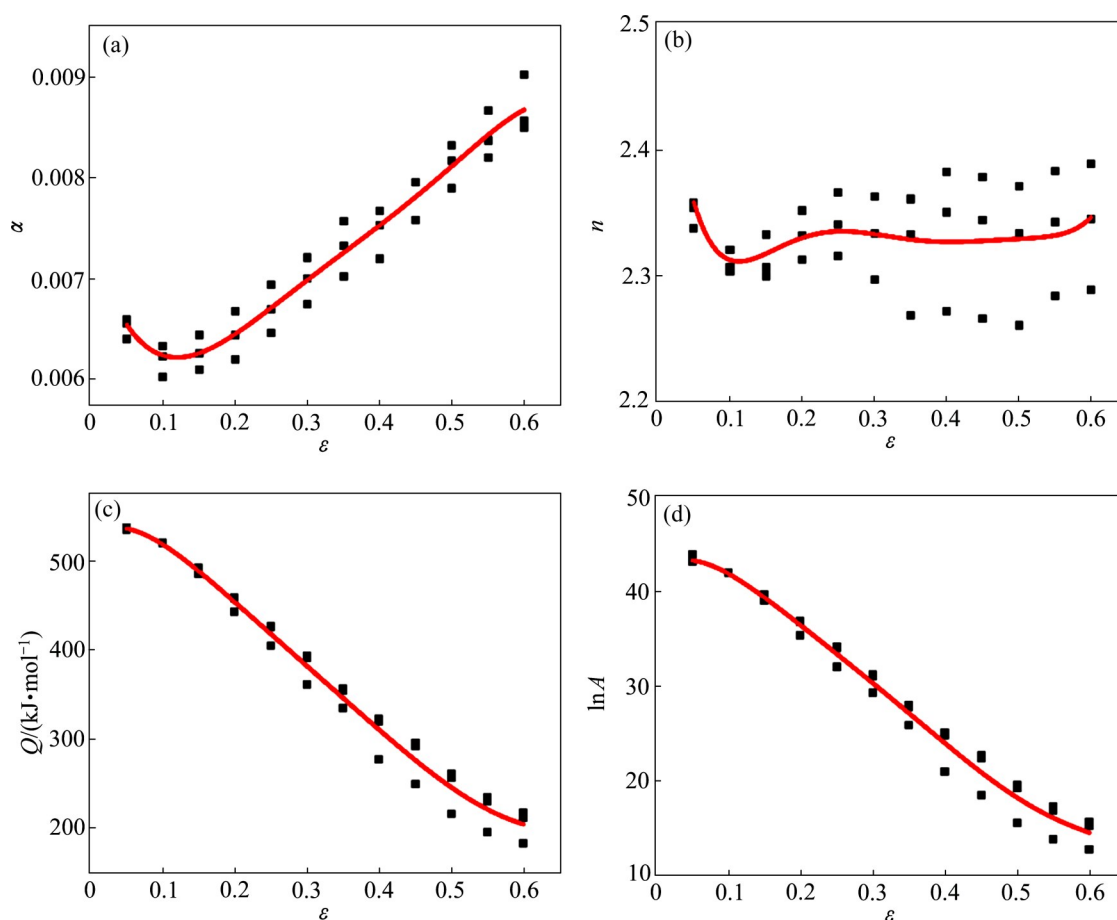


图8 各个材料参数(α 、 n 、 Q 、 $\ln A$)与真应变的关系

Fig. 8 Relationships between various material parameters and true strain: (a) α – ε ; (b) n – ε ; (c) Q – ε ; (d) $\ln A$ – ε

$$\dot{\varepsilon} = \exp[\ln A(\varepsilon)] [\sinh(\alpha(\varepsilon) \cdot \sigma)]^{n(\varepsilon)} \exp\left[-\frac{Q(\varepsilon)}{RT}\right] \quad (23)$$

因此, 可以计算出综合考虑摩擦修正、温度变化修正、应变补偿修正的本构方程为:

$$\dot{\varepsilon} = 3.756 \times 10^{18} [\sinh(0.00629\sigma)]^{2.3384} \exp\left(-\frac{529325}{RT}\right) \quad (24)$$

将上述得到的模型用于预测不同变形条件下的流变应力值, 流变应力预测值与实验值对比如图9所示。由图9可以看出, 流变应力预测值与实验值吻合相对较好。

为了更好地评估修正前后所构建本构方程的预测能力, 引入两个统计参数, 即相关系数 R 和平均相对误差绝对值 $AARE(E_{AARE})$, 计算方法如下^[39]:

$$R = \frac{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})(y_i - \bar{y})}{\sqrt{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2 \sum_{i=1}^n (y_i - \bar{y})^2}} \quad (25)$$

$$E_{AARE} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \left| \frac{y_i - x_i}{y_i} \right| \times 100\% \quad (26)$$

式中: y_i 为应力实验值; x_i 为应力预测值; N 为统计数据样本数。

图10所示为利用峰值应力获得的修正前后本构方程反推计算的应力值与实测应力值的对比图。由图10可以看出, 两者的相对系数 R^2 相差不大, 均约为0.881。但相对于修正前本构方程的预测能力(37.31%), 修正后本构方程的 E_{AARE} 明显降低(33.29%)。通常而言, E_{AARE} 越小越好, 相对系数 R 值越大越好。因此, 综合摩擦修正、温度变化修正和应变补偿修正的本构方程更能精确地预测应力-应变曲线。

图11所示为根据综合考虑摩擦修正、温度变化修正、应变补偿修正后的材料各个参数与应变间关系(见式(18)~(21))计算的应力预测值和实测值对比图。由图11可以看出, 相关系数为 $R^2=0.98291$,

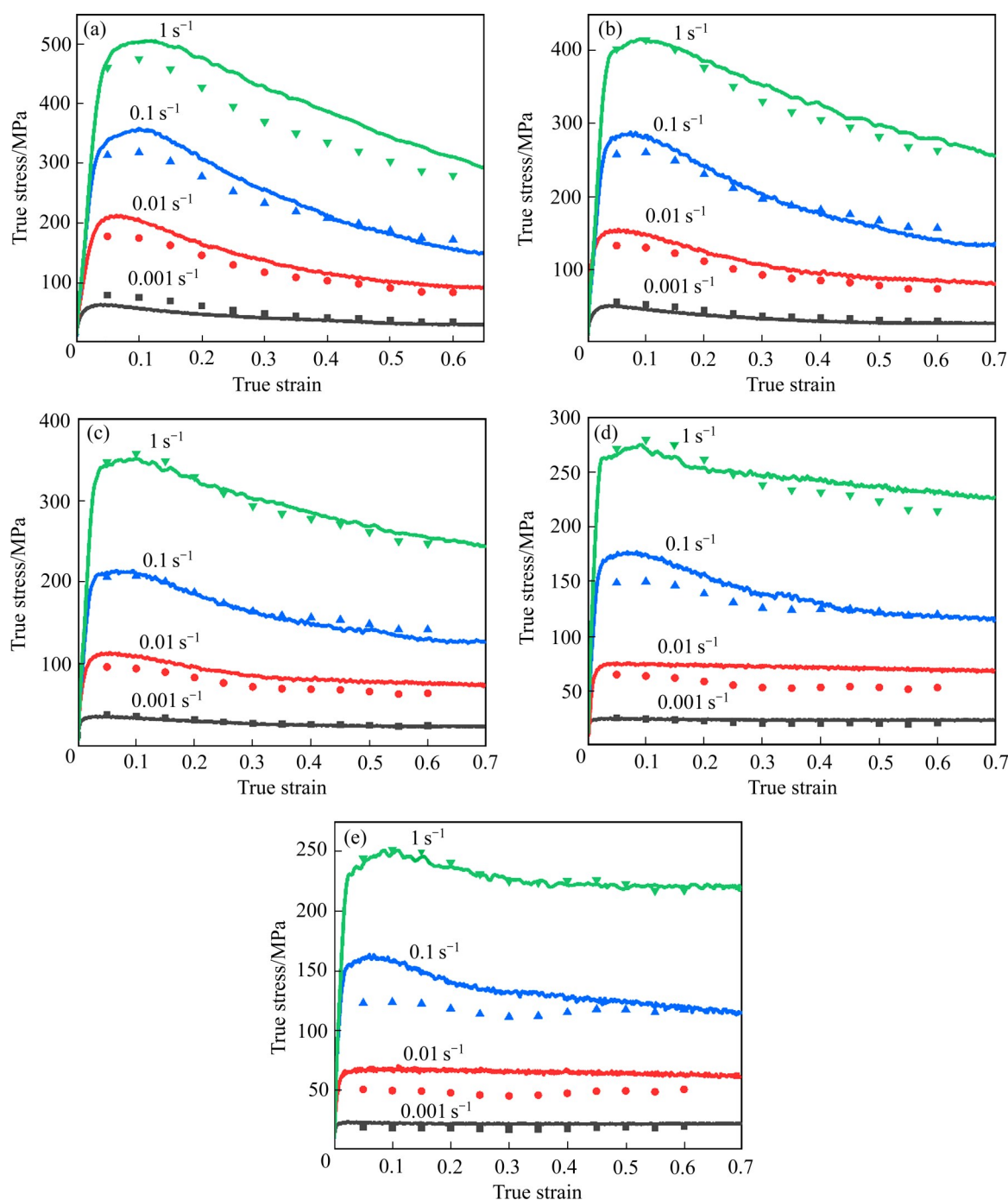


图9 综合考虑摩擦修正、温度变化修正、应变补偿修正的流变应力预测值与实验值的对比

Fig. 9 Comparison of predicted and experimental values of corrected flow stresses considering friction, temperature change and strain compensation: (a) 1050 °C; (b) 1075 °C; (c) 1100 °C; (d) 1125 °C; (e) 1150 °C

E_{AARE} 值为9.45%, 表明应力预测值与实验值较为吻合, 进一步说明修正后的本构方程能够很好地反映热变形过程中的流变行为。

2.5 构建热加工图

基于动态材料模型(DMM)^[32,40]建立的热加工图

是优化热加工工艺参数的一种有效途径, 已成功应用于多种金属材料热加工窗口的优化。

材料在一定应力下的应变速率敏感指数 m 可以表示为^[41]

$$m = \frac{dJ}{dG} = \frac{\partial \sigma}{\partial \dot{\epsilon}} = \left| \frac{\partial (\log \sigma)}{\partial \log \dot{\epsilon}} \right|_{\epsilon, T} \quad (27)$$

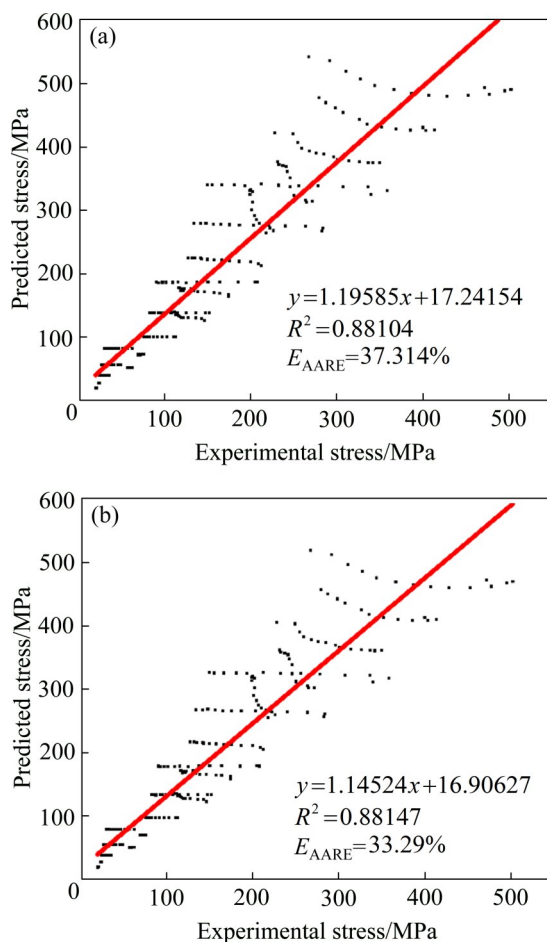


图10 利用峰值应力获得的修正前、后本构方程反推计算的应力值与实测应力值的对比

Fig. 10 Comparison of experimental stress values and calculated stress values obtained by uncorrected constitutive equation(a) and corrected constitutive equation from peak stresses(b)

根据DMM模型, 应变速率敏感因子 m 与能量耗散因子 η 之间的关系可以表示为^[42]:

$$\eta = \frac{2m}{m+1} \quad (28)$$

图12所示为不同变形条件下应变量为0.1~0.6时的功率耗散图。由图12可以看出, 随应变从0.1增加到0.6, 能量耗散因子0.8的区域从(1060 °C, 0.001 s⁻¹)逐渐扩大至(1125 °C, 0.001 s⁻¹); 能耗因子越高或者高能耗因子覆盖面积越大, 说明合金的热加工性能越好。

热加工的失稳参数 $\zeta(\dot{\epsilon})$ 可以表示为^[42]:

$$\zeta(\dot{\epsilon}) = \frac{\partial \ln \left(\frac{m}{m+1} \right)}{\partial \ln \dot{\epsilon}} + m \quad (29)$$

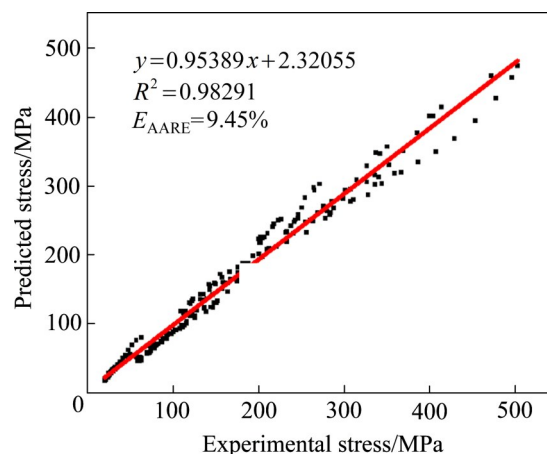


图11 综合考虑摩擦修正、温度变化修正、应变补偿修正后的应力预测值和实测值的对比

Fig. 11 Comparison of experimental stress values and predicted stress values considering friction correction, temperature change correction and strain compensation correction

式中: $\zeta(\dot{\epsilon}) < 0$ 的区域为热变形流变失稳区。

图13所示为热挤压态镍基粉末高温合金在不同应变量下的热加工图, 等高线上的数值代表能量耗散因子 η , 红色阴影部分为失稳区。由图13可以看出, 当真应变为0.1时, 失稳区为1050~1060 °C、 $10^{-2.0} \sim 10^{-0.9}$ s⁻¹和1115~1150 °C、 $10^{-1.2} \sim 1$ s⁻¹; 当真应变为0.2, 失稳区为1120~1140 °C、 $10^{-0.5} \sim 1$ s⁻¹; 安全区为1075~1150 °C、 $10^{-3} \sim 10^{-1.5}$ s⁻¹。失稳区主要集中于低温中高应变速率和高温高应变速率。随应变量的增加, 高温高应变速率下的失稳区逐渐减小, 直至消失。影响流变失稳的因素包括孔洞、绝热剪切带、沿晶界和PPB开裂等, 而且变形条件不同失稳形式通常也不一样, 如在低温和高应变速率下易产生孔洞和绝热剪切带, 而在高温和低应变速率下容易发生楔形裂纹^[22, 43]。

3 显微组织演变

图14所示为挤压态新型镍基粉末高温合金的金相照片和SEM像。由图14可以看出, 挤压态合金的晶粒组织较为均匀, 平均晶粒尺寸为8.6 μm, 且致密性好, 没有明显的原始颗粒边界(PPB)和热诱导孔洞(TIP); 在晶界上分布着尺寸较为均匀的

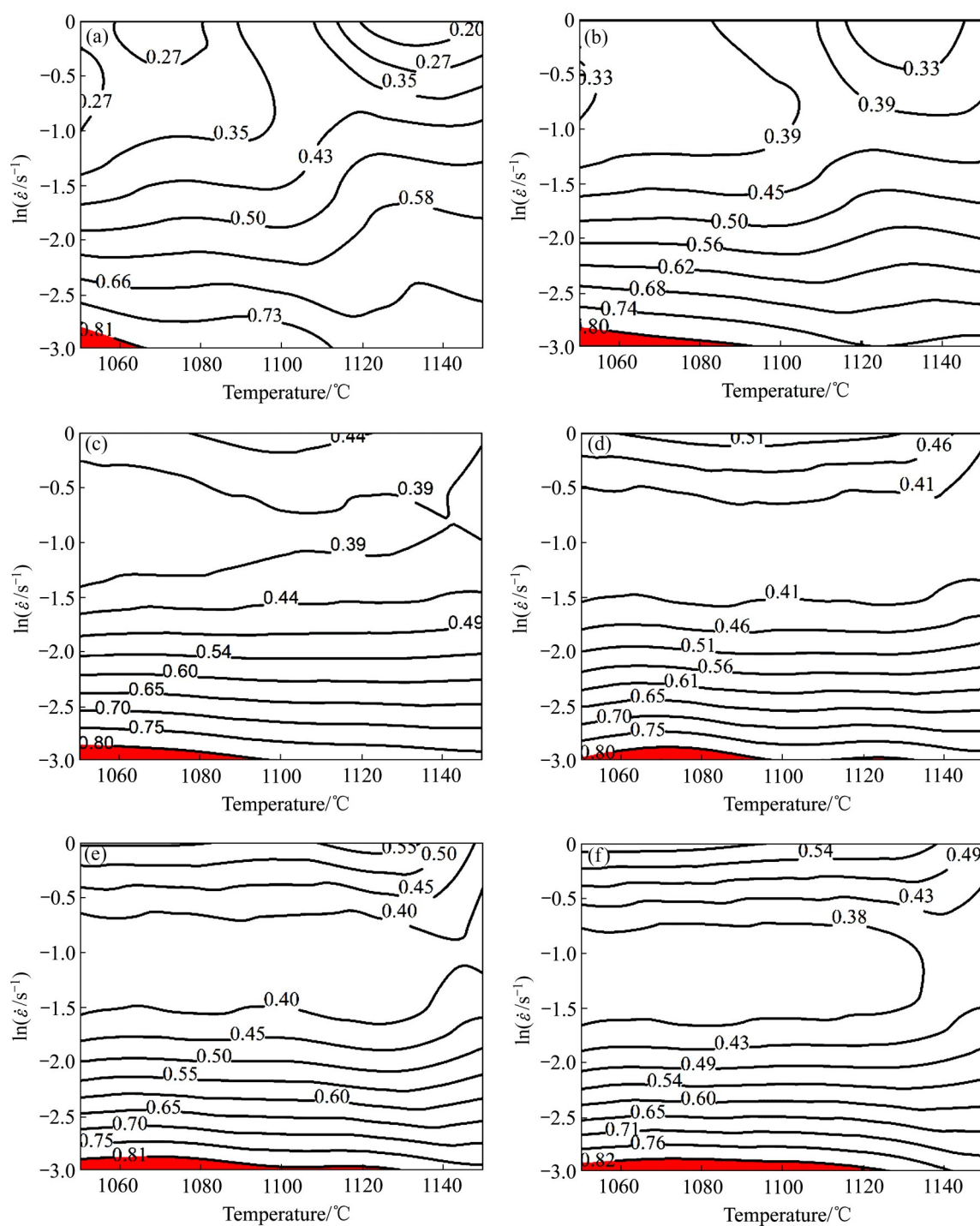


图 12 不同应变量的功率耗散图

Fig. 12 Power dissipation diagrams under various strains: (a) $\varepsilon=0.1$; (b) $\varepsilon=0.2$; (c) $\varepsilon=0.3$; (d) $\varepsilon=0.4$; (e) $\varepsilon=0.5$; (f) $\varepsilon=0.6$

γ' 相, γ' 相的平均尺寸约为 $4\ \mu\text{m}$ 。均匀细小的晶粒组织可以提升材料的塑韧性, 这会显著提高其的热加工性能。

图 15 所示为试样在失稳区 $1050\sim 1060\ ^\circ\text{C}$ 、 $10^{-2.0}\sim 10^{-0.9}\ \text{s}^{-1}$, $1115\sim 1150\ ^\circ\text{C}$ 、 $10^{-1.2}\sim 1\ \text{s}^{-1}$ 及安全区 $1075\sim 1150\ ^\circ\text{C}$ 、 $10^{-3}\sim 10^{-1.5}\ \text{s}^{-1}$ 的热变形组织, 其

中图 15(a)、(b)、(c) 中的试样处于失稳区, 图 15(d) 中的试样处于安全区。如图 15(a) 和 (b) 所示, 在失稳区内变形时, 试样出现了应力集中所导致的组织不均匀区域; 在应变速率较高时, 材料在变形过程中容易产生应力集中, 易造成明显的剪切变形, 从而在试样内部形成绝热剪切带。如图 15(c) 所示,

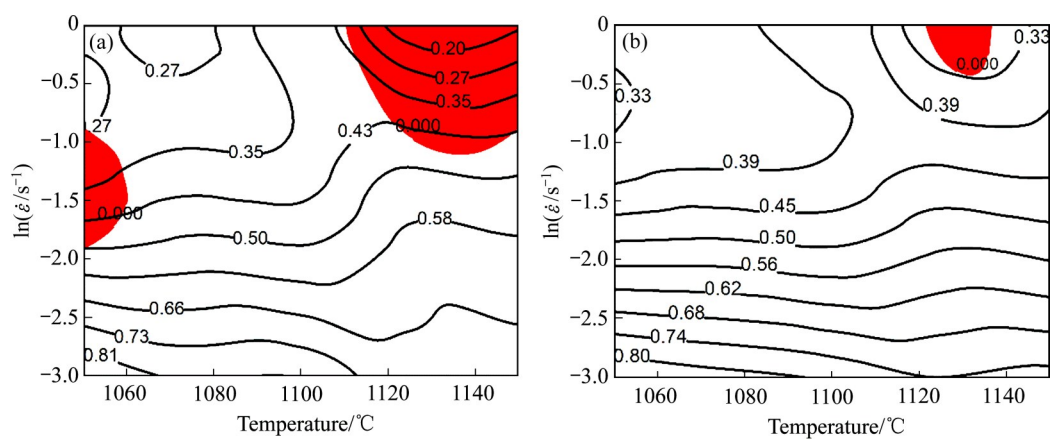


图 13 不同应变量下的热加工图

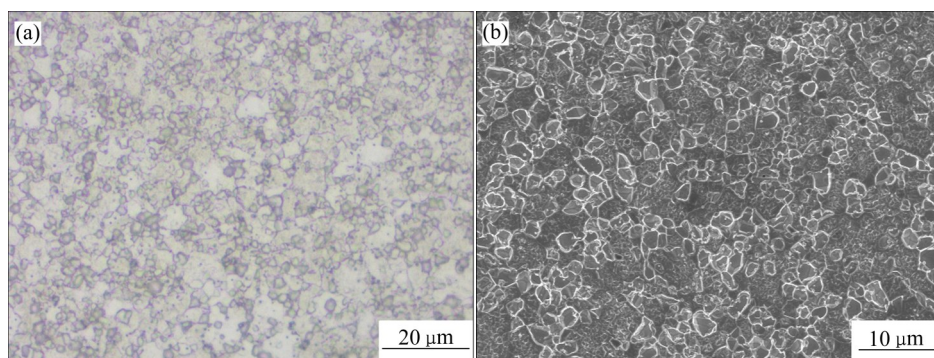
Fig. 13 Hot processing maps under different strains: (a) $\varepsilon=0.1$; (b) $\varepsilon=0.2$ 

图 14 挤压态镍基粉末高温合金的显微组织

Fig. 14 Microstructure of extruded nickel-base powder superalloy: (a) Metallograph; (b) SEM image

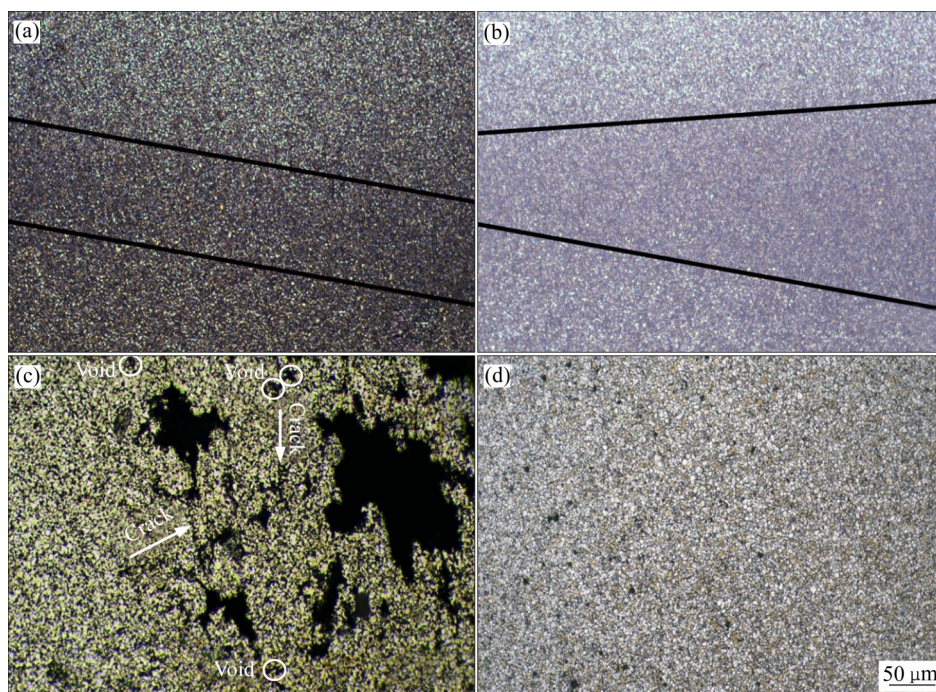


图 15 失稳区试样的热变形组织

Fig. 15 Thermal deformation microstructures of samples in instability zone ((a), (b), (c)) and in safe zone ((d)): (a) 1050 °C, 0.1 s⁻¹; (b) 1125 °C, 1 s⁻¹; (c) 1150 °C, 1 s⁻¹; (d) 1100 °C, 0.01 s⁻¹

材料在高温高应变速率下变形时, 出现了沿晶裂纹和孔洞。因此, 在失稳区变形, 观察到的绝热剪切带、孔洞、沿晶界开裂等是该区域流变失稳的主要因素^[44]。如图 15(d)所示, 在安全区内变形时, 试样的显微组织为均匀细小的等轴晶粒, 表明已经发生了完全 DRX, 有利于变形的继续。总之, 该挤压态新型镍基粉末高温合金在失稳区及安全区的变形组织与基于 DMM 所建立的热加工图较为吻合, 可为热加工工艺的优化提供理论依据。

图 16 所示为不同变形条件下压缩后试样中心部位的金相组织。由图 16 可以看出, 在较低变形温度与较高应变速率条件下, 晶粒组织较为细小, 且 γ' 相含量多; 随着变形温度升高及应变速率的降

低, 晶粒尺寸逐渐变大, 且 γ' 相含量减少。尤其是当应变速率为 0.001 s^{-1} 时, 不同温度下压缩后的试样均展现出粗大的晶粒组织(见图 16)。晶粒粗化会致使晶粒间的变形协调性恶化、晶界滑移受阻, 三叉晶界处较容易产生局部应力集中和楔形裂纹^[43, 45]。

图 17 所示为不同变形条件下压缩后试样中心部位的 SEM 像。由图 17 可进一步证实: 在较低变形温度与较高应变速率条件下, γ' 相含量多且晶粒组织细小; 随着变形温度升高及应变速率的降低, γ' 相含量逐渐降低且晶粒尺寸逐渐增大。在较低变形温度与较高应变速率条件下, 压缩变形后的试样中仍存在较多的粗大 γ' 相, 这些粗大的 γ' 相有利于

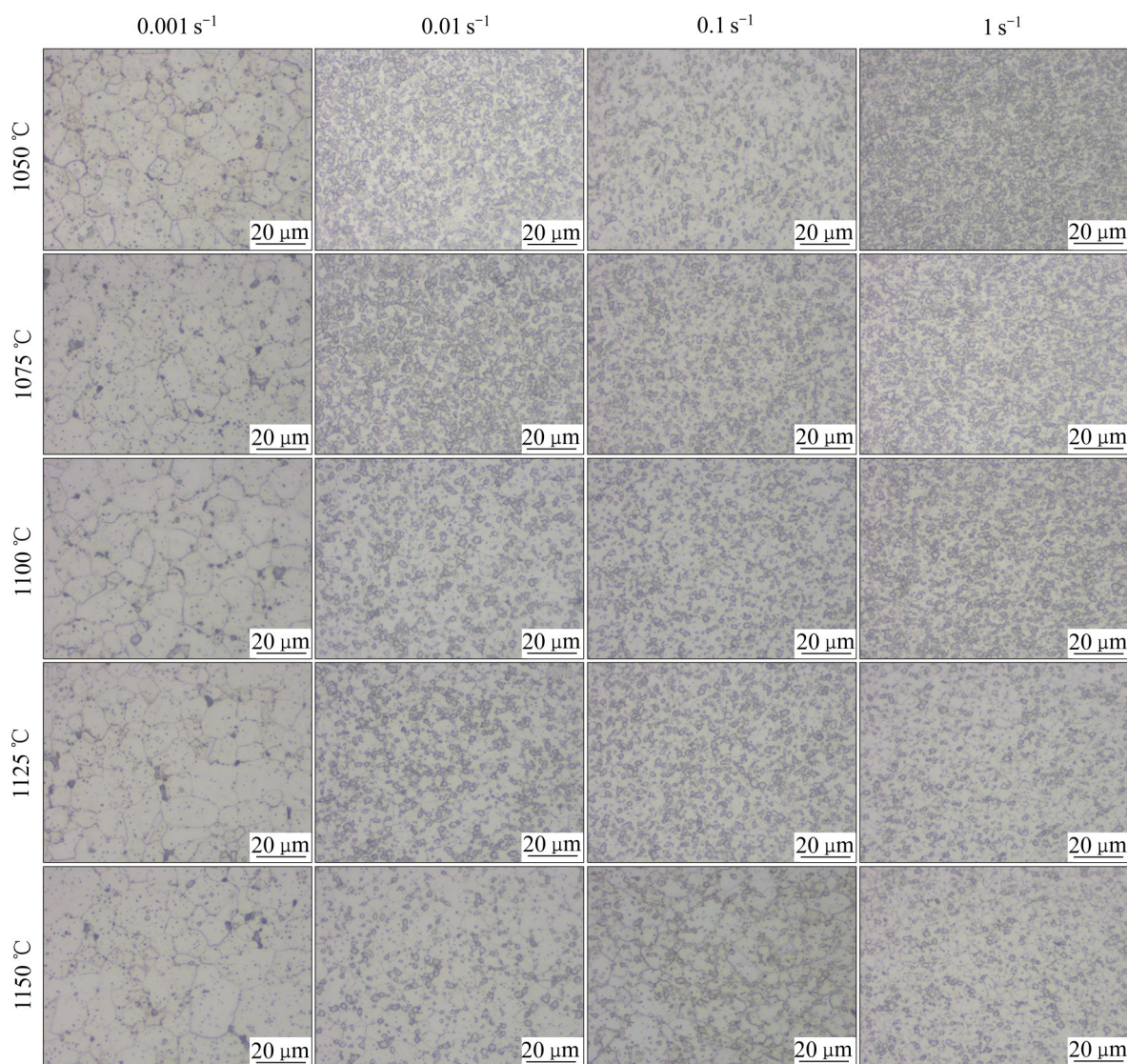


图 16 不同变形条件下压缩试样中心部位的金相显微组织

Fig. 16 Metallographic microstructures of compressed specimens under different deformation conditions

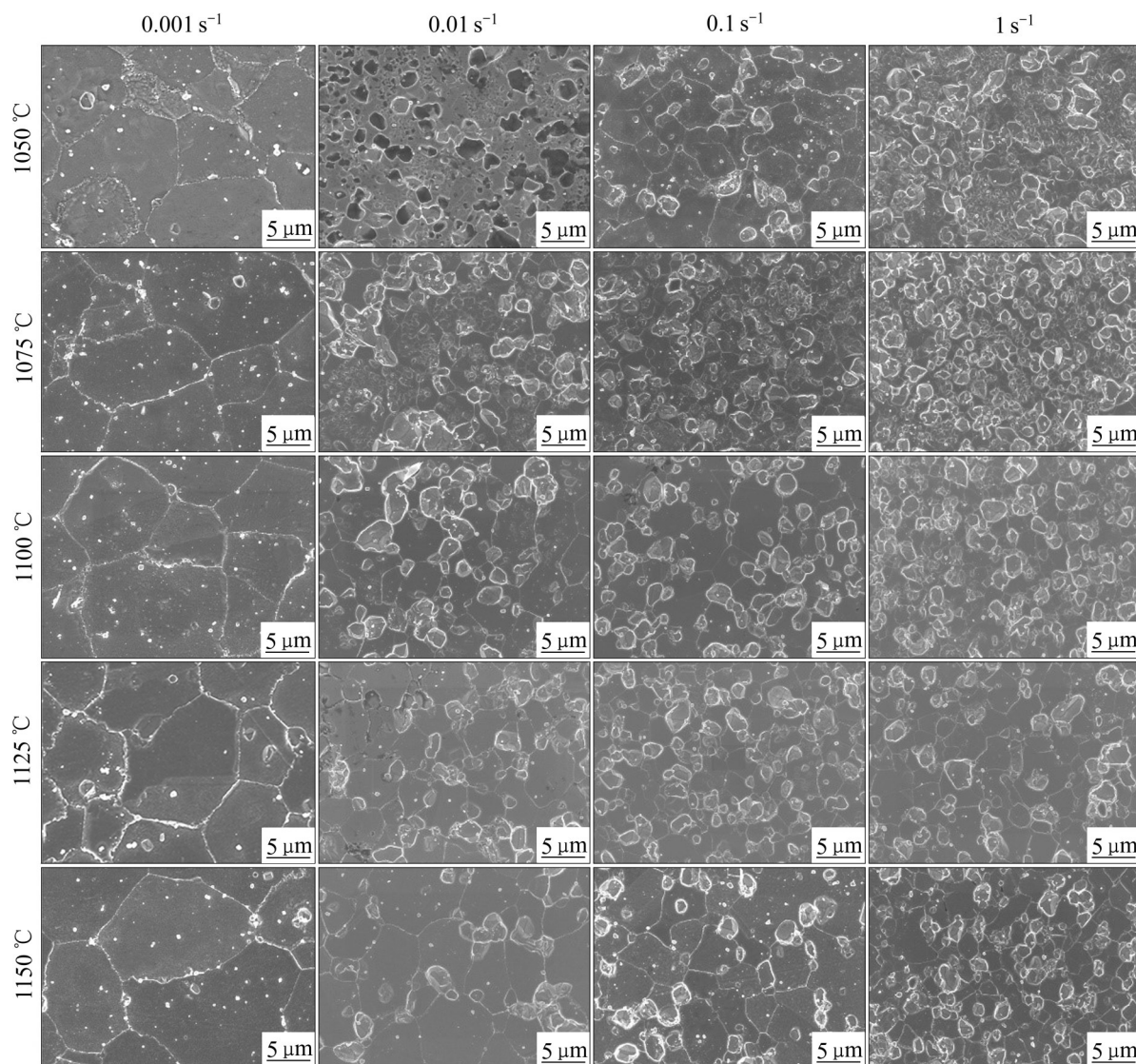


图 17 不同变形条件下压缩试样中心部位的 SEM 像

Fig. 17 SEM images of compressed specimens under different deformation conditions

激发第二相诱发再结晶 (Particle stimulated nucleation, PSN) 机制, 从而细化晶粒组织^[43]。

当压缩变形温度低于 1100 °C、应变速率为 0.01~1 s⁻¹ 时, 变形温度低于 γ' 相的溶解温度, 大量 γ' 相对晶界钉扎的作用较强, 从而延缓晶界迁移、限制晶粒长大, 因此在此变形条件下, 随变形温度的升高和应变速率的降低, 再结晶晶粒尺寸并未明显长大; 而压缩变形温度高于 1100 °C、应变速率为 0.01~1 s⁻¹ 时, 再结晶晶粒尺寸随变形温度升高和应变速率降低而明显增大。这是由于 γ' 相逐渐溶解进入基体, 第二相对晶界的钉扎作用降低, 晶界迁移的阻力减小, 再结晶晶粒更容易长大^[45-47]。

4 结论

1) 挤压态新型镍基粉末高温合金热压缩变形时, 其流变应力对热压缩变形温度和应变速率较为敏感, 且流变曲线呈现出明显的动态再结晶特征。基于 Arrhenius 方程, 计算了该合金的热激活能, $Q = 536.36$ kJ/mol, 建立了其本构方程: $\dot{\epsilon} = 7.136 \times 10^{18} [\sinh(0.006\sigma)]^{2.352} \exp\left(-\frac{536360}{RT}\right)$ 。

2) 采用综合摩擦修正、温度变化修正和应变补偿修正的方式, 建立了考虑应变率影响的流变应力六次多项式组模型及修正后本构方程, 并预测了不

同变形条件下的流变应力。流变应力预测值与实测值之间的相关系数 R^2 为0.98291、平均相对误差绝对值 E_{AARE} 为9.45%, 能很好地反映该合金在热变形过程中的流变行为。

3) 基于DMM建立了该合金的功率耗散图和热加工图。随应变从0.1增加到0.6, 能量耗散因子0.8的区域从(1060 °C, 0.001 s⁻¹)逐渐扩大至(1125 °C, 0.001 s⁻¹); 随应变的增加, 在高应变速率变形区域的能量耗散因子逐渐升高, 低应变速率下高能量耗散因子的区域面积逐渐扩大。根据热加工图, 确定了该合金的适宜加工变形参数, 即变形温度为1075~1150 °C, 应变速率为10⁻³~10^{-1.5} s⁻¹。但当应变速率为0.001 s⁻¹时, 不同温度下变形后的晶粒组织均较为粗大, γ' 相溶入基体。

REFERENCES

- [1] 谭建均, 杨金龙, 龙安平, 等. 制粉方式对FGH97合金组织和低周疲劳性能的影响[J]. 稀有金属, 2019, 43(1): 52–60.
TAN Jian-jun, YANG Jin-long, LONG An-ping, et al. Microstructure and low cycle fatigue property of FGH97 alloy with different atomization methods[J]. Rare Metals, 2019, 43(1): 52–60.
- [2] 吴凯西, 谭黎明, 何英杰, 等. 粉末高温合金 U720Li 的热加工行为[J]. 中国有色金属学报, 2019, 29(8): 1676–1683.
WU Kai-xi, TAN Li-ming, HE Ying-jie, et al. Hot deformation behavior of P/M superalloy U720Li[J]. The Chinese Journal of Nonferrous Metals, 2019, 29(8): 1676–1683.
- [3] 谭 钢, 李慧中, 王 岩, 等. 退火处理对新型Ni-Co-Cr基粉末高温合金微观组织与性能的影响[J]. 中国有色金属学报, 2020, 30(5): 1027–1037.
TAN Gang, LI Hui-zhong, WANG Yan, et al. Effect of annealing treatment on microstructure and properties of a new Ni-Co-Cr based powder superalloy[J]. The Chinese Journal of Nonferrous Metals, 2020, 30(5): 1027–1037.
- [4] NING Y, YAO Z, GUO H, et al. Investigation on hot deformation behavior of P/M Ni-base superalloy FGH96 by using processing maps[J]. Materials Science and Engineering A, 2010, 527(26): 6794–6799.
- [5] TAN G, LI H Z, WANG Y, et al. Hot working characteristics of HEXed PM nickel-based superalloy during hot compression[J]. Transactions of Nonferrous Metals Society of China, 2020, 30(10): 2709–2723.
- [6] XU W, ZHANG L W, GU S D, et al. Hot compressive deformation behavior and microstructure evolution of HIPed FGH96 superalloy[J]. Transactions of Nonferrous Metals Society of China, 2012, 22(1): 66–71.
- [7] TAN G, LI H Z, WANG Y, et al. Physical-based constitutive modeling of hot deformation in a hot-extruded powder metallurgy nickel-based superalloy[J]. Journal of Materials Engineering and Performance, 2021, 30(1): 794–804.
- [8] TAN G, LI H Z, WANG Y, et al. Effect of Zener-Hollomon parameter on microstructure evolution of a HEXed PM nickel-based superalloy[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2021, 874: 159889.
- [9] HE G, TAN L, LIU F, et al. Unraveling the formation mechanism of abnormally large grains in an advanced polycrystalline nickel base superalloy[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2017, 718: 405–413.
- [10] BUCKINGHAM R C, ARGYRAKIS C, HARDY M C, et al. The effect of strain distribution on microstructural developments during forging in a newly developed nickel base superalloy[J]. Materials Science and Engineering A, 2016, 654: 317–328.
- [11] WANG M, WANG W, LIU Z, et al. Hot workability integrating processing and activation energy maps of Inconel 740 superalloy[J]. Materials Today Communications, 2018, 14: 188–198.
- [12] TAN L, HE G, LI Y, et al. Flow behaviors and microstructural evolutions of a novel high-Co powder metallurgy superalloy during hot working[J]. Journal of Materials Processing Technology, 2018, 262: 221–231.
- [13] CAI J, LI F, LIU T, et al. Constitutive equations for elevated temperature flow stress of Ti-6Al-4V alloy considering the effect of strain[J]. Materials & Design, 2011, 32(3): 1144–1151.
- [14] SAMANTARAY D, PHANIRAJ C, MANDAL S, et al. Strain dependent rate equation to predict elevated temperature flow behavior of modified 9Cr-1Mo (P91) steel[J]. Materials Science and Engineering A, 2011, 528(3): 1071–1077.
- [15] TAN L, LI Y, HE G, et al. Optimized hot workability of a powder metallurgy nickel-base superalloy[J]. Materials Characterization, 2019, 147: 340–352.
- [16] ZHANG P, HU C, ZHU Q, et al. Hot compression deformation and constitutive modeling of GH4698 alloy[J]. Materials & Design (1980–2015), 2015, 65: 1153–1160.
- [17] WANG Y, SHAO W Z, ZHEN L, et al. Microstructure evolution during dynamic recrystallization of hot deformed superalloy 718[J]. Materials Science and Engineering A, 2008, 486(1/2): 321–332.
- [18] ZHANG H, ZHANG K, LU Z, et al. Hot deformation behavior and processing map of a γ' -hardened nickel-based superalloy[J]. Materials Science and Engineering A, 2014,

- 604: 1–8.
- [19] JIANG H, ZHANG Q, CHEN X, et al. Three types of Portevin-Le Chatelier effects: Experiment and modelling[J]. *Acta Materialia*, 2007, 55(7): 2219–2228.
- [20] SERAJZADEH S. Serrated flow during warm forming of low carbon steels[J]. *Materials Letters*, 2003, 57(29): 4515–4519.
- [21] BRUNI C, FORCELESE A, GABRIELLI F. Hot workability and models for flow stress of NIMONIC 115 Ni-base superalloy[J]. *Journal of Materials Processing Technology*, 2002, 125/126: 242–247.
- [22] 谢兴华, 姚泽坤, 宁永权, 等. FGH4096粉末高温合金的热变形行为[J]. *稀有金属材料与工程*, 2012, 41(1): 82–86.
XIE Xing-hua, YAO Ze-kun, NING Yong-quan, et al. Investigation on hot deformation behavior of P/M superalloy FGH4096[J]. *Rare Metal Materials and Engineering*, 2012, 41(1): 82–86.
- [23] NIE L, ZHANG L, ZHU Z, et al. Constitutive modeling of dynamic recrystallization kinetics and processing maps of solution and aging FGH96 superalloy[J]. *Journal of Materials Engineering and Performance*, 2013, 22(12): 3728–3734.
- [24] WU K, LIU G Q, HU B F, et al. Effect of processing parameters on hot compressive deformation behavior of a new Ni-Cr-Co based P/M superalloy[J]. *Materials Science and Engineering A*, 2011, 528(13/14): 4620–4629.
- [25] MOHAMADIZADEH A, ZAREI-HANZAKI A, ABEDI H R. Modified constitutive analysis and activation energy evolution of a low-density steel considering the effects of deformation parameters[J]. *Mechanics of Materials*, 2016, 95: 60–70.
- [26] GU Y, HARADA H, CUI C, et al. New Ni-Co-base disk superalloys with higher strength and creep resistance[J]. *Scripta Materialia*, 2006, 55(9): 815–818.
- [27] GAZDA A, ROTHOVA V, CERMAK J J I. Interdiffusion in pseudobinary sections of Ni_3Al -Co ternary system[J]. *Intermetallics*, 2002, 10(9): 859–864.
- [28] NA Y S, YEOM J T, PARK N K, et al. Simulation of microstructures for Alloy 718 blade forging using 3D FEM simulator[J]. *Journal of Materials Processing Technology*, 2003, 141(3): 337–342.
- [29] LIU P, ZHANG R, YUAN Y, et al. Hot deformation behavior and workability of a Ni-Co based superalloy[J]. *Journal of Alloys and Compounds*, 2020, 831: 154618.
- [30] GU Y, CUI C, YUAN Y, et al. Research progress in a high performance cast & wrought superalloy for turbine disc applications[J]. *Acta Metallurgica Sinica*, 2015, 51(10): 1191–1206.
- [31] WAN Z, HU L, SUN Y, et al. Hot deformation behavior and processing workability of a Ni-based alloy[J]. *Journal of Alloys and Compounds*, 2018, 769: 367–375.
- [32] PRASAD Y, GEGEL H, DORAIVELU S, et al. Modeling of dynamic material behavior in hot deformation: Forging of Ti-6242[J]. *Metallurgical Transactions A*, 1984, 15(10): 1883–1892.
- [33] ZENER C, HOLLOMON J H. Effect of strain rate upon plastic flow of steel[J]. *Journal of Applied Physics*, 1944, 15(1): 22–32.
- [34] EBRAHIMI R, NAJAFIZADEH A. A new method for evaluation of friction in bulk metal forming[J]. *Journal of Materials Processing Technology*, 2004, 152(2): 136–143.
- [35] GHOLAMZADEH A, KARIMI TAHERI A. The prediction of hot flow behavior of Al-6%Mg alloy[J]. *Mechanics Research Communications*, 2009, 36(2): 252–259.
- [36] HAN Y, QIAO G, SUN J, et al. A comparative study on constitutive relationship of as-cast 904L austenitic stainless steel during hot deformation based on Arrhenius-type and artificial neural network models[J]. *Computational Materials Science*, 2013, 67: 93–103.
- [37] JIANG H, LI L, DONG J, et al. Microstructure-based hot extrusion process control principles for nickel-base superalloy pipes[J]. *Progress in Natural Science: Materials International*, 2018, 28(3): 391–398.
- [38] KUMAR N, KUMAR S, RAJPUT S K, et al. Modelling of flow stress and prediction of workability by processing map for hot compression of 43CrNi steel[J]. *ISIJ International*, 2017, 57(3): 497–505.
- [39] ZHAO J, DING H, ZHAO W, et al. Modelling of the hot deformation behaviour of a titanium alloy using constitutive equations and artificial neural network[J]. *Computational Materials Science*, 2014, 92: 47–56.
- [40] TAN Y B, MA Y H, ZHAO F. Hot deformation behavior and constitutive modeling of fine grained Inconel 718 superalloy [J]. *Journal of Alloys and Compounds*, 2018, 741: 85–96.
- [41] ZHANG P, HU C, DING C G, et al. Plastic deformation behavior and processing maps of a Ni-based superalloy[J]. *Materials & Design (1980-2015)*, 2015, 65: 575–584.
- [42] SOMANI M, MURALEEDHARAN K, PRASAD Y, et al. Mechanical processing and microstructural control in hot working of hot isostatically pressed P/M IN-100 superalloy[J]. *Materials Science and Engineering A*, 1998, 245(1): 88–99.
- [43] LIU Y, NING Y, YAO Z, et al. Effect of true strains on processing map for isothermal compression of Ni-20.0Cr-2.5Ti-1.5Nb-1.0Al Ni-base superalloy[J]. *Journal of Alloys and Compounds*, 2014, 612: 56–63.
- [44] 吴凯, 刘国权, 胡本英, 等. 新型镍基粉末高温合金的热变形行为[J]. *稀有金属材料与工程*, 2011, 40(4): 645–649.

- WU Kai, LIU Guo-quan, HU Ben-fu, et al. Hot deformation behavior of a new type nickel-based P/M superalloy[J]. *Rare Metal Materials and Engineering*, 2011, 40(4): 645–649.
- [45] HUANG K, LOGÉ R E. A review of dynamic recrystallization phenomena in metallic materials[J]. *Materials & Design*, 2016, 111: 548–574.
- [46] LI F, FU R, YIN F, et al. Impact of γ' ($\text{Ni}_3(\text{Al}, \text{Ti})$) phase on dynamic recrystallization of a Ni-based disk superalloy during isothermal compression[J]. *Journal of Alloys and Compounds*, 2017, 693: 1076–1082.
- [47] CHARPAGNE M A, BILLOT T, FRANCHET J M, et al. Heteroepitaxial recrystallization: A new mechanism discovered in a polycrystalline γ - γ' nickel based superalloy[J]. *Journal of Alloys and Compounds*, 2016, 688: 685–694.

Thermal deformation behavior of a new extruded nickel-base powder superalloy

REN Shuai, ZHANG Hua, YU Zi-chao, LIU Wei, LIU Zhi-ling, ZHOU Xin, HUANG Hai-liang,
ZHANG Shang-zhou, ZHU Li-long, JIANG Liang

(Institute for Advanced Studies in Precision Materials, Yantai University, Yantai 264010, China)

Abstract: Nickel-based powder superalloys have high deformation resistance, poor thermoplasticity, narrow hot working window, and are prone to crack and flow instability during hot working. In this paper, thermal compression experiments were carried out on the extruded novel nickel-base powder superalloy by Gleeble-3500 thermal simulator, where the compression temperature was 1050–1150 °C, the strain rate was 0.001–1 s⁻¹ and the true strain was 0.69. Based on the hyperbolic sinusoidal Arrhenius function, the thermal activation energy Q was calculated and the constitutive equation was built, then the stress-strain curve and constitutive equation were modified by combining friction, temperature change and strain compensation by polynomial fitting. The energy dissipation diagrams and hot processing maps were plotted to determine the suitable thermal processing temperature and strain rate. The results show that the thermal activation energy Q is 536.36 kJ/mol, and the alloy has good processing performances at the deformation temperature ranging from 1075 °C to 1150 °C and the strain rate ranging from 10⁻³ s⁻¹ to 10^{-1.5} s⁻¹, but the grain microstructure is coarse and the γ' phase dissolves into the matrix at the strain rate of 0.001 s⁻¹.

Key words: extruded nickel-base powder superalloy; thermal deformation behavior; constitutive equation; stress-strain curve correction; hot processing map

Foundation item: Project(2021) supported by the Yantai High-end Talent Introduction “Double Hundred Plan”, China; Project(2019) supported by the Talent Training Program for Shandong Province Higher Educational Youth Innovative Teams, China; Project(ZR2019MEM012) supported by the Natural Science Foundation of Shandong Province, China; Project(2021) supported by the Taishan Scholars Program of Shandong Province, China; Project(2019JZZY010325) supported by the Major Scientific and Technological Innovation Project in Shandong Province, China; Project(J2019-VI-0023-0140) supported by the National Science and Technology Major Project of China

Received date: 2021-09-15; **Accepted date:** 2021-10-26

Corresponding author: ZHANG Hua; Tel: +86-535-6902637; E-mail: zhanghua@ytu.edu.cn

(编辑 何学锋)