

Ti₃Al 合金中 α_2 相的比例及分布特征 对其力学性能的影响

罗倩^{1,2}, 李建崇^{1,2}, 朱郎平^{1,2}, 郝彦君^{3,4}, 刘金旭^{3,4}, 桑青青^{3,4}, 李树奎^{3,4}

(1. 北京航空材料研究院铸造钛合金技术中心, 北京 100095; 2. 北京市先进钛合金精密成型工程技术中心, 北京 100095; 3. 北京理工大学 材料科学与工程学院, 北京 100081; 4. 北京理工大学 爆炸科学与技术重点实验室, 北京 100081)

摘要: 目的 优化 Ti₃Al 合金的塑性, 促进此类合金的应用。方法 采用扫描电镜及分离式霍普金森压杆系统对 Ti₃Al 合金中 α_2 相的比例、形状及尺寸等微观组织进行观察及动态力学性能的测试, 并分析了组织变化对其动态力学性能的影响及影响机理。结果 经固溶热处理后, Ti-24Al-14Nb 合金中初生 α_2 相的相比比例从 47.5% 增加到 56.8%, α_2 相板条逐渐长大、变宽; 固溶+时效热处理后, 合金中鱼鳞状的初生 α_2 相向板条集束状的 α_2 相转变, 粗大的初生 α_2 相板条间析出大量细小的针叶状次生 α_2 相。B2 相中 Al 元素含量的下降, Al 元素与 B2 相的固溶强化作用减弱, 导致 B2 相的强度下降, 塑性提高。同时微观组织细化, 会增加合金中 α_2 相和 B2 相在压缩变形过程的变形协调性, 使得合金塑性明显提高。结论 固溶时效可以改善和提升 Ti₃Al 合金的塑性。

关键词: Ti₃Al 合金; 热处理; 微观组织特征; 动态力学性能

DOI: 10.3969/j.issn.1674-6457.2018.03.003

中图分类号: TG166.5 **文献标识码:** A **文章编号:** 1674-6457(2018)03-0012-06

Influences of Volume Fraction and Distribution Characteristics of α_2 Phase in Ti₃Al Alloy on Mechanical Properties

LUO Qian^{1,2}, LI Jian-chong^{1,2}, ZHU Lang-ping^{1,2}, HAO Yan-jun^{3,4}, LIU Jin-xu^{3,4}, SANG Qing-qing^{3,4}, LI Shu-kui^{3,4}

(1. Casting Center of Titanium Alloys Technology, Beijing Institute of Aeronautical Materials, Beijing 100095, China; 2. Beijing Engineering Research Center of Advanced Titanium Alloy Precision Forming Technology, Beijing 100095, China; 3. Materials Science and Engineering College, Beijing Institute of Technology, Beijing 100081, China; 4. State Key Laboratory of Explosion Science and Technology, Beijing Institute of Technology, Beijing 100081, China)

ABSTRACT: The paper aims to optimize the plasticity and promote the application of Ti₃Al alloy. Microstructures such as proportion, shape and dimension of α_2 phase in Ti₃Al alloy were observed and the dynamic mechanical properties were tested with scanning electron microscope and Split Hopkinson Pressure Bars System. Influences of structural change on dynamic mechanical properties and the influence mechanism were analyzed. After solid solution heat treatment, the phase proportion of primary α_2 phase in Ti-24Al-14Nb alloy increased from 47.5% to 56.8%; plate of α_2 phase grew up and became wider; after solid solution + aging heat treatment, plate of cataphracted primary α_2 phase in alloy changed to plate bundling shape; a large number of tiny needle shaped secondary α_2 phase separated from large plate of primary α_2 phase. Al element in B2 phase decreased. The solution strengthening effect between Al element and B2 phase was weakened, resulting strength decrease of B2

收稿日期: 2018-03-28

基金项目: 国家自然科学基金(51571033)

作者简介: 罗倩(1988—), 女, 硕士, 工程师, 主要研究方向为铸造钛合金。

通讯作者: 刘金旭(1982—), 男, 博士, 教授, 主要研究方向为金属材料。

phase and increase of plasticity. Meanwhile, refinement of microstructure would increase the transformation harmony of α_2 phase and B2 phase in alloy during compressive deformation. Solid solution and aging can improve and enhance the plasticity of Ti₃Al alloy effectively.

KEY WORDS: Ti3Al alloy; heat treatment; microstructure characteristics; compressive properties

随着航空、航天技术的飞速发展,对轻质耐高温的高温结构材料的需求日益迫切。Ti₃Al 合金与高温钛合金相比,使用温度可提高 50~150 ℃以上,同时具有密度低、高温强度高优点,已成为航天、航空领域最具发展潜力的高温结构材料之一^[1-5],然而,Ti₃Al 具有金属间化合物普遍存在的室温塑性差的缺点,成为目前拓展工程应用的主要障碍。为此,围绕 Ti₃Al 合金室温塑性的改善问题,国内外开展了广泛的研究^[6-7]。曹京霞等^[8]研究了不同热处理工艺对 Ti-24Al-15Nb-1Mo 合金微观组织及力学性能的影响,结果表明,通过对合金微观组织的控制,可使合金的塑性和韧性得到改善。王伟等^[9]通过对 Ti-22Al-25Nb 合金进行热加工及热处理,获得了分别具有等轴组织、双态组织及层片组织的 Ti-22Al-25Nb 合金。结果表明,层片组织塑性最差,等轴组织塑性最好,双态组织和层片组织抗蠕变性能相近。由上述研究可知,通过适当的添加合金元素以及制定合理的热加工和热处理工艺,可以实现对 Ti₃Al 合金的组织及性能在较大范围内的调控。另外,由于材料的微观组织特征对其力学性能影响显著,系统研究材料的微观组织特征对其力学性能的影响规律,对后续的材料设计、组织及性能的调控有着重要的借鉴和指导作用。

目前,大量的研究工作都集中在 Ti₃Al 合金的制备工艺、后续的热处理和热加工工艺对其组织及力学性能的影响,较为详细地探讨了晶粒尺寸、组织状态(双态组织、层片组织等)以及新相的引入等微观组织变化对材料力学性能的影响^[8-12],而材料微观组织的一些细节特征,例如 B2 相及 α_2 相两相的含量、形状及尺寸的变化究竟对其力学性能有着怎样的影响,尚没有文献明确报道。

文中对不同热处理工艺条件下的 Ti-23Al-14Nb 合金进行了室温下动态压缩力学性能测试,系统地观察了合金微观组织的变化,并分析了微观组织(α_2 相的比例、形状及尺寸)的变化对其力学性能的影响规律,为 Ti₃Al 合金的组织、成分设计提供指导。

1 实验

实验所用材料为真空自耗电弧冶炼方法制备的名义成分为 Ti-23Al-14Nb(原子数分数)的 Ti₃Al 合金铸锭。首先,采用 D8-Advance X 射线衍射仪分析合金的相组成。采用 NETZSCH DSC 404F3 高温差示

扫描量热仪对其进行差热分析,保护气氛为 Ar,升温速率为 10 ℃/min,试样质量为 30.1 g。根据差热分析结果可确定 Ti-23Al-14Nb 合金中 $\alpha_2 \rightarrow$ B2 的相转变温度。采用电火花线切割机在合金铸锭上切取 42 个尺寸为 20 mm×20 mm×20 mm 的正方体试样及 Φ 8 mm×30 mm 的压缩母材试棒,对该合金试样进行了 6 种不同的固溶+时效热处理工艺,获得 α_2 相含量、形状及尺寸不同的热处理态试样。

表 1 铸态 Ti-23Al-14Nb 合金的热处理工艺
Tab.1 Heat treatment of as-cast Ti-23Al-14Nb alloy

序号	热处理工艺
TA1	
TA2	1000 ℃/1 h/WQ
TA3	1000 ℃/3 h/FC
TA4	1100 ℃/3 h/WQ
TA5	800 ℃/25 h/FC
TA6	1000 ℃/1 h/WQ+800 ℃/25 h/FC
TA7	1000 ℃/3 h/FC+800 ℃/25 h/FC

采用 Image-Pro Plus 软件对热处理前后微观组织照片进行 α_2 相比比例标定,见图 1。运用 LECO 系列的

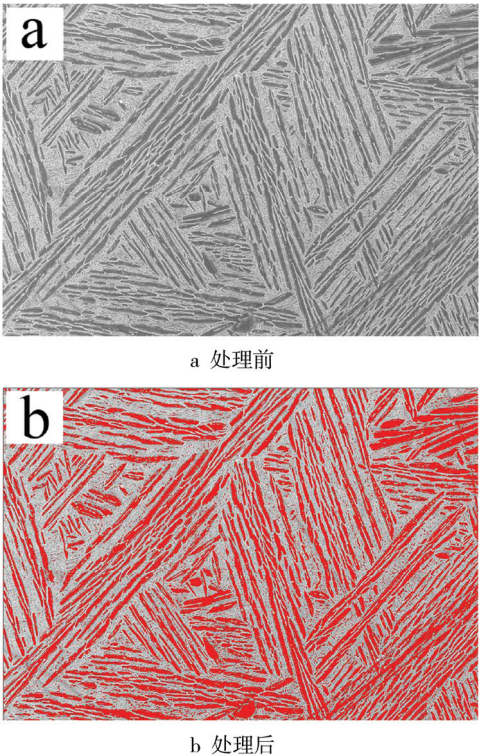


图 1 Image-Pro Plus 软件处理图片示例
Fig.1 Example of photos processed with Image-Pro Plus software

OlympusPEM-3 型光学显微镜和 S-4000 场发射扫描电子显微镜分析铸态及热处理后组织试样的微观组织。采用分离式霍普金森压杆（简称 SHPB）系统对 $\Phi 5\text{ mm}\times 5\text{ mm}$ 的圆柱形试样进行动态压缩力学性能测试，应变率控制在 3000 s^{-1} ，获得试样在高应变率加载条件下的真应力-应变曲线。

对图 1a 中深色板条相的进行相比比例测定，首先通过 Image-Pro Plus 软件将其选中、并自动染红如图 1b 所示，随后软件自行计算出红色部分面积即可得深色板条相的相比比例。为避免结果的偶然性，每种状态的组织选用 5 张微观照片进行标定，求其平均值。

2 结果与讨论

2.1 原始铸态

原始铸态 Ti-23Al-14Nb 合金的微观组织见图 2。由图 2a 可知，原始铸态组织为等轴组织，晶粒尺寸为 $800\sim 1800\text{ }\mu\text{m}$ 。晶粒内部进一步放大后的微观组织见图 2b。在图 2a 中，暗色的 α_2 相大部分呈板条束集状，小部分呈鱼鳞状分布在浅色的 B2 相基体中。板条束集束长为 $50\sim 170\text{ }\mu\text{m}$ ，宽为 $10\sim 30\text{ }\mu\text{m}$ ，其中单个板条宽约为 $2\text{ }\mu\text{m}$ ；单个鱼鳞状 α_2 相的尺寸约为 $2\sim 4\text{ }\mu\text{m}$ 。对 α_2 相和 B2 相做能谱测试，结果见表 2。与 B2 相相比， α_2 相中的 Al 元素和 Ti 元素的含量较高，Nb 元素的含量较低。

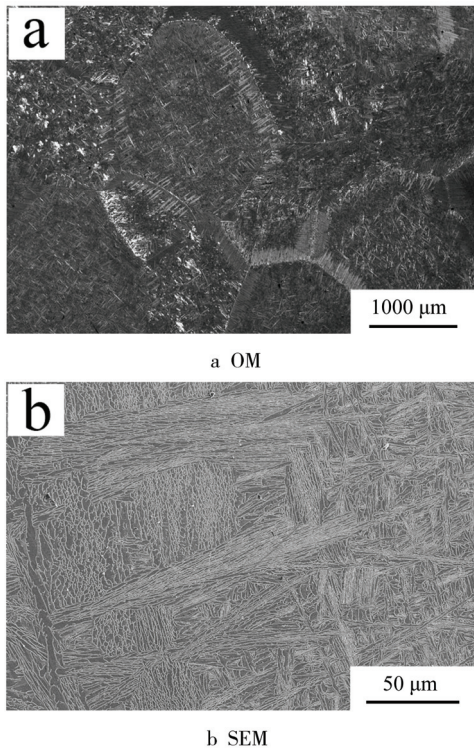


图 2 铸态 Ti-23Al-14Nb 合金的微观组织照片
Fig.2 Microstructure of as-cast Ti-23Al-14Nb alloy

表 2 铸态 Ti-23Al-14Nb 合金中 α_2 相和 B2 相的能谱测试结果（原子数分数）

Tab.2 EDS results of α_2 phase and B2 phase in as-cast Ti-23Al-14Nb alloy %			
相	Ti	Al	Nb
α_2 相	66.80	24.03	9.17
B2相	63.15	18.93	17.93

2.2 热处理后

采用 Image-Pro Plus 软件，对热处理前后的 7 种合金进行 α_2 相和 B2 相的相比比例测定（见表 3），结合微观组织照片，分别探讨固溶和固溶+时效热处理工艺对其微观组织的影响。

表 3 Ti-23Al-14Nb 合金热处理前后 α_2 相比比例
Tab.3 Fraction of α_2 phase and B2 phase in Ti-23Al-14Nb alloy before and after heat treatment

序号	α_2 相比比例/%	B2相比比例/%
TA1	47.5	52.5
TA2	38.9	61.1
TA3	56.8	43.2
TA4	0	100
TA5	54.8	45.2
TA6	43.1	56.9
TA7	63.5	36.5

2.2.1 固溶热处理前后

铸态 Ti-23Al-14Nb 合金固溶热处理前后的微观组织见图 3。图 3a—3d 分别为 Ti-23Al-14Nb 合金铸态(TA1)、热处理态(TA2)、热处理态(TA3)和热处理态(TA4)后的微观组织照片。当 Ti-23Al-14Nb 合金在 $1000\text{ }^\circ\text{C}$ 固溶 1 h 再经淬火冷却后，合金组织中的 α_2 相板条间的距离增大， α_2 相的比例由 47.5% 减少至 38.9% ，见图 3b。Ti-23Al-14Nb 合金在 $1000\text{ }^\circ\text{C}$ 固溶 1 h 再经随炉冷却后，组织中的 α_2 相比比例增加至 56.8% ，板条宽度明显增加，由 TA1 的 $2\text{ }\mu\text{m}$ 增长到 $5\text{ }\mu\text{m}$ 左右，见图 3c。当 Ti-23Al-14Nb 合金在 $1100\text{ }^\circ\text{C}$ 固溶 3 h 再经淬火冷却后，合金中的 α_2 相全部转变为 B2 相，合金组织为单一的 B2 相组织，见图 3d。

由 Ti-23Al-14Nb 合金差热分析(DSC)曲线可知铸态 Ti-23Al-14Nb 合金在 $973.5\text{ }^\circ\text{C}$ 开始发生吸热反应，在 $1001.8\text{ }^\circ\text{C}$ 达到峰值，在 $1031.1\text{ }^\circ\text{C}$ 吸热反应终止。结合相图分析可知，该吸热峰对应的是 $\alpha_2\rightarrow\text{B2}$ 的相转变过程，因此推测铸态 Ti-23Al-14Nb 合金在 $973.5\text{ }^\circ\text{C}$ 时开始发生 $\alpha_2\rightarrow\text{B2}$ 相转变，当温度上升到 $1031.1\text{ }^\circ\text{C}$ 以上时为单一的 B2 相组织。Ti-23Al-14Nb 合金在 $1000\text{ }^\circ\text{C}$ 固溶时，合金中发生 $\alpha_2\rightarrow\text{B2}$ 的相转变，

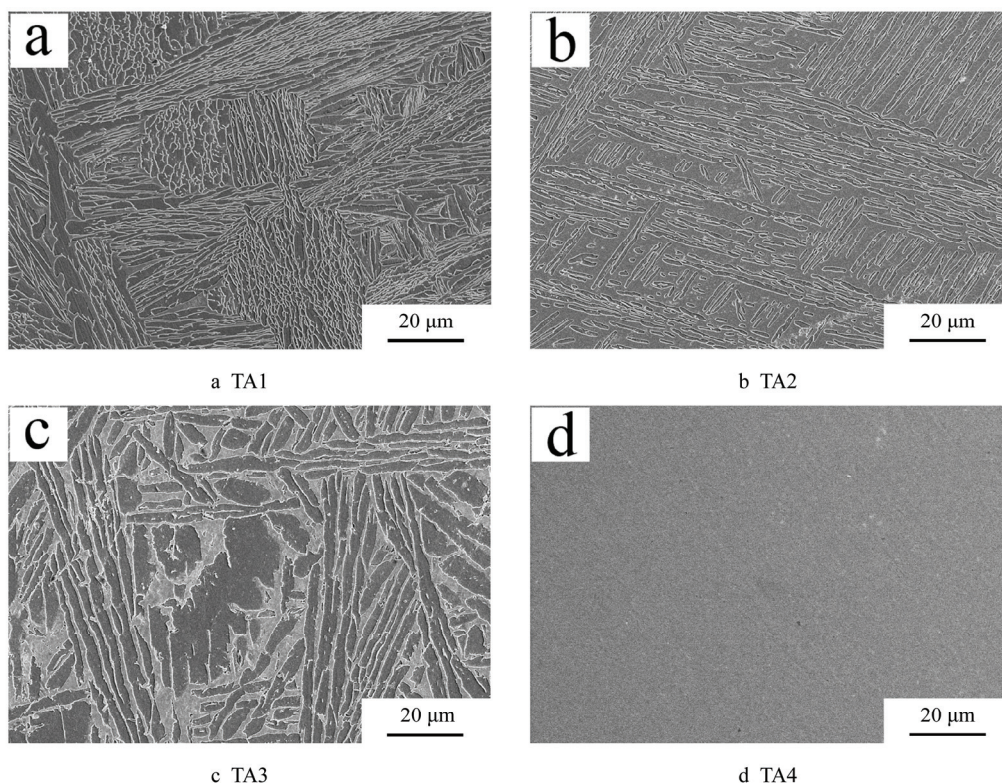


图 3 固溶热处理前后合金的微观组织

Fig.3 Microstructure before and after solid solution heat treatment

α_2 相的比例有所下降,在淬火冷却的过程中,由于冷却速度过快, α_2 相来不及析出,导致 TA2 合金中的 α_2 相比比例较少;而在随炉冷却的过程中,冷却速度缓慢,原子扩散充分,致使 TA3 合金中 α_2 相板条逐渐长大、变宽,相比比例增加。在 1100 °C 固溶时,由于温度高于 $\alpha_2 \rightarrow B2$ 的相变温度, α_2 相完全转变为 B2 相,同时在淬火冷却的过程中,由于冷却速度过快, α_2 相来不及析出,得到具有单一 B2 相组织的 TA4 合金。

2.2.2 固溶+时效热处理后

对 Ti-23Al-14Nb 合金进行固溶+时效热处理,得到具有不同微观组织特征的 TA5、TA6 和 TA7 合金,见图 4。与固溶态合金组织相比,TA5 合金 α_2 相板条

集束的宽度明显增加,鱼鳞状 α_2 相的数量显著减少。固溶+时效热处理后,合金组织中稀疏的 α_2 相板条之间,析出了大量细小的针叶状次生 α_2 相。进一步放大如图 4b 中右上角所示,针叶状次生 α_2 相长约为 1~2 μm 。

Ti-23Al-14Nb 合金的微观组织发生上述变化主要是由于时效热处理促进了合金中原子的扩散,利于 α_2 相的析出,致使合金中板条集束的宽度增加,鱼鳞状的 α_2 相转变为板条状的 α_2 相。另外,由于初生 α_2 相板条间距较大,时效温度不足以使原子剧烈扩散并形成尺寸较大的次生 α_2 相板条,因此在 TA6 和 TA7 合金中的初生 α_2 相板条间析出大量细小的针叶状次生 α_2 相。

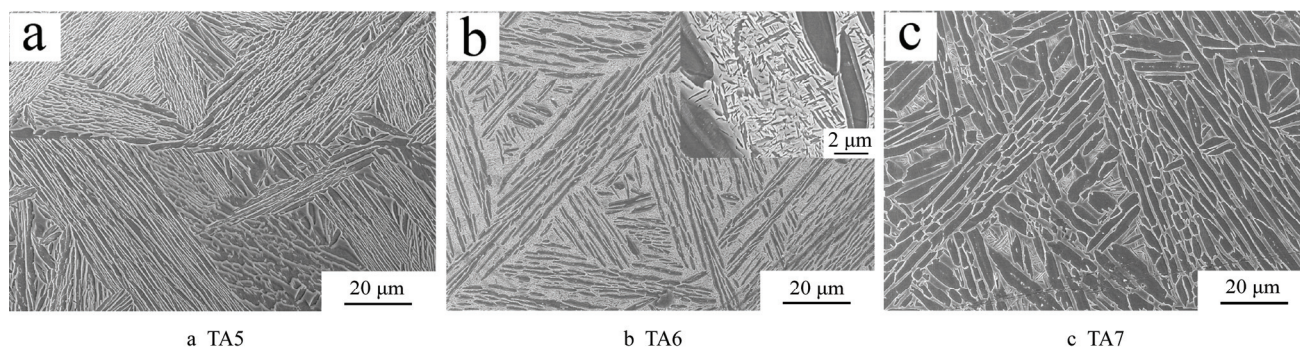


图 4 Ti-23Al-14Nb 合金时效热处理后的微观组织

Fig.4 Microstructure of Ti-23Al-14Nb alloy after aging treatment

综上所述,当在 $\alpha_2 \rightarrow B2$ 的相变温度附近(1000 °C)固溶时,淬火冷却得到 α_2 相比比例较少的TA2合金;随炉缓慢冷却得到 α_2 相板条粗大的TA3合金。当在 $\alpha_2 \rightarrow B2$ 的相变温度以上(1100 °C)固溶后淬火冷却,可得到具有单一B2相组织的TA4合金。固溶+时效热处理促进合金中 α_2 相的析出,获得到 α_2 相板条集束宽大且鱼鳞状 α_2 相较少的TA5合金和在初生 α_2 相板条间分布着大量细小的针叶状次生 α_2 相的TA6和TA7合金。

2.3 对动态压缩力学性能的影响

为探讨微观组织特征变化对其力学性能的影响规律,对热处理前后不同微观组织的Ti-24Al-14Nb合金进行动态压缩力学性能测试,并对结果进行了详细的分析探讨,研究结果如下。

固溶热处理前后合金的动态压缩真应力-真应变

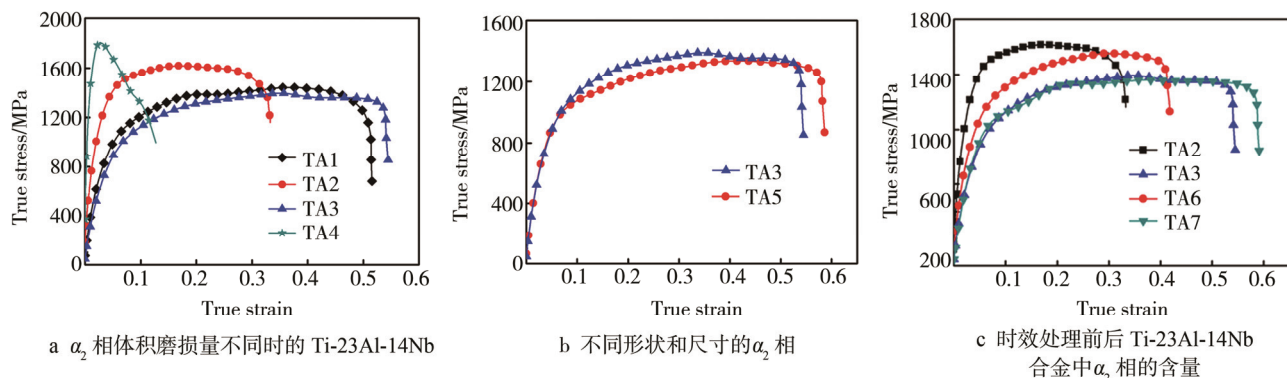


图5 动态压缩态真应力-真应变曲线
Fig.5 True stress-strain curves of dynamic compression

2.4 对力学性能影响

基于上述研究可知,在Ti-24Al-14Nb合金中, α_2 相中Al元素的含量较B2相中的高,通过固溶处理调控合金中 α_2 相的比例时,在引起合金B2相比比例变化的同时,势必会引起B2相中Al元素含量的变化,当B2相中Al含量提高时,Al元素在B2相中发生强烈的固溶,从而导致B2相的强度升高,塑性下降^[13-14],因此,在Ti-23Al-14Nb合金中,随着 α_2 相比比例的提高,B2相中Al元素的含量越少,Al元素在B2相中的固溶强化作用也随之减弱,致使B2相的强度下降,塑性提高。另外,微观组织进一步细化,增加了两相在变形过程的变形协调性,从而使得合金塑性明显提高。

经固溶+时效热处理后,合金中粗大的初生 α_2 相板条间析出大量细小的次生针状 α_2 相,大幅度提高了合金在变形过程中变形协调性,同时次生针状 α_2 相的析出也降低了B2相中Al元素的含量,降低了Al元素在B2相中的固溶强化作用,使得B2相的塑性提高,因此,经固溶+时效热处理后,Ti-24Al-14Nb

合金塑性明显提高。

曲线见图5a。可知,具有单一B2相的TA4合金的强度最高,高达1806 MPa,而塑性极差,临界破坏应变仅为0.06。随着 α_2 相比比例的增加,合金强度明显下降,塑性显著提高,TA3合金的临界破坏应变高达0.53。由图5b可知,与经过固溶热处理的TA3合金相比,经过时效热处理后,TA5合金强度较低,而塑性优势明显,临界破坏应变高达0.58,较TA3提高9.4%,说明合金中 α_2 相板条的细化更有利于合金塑性的改善。另外,通过对TA2合金和TA3合金进行时效热处理,得到了在初生 α_2 相板条间弥散分布着大量细小的针叶状次生 α_2 相的TA6合金和TA7合金,动态力学性能测试表明(见图5c),TA6和TA7均表现出较TA2合金和TA3合金略低的强度和更好的塑性,临界破坏应变提高9%以上,说明在粗大板条间析出细小的针叶状 α_2 相有利于Ti-23Al-14Nb合金塑性的提高。

合金塑性明显提高。

3 结论

通过真空自耗电弧冶炼法制备了具有 α_2 相及B2相双相的铸态Ti-23Al-14Nb合金,并通过调控热处理工艺得到不同微观组织的Ti-23Al-14Nb合金,开展了微观组织变化对材料动态力学性能的影响研究,得出以下结论。

- 1) 固溶处理后Ti-24Al-14Nb合金组织中 α_2 相的相比比例从47.5%增加到56.8%, α_2 相板条逐渐长大、变宽。
- 2) 固溶+时效热处理后鱼鳞状的初生 α_2 相向板条集束状的 α_2 相转变,粗大的初生 α_2 相板条间析出大量细小的针叶状次生 α_2 相。
- 3) 初生 α_2 相的长大及次生 α_2 相的析出,导致B2相中Al元素含量的下降,Al元素与B2相的固溶强化作用减弱,导致合金的强度下降,塑性提高。同时,热处理后Ti-24Al-14Nb合金微观组织的细化,

会增加合金中 α_2 相和 B2 相在压缩变形过程的变形协调性, 从而使得合金塑性明显提高。

参考文献:

- [1] 王克鲁, 鲁世强, 康永林, 等. Ti₃Al 基合金的热变形行为及加工图[J]. 稀有金属材料与工程, 2011, 40(9): 1534—1539.
WANG Ke-lu, LU Shi-qiang, KANG Yong-lin, et al. Thermal Deformation Behavior and Processing Diagram of Ti₃Al Based Alloy[J]. Rare Metal Materials and Engineering, 2011, 40(9): 1534—1539.
- [2] WANG Wei, ZENG Wei-dong, XUE Chen, et al. Effect of Heat Treatment on Microstructure Evolution and Microhardness of Ti-22Al-25Nb Alloy[J]. Journal of Materials Science and Engineering A, 2014, 603: 176—181.
- [3] CHEN Bing-qing, XIONG Hua-ping, SUN Bing-bing, et al. Microstructure Evolution and Tensile Properties of Ti₃Al/Ni-based Superalloy Welded Joint[J]. Journal of Materials Science & Technology, 2014, 30(7): 715—721.
- [4] 张建伟, 李世琼, 梁晓波, 等. Ti₃Al 和 Ti₂AlNb 基合金的研究与应用[J]. 中国有色金属学报, 2010, 20(1): 336—341.
ZHANG Jian-wei, LI Shi-qiong, LIANG Xiao-bo, et al. Research and Application of Ti₃Al and Ti₂AlNb Based Alloys[J]. The Chinese Journal of Nonferrous Metals, 2010, 20(1): 336—341.
- [5] 司玉锋, 陈子勇, 孟丽华, 等. Ti₃Al 基金属间化合物的研究进展[J]. 特种铸造及有色合金, 2003, 23(4): 33—35.
SI Yu-feng, CHEN Zi-yong, MENG Li-hua, et al. Progress in the Study of Ti₃Al Intermetallic Compounds[J]. Special Casting and Nonferrous Alloys, 2003, 23(4): 33—35.
- [6] 王邵丽, 曾卫东, 徐斌, 等. 热机械处理对 Ti₂AlNb 基合金组织及性能的影响[J]. 稀有金属材料与工程, 2008, 37(3): 521—524.
WANG Shao-li, ZENG Wei-dong, XU Bin, et al. Effect of Thermo Mechanical Treatment on Microstructure and Properties of Ti₂AlNb Based Alloy[J]. Rare Metal Materials and Engineering, 2008, 37(3): 521—524.
- [7] 陈玉勇, 司玉锋, 孔凡涛, 等. 钎对 Ti-23Al-25Nb 合金热处理组织及性能的影响[J]. 稀有金属材料与工程, 2006, 35(4): 655—658.
CHEN Yu-yong, SI Yu-feng, KONG Fan-tao, et al. Effect of Yttrium on Microstructure and Properties of Ti-23Al-25Nb Alloy After Heat Treatment[J]. Rare Metal Materials and Engineering, 2006, 35(4): 655—658.
- [8] 曹京霞, 许剑伟. (α_2 +O+B2)三相 Ti₃Al 基合金的微观组织与力学性能[J]. 钛工业进展, 2008, 25(5): 15—19.
CAO Jing-xia, XU Jian-wei. Microstructure and Mechanical Properties of (α_2 +O+B2) Three-phase Ti₃Al Based Alloy[J]. Titanium Industry Progress, 2008, 25(5): 15—19.
- [9] 王伟, 曾卫东, 杨锦, 等. 等温锻造 Ti-22Al-25Nb 合金的显微组织与力学性能[J]. 稀有金属材料与工程, 2016(6): 1605—1608.
WANG Wei, ZENG Wei-dong, YANG Jin, et al. Microstructure and Mechanical Properties of Isothermal Forging Ti-22Al-25Nb Alloy[J]. Rare Metal Materials and Engineering, 2016(6): 1605—1608.
- [10] 马雄, 张建伟, 梁晓波, 等. Ti-22Al-25Nb 合金热机械处理组织与性能研究[J]. 稀有金属材料与工程, 2017(5): 1375—1379.
MA Xiong, ZHANG Jian-wei, LIANG Xiao-bo, et al. Microstructure and Properties of Ti-22Al-25Nb Alloy by Thermomechanical Treatment[J]. Rare Metal Materials and Engineering, 2017(5): 1375—1379.
- [11] JIA Jian-bo, ZHANG Kai-feng, JIANG Shao-song. Microstructure and Mechanical Properties of Ti-22Al-25Nb Alloy Fabricated by Vacuum Hot Pressing Sintering[J]. Materials Science & Engineering A, 2014, 616: 93—98.
- [12] WANG Wei, ZENG Wei-dong, XUE Chen, et al. Microstructure Control and Mechanical Properties from Isothermal Forging and Heat Treatment of Ti-22Al-25Nb (at.%) Orthorhombic Alloy, Intermetallics, 2015, 56: 79—86.
- [13] GOGIA A K, NANDY T K, BANERJEE D, et al. Microstructure and Mechanical Properties of Orthorhombic Alloys in the Ti-Al-Nb System[J]. Intermetallics, 1998, 6: 741—748.
- [14] KAMAT S V, GOGIA A K, BANERJEE D. Effect of Alloying Elements and Heat Treatment on the Fracture Toughness of Ti-Al-Nb Alloys[J]. Acta Materialia, 1998, 46(1): 239—251.