

超音频脉冲方波电流参数对 2219 铝合金 焊缝组织和力学性能的影响 *

从保强 齐铂金 周兴国 罗 军

(北京航空航天大学机械工程及自动化学院, 北京 100191)

摘 要 采用新型超快速变换 HPVP-TIG 电弧焊接工艺进行 2219-T87 高强铝合金焊接, 研究脉冲电流特征参数对焊接接头组织和力学性能的影响. 结果表明, 加入超音频脉冲方波电流 (UPSWC) 作用后, 铝合金焊缝区显微组织由粗大柱状晶转变为细小等轴晶, 在焊缝区内除了等轴树枝晶外, 还存在一种呈带状分布的极细小等轴非枝晶组织, 同时焊缝熔合区宽度明显减小, 焊接接头抗拉强度和断后伸长率显著提高. 在一定范围内增加脉冲电流幅值, 提高脉冲频率, 减小占空比, 可增强组织细化作用, 提高接头力学性能. 与未加入 UPSWC 作用相比, 脉冲电流幅值 100 A, 脉冲频率 40 kHz, 占空比 20% 时, 接头抗拉强度和断后伸长率分别提高约 22% 和 111%.

关键词 高强铝合金, 超音频脉冲电流, 变极性, 等轴非枝晶, 力学性能

中图分类号 TG457.14, TG442 **文献标识码** A **文章编号** 0412-1961(2009)09-1057-06

INFLUENCES OF ULTRASONIC PULSE SQUARE-WAVE CURRENT PARAMETERS ON MICROSTRUCTURES AND MECHANICAL PROPERTIES OF 2219 ALUMINUM ALLOY WELD JOINTS

CONG Baoqiang, QI Bojin, ZHOU Xingguo, LUO Jun

School of Mechanical Engineering and Automation, Beihang University, Beijing 100191

Correspondent: CONG Baoqiang, Tel: (010)82339961, E-mail: cong bq@me.buaa.edu.cn

Manuscript received 2009-02-26, in revised form 2009-04-30

ABSTRACT In order to overcome some problems in variable polarity gas tungsten arc welding (VP-GTAW) employed for welding aluminum alloy components, poor strength and ductility of weld metal, solidification cracking and weld porosity, a novel ultrafast-convert high frequency pulsed current VP-GTAW technique is developed. The current converting speed in the novel technique is enhanced from less than 10 A/ μ s to more than 50—100 A/ μ s and high frequency pulsed current which has a frequency of more than 20 kHz is exactly integrated in the positive polarity current duration. It is expected that the novel pulsed VP-GTAW technique can improve the weld quality of aluminum alloy significantly. Thus, it is imperative to understand the effect of pulsed current parameters on the weld characteristics in the pulsed VP-GTAW process. The measured results of 2219-T87 high strength aluminum alloy weld joints show that the application of ultrasonic pulse current makes the coarse grains in weld zone change to the fine equiaxed grains, and a band-like zone with finer equiaxed non-dendrites appears. The width of weld fusion zone is obviously decreased and the mechanical properties of weld joints are predominantly improved. The improvements of the structure and weld properties can be significantly enhanced with the increases of the ultrasonic pulse current amplitude and pulse frequency, and decrease of the pulse duty cycle in certain ranges. Compared with the conventional VP-GTAW, tensile strength and elongation of weld joints are increased by about 22% and 111%, respectively, under the conditions of pulse current amplitude of 100 A, pulse frequency of 40 kHz and pulse duty cycle of 20%.

KEY WORDS high strength aluminum alloy, ultrasonic pulse current, variable polarity, equiaxed non-dendrite, mechanical property

* 收到初稿日期: 2009-02-26, 收到修改稿日期: 2009-04-30

作者简介: 从保强, 男, 1979 年生, 博士

2219 高强铝合金因其优良的力学性能而被广泛应用于航空和航天等诸多领域^[1,2]。采用常规电弧焊接工艺方法进行 2219 铝合金焊接时,接头强度仅能够达到母材金属的 50%—60%,且气孔倾向性大^[3],严重制约了 2219 铝合金的实际工程应用。改善和提高 2219 铝合金的焊接性能是国防军事等工业发展的必然要求,为此,研究开发了一种新型的超快速变换复合脉冲变极性 TIG 电弧焊接方法 (hybrid pulse variable polarity TIG, 简称 HPVP-TIG)^[4]。初步研究结果表明,在超快速变换变极性电弧焊接过程中引入超声波脉冲方波电流 (ultrasonic pulse square-wave current, 简称 UPSWC) 的复合作用并合理匹配脉冲电流特征参数,可对铝合金焊缝熔池液态金属的凝固组织产生显著影响,并有利于改善和提高铝合金的焊接质量^[5,6]。因此,研究并掌握 UPSWC 参数对 2219 高强铝合金焊缝微观组织和接头力学性能的影响规律,可为 HPVP-TIG 电弧焊接工艺的实际应用提供参照,具有极其重要的实际工程应用价值。

1 实验方法

焊接母材选择厚度为 4 mm 的 2219-T87 铝合金平板,化学成分 (质量分数, %) 为: Si 0.2, Fe 0.3, Cu 5.8—6.8, Mn 0.3, Zr 0.18, Al 余量。经力学性能测试,母材的抗拉强度为 446 MPa,断后伸长率为 11.7%。焊接试件尺寸规格为 200 mm×100 mm,对接焊缝长度 200 mm, I 形坡口。填充焊丝采用直径为 2.4 mm 的 ER2319,其化学成分 (质量分数, %) 为: Si 0.2, Fe 0.3, Cu 6.3, Mn 0.3, Zr 0.14, Al 余量。焊前先用丙酮有机溶剂擦拭去除焊接试件表面的油污,然后采用化学清理方法 (10%NaOH+15%HNO₃) 去除表面氧化膜。采用机械清理方法去除焊丝 ER2319 表面的氧化膜。

图 1 为超快变换复合脉冲方波变极性电流波形示意图。在正极性电流持续时间 t_p 内,焊接电弧电流可看作是由一系列高频脉冲方波组成,单周期内脉冲基值电流持续时间为 t_b ,脉冲峰值电流持续时间为 t'_p ,脉冲频率 $f_H = 1/(t_b + t'_p)$,占空比 $\delta = t'_p/(t_b + t'_p)$ 。

在铝合金 HPVP-TIG 焊接过程中,UPSWC 包含基值电流 I_b 和峰值电流 I_p 等多个参数,本文主要研究脉冲电流幅值 $I_{pp}(I_{pp}=I_p - I_b)$ 、脉冲电流频率 f_H 以及占空比 δ 3 个特征参数的影响。在满足电弧热输入的条件下,为尽量减少热输入差异对焊缝组织和性能的影响,并满足 2219 高强铝合金焊缝成形的要求,实验过程中正极性持续期间的有效电流 I_{eff} 只允许在一定范围内波动。脉冲方波电流具有快速的上升沿和下降沿变化速率,可看作理想脉冲方波,有效电流 I_{eff} 满足如下关系^[7]:

$$I_{eff} = [\delta I_p^2 + (1 - \delta) I_b^2]^{1/2} \quad (1)$$

将试样分为 6 组,其焊接参数如表 1 中所示,其中

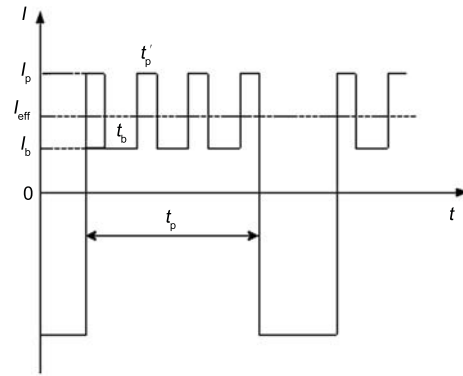


图 1 复合脉冲变极性方波电流波形示意图

Fig.1 Schematic diagram of hybrid pulse variable polarity current waveform

表 1 HPVP-TIG 主要焊接参数
Table 1 Main welding parameters of HPVP-TIG

Sample No.	I_{eff} A	I_b A	I_p A	$I_{pp} = I_p - I_b$ A	f_H kHz	δ %
1	155	—	155	—	—	—
2	126	100	200	100	40	20
3	129	95	155	60	20	50
4	129	95	155	60	40	50
5	139	80	180	100	40	50
6	138	60	160	100	20	70

No.1 试样采用未加入 UPSWC 作用的变极性方波电流。其它焊接工艺参数分别为:电流极性变换频率 100 Hz;反极性电流 195 A;正反极性电流持续时间比 4 : 1;W 电极选用直径为 3.0 mm 的 WC20;电极距离铝合金焊接试件表面高度 3 mm;焊接速度 120 mm/min;保护气体为普通 Ar,流量为 15 L/min。

沿垂直于焊缝的方向切取金相试样,使用 Keller 试剂 (2.5 mL HNO₃+1.5 mL HCl+1 mL HF+95 mL H₂O) 对抛光试样进行化学浸蚀,在光学显微镜 (OM) 和扫描电子显微镜 (SEM) 下观察焊缝显微组织,晶粒尺寸采用截距法测量。截取焊缝区试样并在 D/max 2200PC 型 X 射线衍射仪 (XRD) 上进行物相分析。焊态条件下,采用线切割垂直于焊接方向切取拉伸试样,每组工艺制取 3 个试样,并在 DWD-50E 型电子拉伸试验机上进行拉伸实验,拉伸速度为 2 mm/min。使用 DHV-1000 型数字式维氏 (HV) 显微硬度计对焊接接头进行显微硬度测量,施加载荷 1.96 N,保持时间 15 s。

2 实验结果与分析

2.1 焊缝显微组织特征

图 2 为不同焊接参数下 2219-T87 铝合金焊接接头焊缝区的显微组织。未加入 UPSWC 作用时,接头焊缝区组织以粗大树枝晶为主 (图 2a);加入 UPSWC 作用后,焊缝区组织以等轴晶为主,并且在焊缝中部出现了贯穿

缝横截面且呈带状分布的细小等轴非枝晶组织, 其分布状态与熔池后缘空间曲面形状类似, 并与焊缝中部等轴树枝晶组织交替分布 (图 2b—f). 图 3 为 No.2 试样焊缝区内等轴树枝晶与细小等轴非枝晶组织的 SEM 图片, 与等轴树枝晶内存在大量析出的第二相粒子 (图 3a) 不同, 细小等轴非枝晶内无析出物, 并呈圆形或多边形 (图 3b).

当脉冲电流幅值 60 A, 脉冲频率 20 kHz, 占空比 50% 时 (No.3 试样), 等轴非枝晶平均尺寸约为 $23 \mu\text{m}$ (图 2c). 只改变一个脉冲电流参数时, 晶粒尺寸对电流参数变化并不敏感, 平均晶粒尺寸均为 $21\text{—}23 \mu\text{m}$ (图 2d—f); 同时改变 3 个特征参数, 即提高脉冲电流幅值至 100 A, 增加脉冲频率至 40 kHz, 减小占空比至 20% 时, 晶粒发生明显

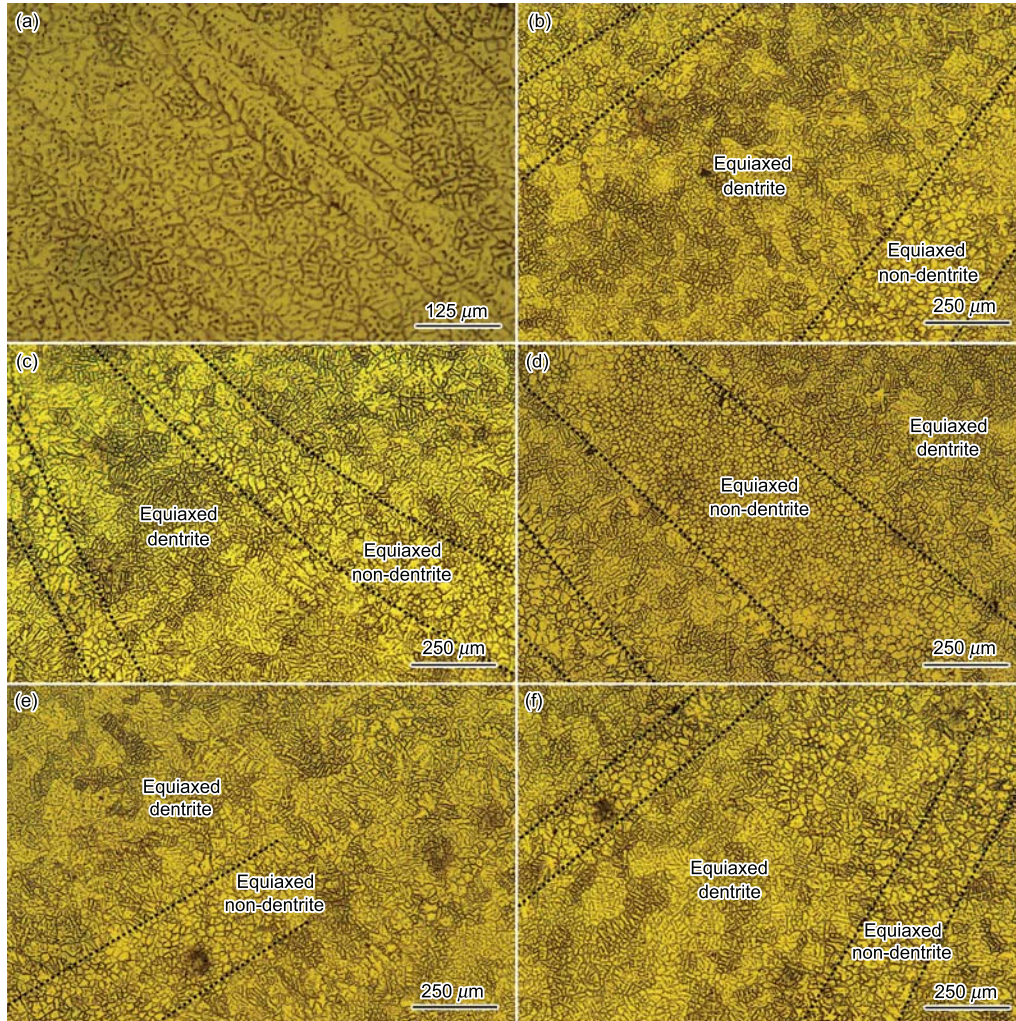


图 2 不同焊接参数下 2219 铝合金 HPVP-TIG 焊缝区的显微组织

Fig.2 Weld zone microstructures of 2219 HPVP-TIG samples No.1 (a), No.2 (b), No.3 (c), No.4 (d), No.5 (e) and No.6 (f)

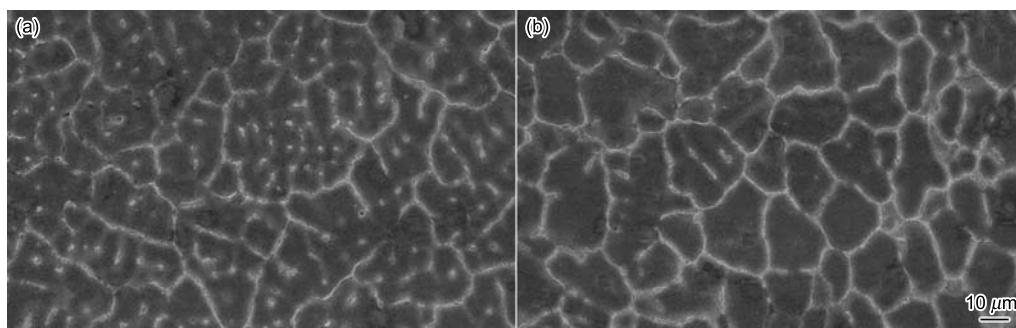


图 3 No.2 试样焊缝区等轴树枝晶与细小等轴晶组织的 SEM 像

Fig.3 SEM images of equiaxed dendritic structure (a) and fine equiaxed non-dendritic structure (b) in weld zone of the sample No.2

细化, 平均晶粒尺寸减小至 $15\ \mu\text{m}$ 左右^[8](图 2b).

图 4 为不同焊接参数下焊缝熔合区的显微组织. 未加入 UPSWC 作用时, 焊缝熔合区宽度比较大, 为 $480\text{—}560\ \mu\text{m}$, 并且在临近焊缝区一侧的熔合区边缘存在一条明显的细小等轴晶带 (equiaxed zone, EQZ), 其组织形态特征与焊缝中部出现的等轴非枝晶组织类似^[9](图 4a). 加入 UPSWC 作用后, 焊缝熔合区宽度在一定程度上有所减小 (图 4b—f), 且熔合区宽度的变化受到 UPSWC 特征参数的影响较大, 其中, No.2 试样焊缝熔合区宽度最小, 为 $220\text{—}230\ \mu\text{m}$, 且临近焊缝区一侧熔合区边缘的 EQZ 基本消失, 而形成以联生结晶方式生长的柱状晶组织 (columnar zone, CLZ), 并指向焊缝中心 (图 4b).

2.2 接头组织形成机理分析

金属结晶组织由柱状晶转变为等轴晶的临界条件可表示为^[10]

$$G_L < 0.061N_0^{1/3}[1 - (\Delta T_N)^3/(\Delta T_C)^3]\Delta T_C \quad (2)$$

式中, G_L 为固/液相界面前沿液相温度梯度, N_0 为非均匀形核率, ΔT_N 为非均匀形核临界过冷度, ΔT_C 为柱状晶生长前沿过冷度. 由式 (2) 可推断, 降低 G_L 和增加 N_0 可有效促进焊缝熔池金属结晶组织由粗大树枝晶向细小等轴晶转变. 在 2219 铝合金 HPVP-TIG 焊接过程中, 加入 UPSWC 作用后, 电弧对焊缝熔池表面产生脉动电弧力作用, 脉动频率达超音频段, 同时, UPSWC 经电弧由电弧正下方区域进入熔池后将向母材四周发散, 在熔池内部形成一定强度的脉动电磁场, 熔池内液态金属粒子会受到频率达超音频段的脉动电磁力作用^[11]. 金属粒子在外部电弧力和内部电磁力等力的共同作用下, 呈复杂规律性的循环运动和涡旋运动, 对临近焊缝区一侧熔合区边缘的未混合区域产生了强烈的冲刷作用, 一方面可有效破碎新结晶形成的晶粒组织, 在抑制组织长大的同时, 破碎的晶粒成为新晶粒的形核核心^[12]; 另一方面还可以将熔合区部分未熔的高熔点粒子, 如 Al_3Zr 和 Al_3Ti 等卷入焊缝中部, 成为高效的异质形核点, 使得熔池中的异质形核

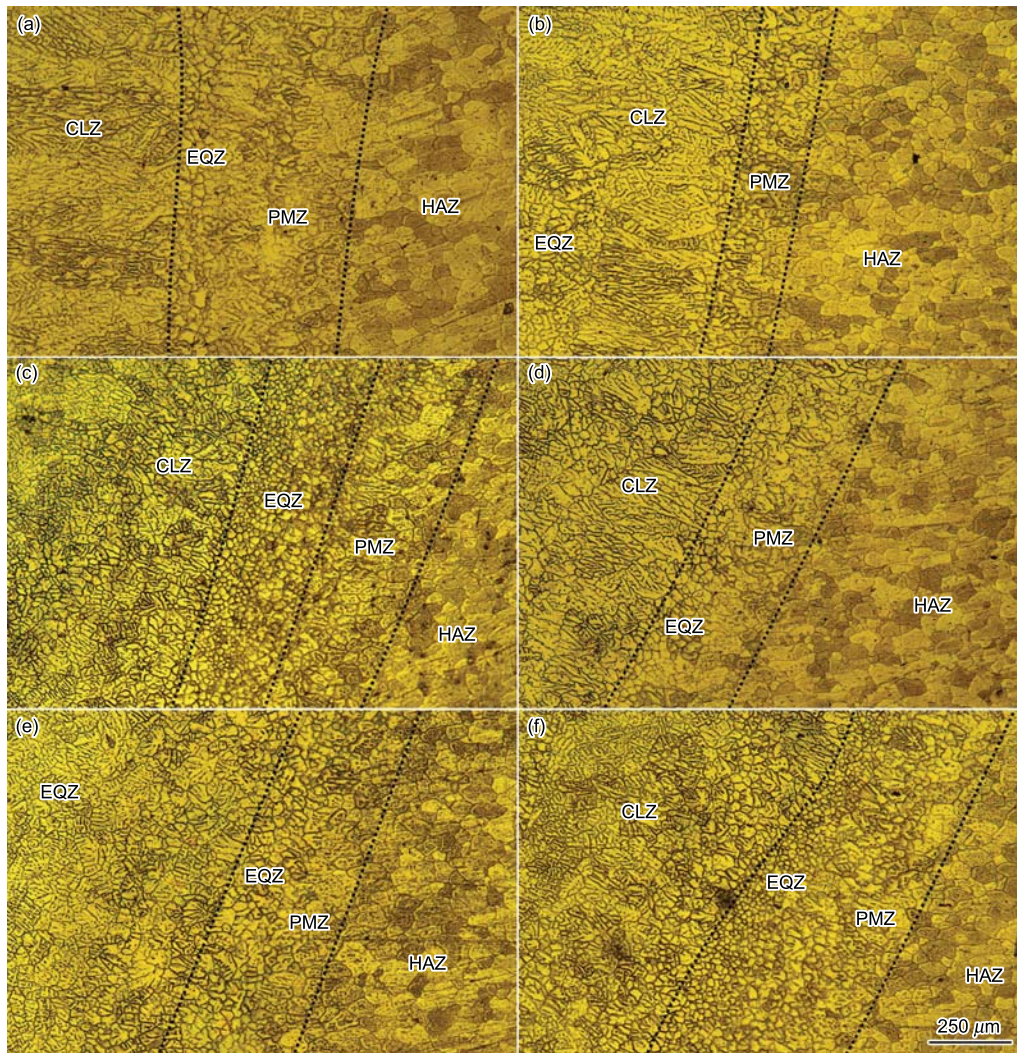


图 4 不同焊接参数下 2219 铝合金 HPVP-TIG 焊缝熔合区显微组织

Fig.4 Fusion zone microstructures of 2219 HPVP-TIG samples No.1 (a)—No.6 (f) (EQZ—equiaxed zone; PMZ—partially melted zone; CLZ—columnar zone; HAZ—heat affected zone)

数量明显增加^[13]。另外,从金属凝固结晶热力学角度分析,熔池液态金属的复杂规律性流动有利于促进熔池液体金属温度的均匀性,可有效降低 G_L ,增大组分过冷范围,促进了焊缝结晶组织由粗大树枝晶向细小等轴晶的转变,明显细化焊缝金属结晶组织^[14,15]。

焊缝中部细小等轴非枝晶组织的形成需要满足 2 个条件:结晶前沿小的成分过冷度和一定量且高效的异质形核质点^[16]。首先,熔池内部液态金属粒子在超音频脉冲电磁力等力的综合作用下将发生超声振动,形成具有一定强度的超声波^[17],并且在熔池内局部区域会产生超声共振现象。当声波强度满足空化阈值条件时就可发生超声空化效应,导致结晶前沿液相温度的迅速升高,致使结晶过程短暂停顿,而随着焊接过程中电弧的移动,结晶过程重新开始,因而在界面前沿就形成了较小的成分过冷度。其次,母材金属中本来存在的微量 Al_3Zr 颗粒等高效异质形核质点,在熔池高温条件下很容易发生重溶而不能保存下来,但是焊丝的不断填充可保证焊丝中含有的 Al_3Zr 等颗粒能够部分保存下来,并在多种性质力的作用下停留在熔池后缘,满足了上述 2 个条件,也就可以在焊缝中部形成与熔池后缘形状类似的细小等轴非枝晶带^[18]。在一定电流参数范围内,脉冲电流幅值越大,脉冲频率越高,单周期内脉冲持续时间越短,即占空比越小,可产生的超声波强度越大,因而对等轴非枝晶晶粒的细化作用就越明显。在焊缝边缘很容易满足上述 2 个条件而形成细小的等轴晶组织,研究^[19,20]认为,熔合区细小等轴晶的形成也是一个形核和长大的过程,主要是母材中的 Al_3Zr 和 Al_3Ti 微小颗粒在凝固过程中提供了大量的异质形核点,促进了异质形核进程。但是在加入 UPSWC 作用后,熔池金属流动性增强致使熔合区边缘未混合区内大量的 Al_3Zr 和 Al_3Ti 微小颗粒被卷走,从而造成熔合区内细小等轴晶带的基本消失,如图 4b 所示。通过以上分析可以看出,焊缝中部和熔合区边缘细小等轴晶与焊缝区等轴树枝晶的形成机理完全不同。

图 5 为 No.2 试样焊缝中部的 XRD 谱。可见,在焊缝中心区域除了大量 $\alpha(Al)$ 固溶体外,还包含有一部分强

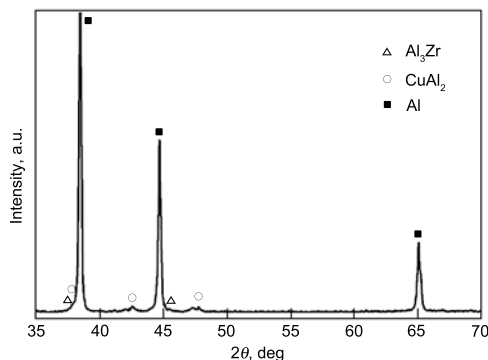


图 5 No.2 试样焊缝区的 XRD 谱

Fig.5 XRD pattern of weld zone of the sample No.2

化相 $CuAl_2$ 和少量的 Al_3Zr 粒子。另外焊缝中还含有极少量的 Al_3Ti 粒子,但由于其在高温条件下极易发生重溶且含量太低而不易被观察到。

2.3 接头力学性能

图 6 为不同焊接参数下沿 2219 铝合金焊缝横截面中线部位的显微硬度分布。可以看出,各试样硬度曲线的变化趋势基本一致,均为焊缝中心区域硬度较高,距离焊缝中心 3—5 mm 的焊缝熔合区硬度明显下降(成为焊接接头的薄弱部位)。在加入 UPSWC 作用后,不同电流参数下焊缝中心区硬度比较接近(98—104 HV),与未加入 UPSWC 作用相比,焊缝中心区(90—98 HV)和熔合区硬度(最低 69 HV)均得到一定程度的提高。未加入 UPSWC 作用时,电弧热作用使得焊缝熔合区内发生严重的母材部分受热熔化和重新凝固过程,由于合金溶质 Cu 元素的平衡分配系数小于 1,因此在部分熔化区域(partially melted zone, PMZ)内出现了严重的溶质 Cu 元素沿晶界部位偏析^[21],造成 $\alpha(Al)$ 固溶体内 Cu 元素含量大幅度降低,在其晶粒内部仅析出极少量的强化相 $CuAl_2$ 等,甚至不析出,因此贫 Cu 的 $\alpha(Al)$ 固溶体区域硬度则明显下降^[22]。加入 UPSWC 作用后,一方面电弧热量更为集中,母材部分受热影响的作用减弱;另一方面,焊缝熔池液态金属产生的较强复杂规律性流动有利于热量的传导和平衡,可在一定程度上改善母材部分熔化金属内溶质 Cu 元素的分布状态,提高该部位的硬度,其中 No.2 试样焊缝熔合区硬度的最小值达到了 81 HV。从图 6 中还可观察到,不同焊接参数下焊缝熔合区部位最低硬度区的宽度也有所不同, No.2 试样的宽度最小,这与该试样焊缝熔合区宽度最小的变化规律一致。

表 2 中所列为 2219 铝合金母材和不同焊接参数下接头的拉伸力学性能。可以看出焊接接头的抗拉强度和断后伸长率均低于母材。未加入 UPSWC 作用时,接头强度系数仅为 0.57,断后伸长率只达到母材的 27%;加入 UPSWC 作用后,当脉冲电流幅值较小(No.3 和 No.4)或占空比较大(No.6)时,接头强度(290—295 MPa)和断后

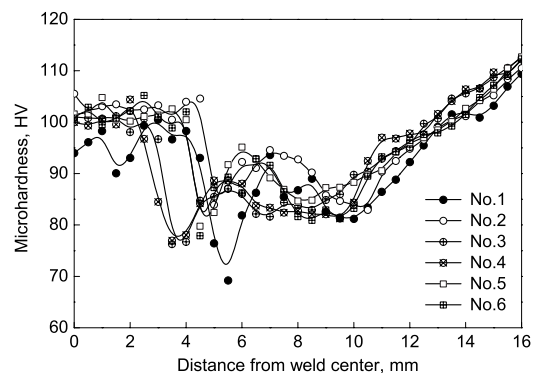


图 6 不同焊接参数下焊缝显微硬度分布

Fig.6 Distributions of microhardness in weld joints under different welding parameters

表 2 母材及焊接接头力学性能

Table 2 Mechanical properties of base metal and weld joints welded at different conditions

Material	Tensile strength	Elongation	Strength
	MPa	%	coefficient
Base metal	446	11.70	1.00
Joint 1	255	3.21	0.57
Joint 2	310	6.78	0.70
Joint 3	291	4.66	0.65
Joint 4	295	5.00	0.66
Joint 5	302	6.43	0.68
Joint 6	290	4.75	0.65

伸长率 (4.66%—5.0%) 都比较接近, 当提高脉冲电流的幅值和频率并减小占空比 (No.2 和 No.5) 时, 接头强度和断后伸长率均明显增加, 分别达到 300 MPa 和 6.0% 以上, 这与各试样焊缝熔合区宽度变化和接头硬度分布规律一致. 这就说明 2219 高强铝合金 HPVP-TIG 焊缝晶粒组织的细化和熔合区溶质 Cu 元素的分布状态对焊接接头的力学性能具有决定性作用. 另外, No.2 试样的接头强度系数达到 0.7, 断后伸长率达到母材的 58%, 与未加入 UPSWC 作用相比, 接头抗拉强度和断后伸长率分别提高了约 22% 和 111%, 接头强度和塑性均明显增强.

3 结论

(1) 采用超快速变换 HPVP-TIG 电弧焊接工艺进行 2219-T87 高强铝合金焊接, 可明显细化焊缝组织. 焊缝区组织由粗大柱状晶转变为细小等轴晶, 在焊缝中部还存在一种呈带状分布的, 与焊缝内的等轴树枝晶组织交替出现的极细小等轴非枝晶组织.

(2) 合理选择匹配超音频脉冲方波电流 (UPSWC) 参数, 在一定范围内增加脉冲电流幅值, 提高脉冲频率, 减小占空比, 可增强焊缝区组织的细化效果, 使等轴非枝晶晶粒尺寸明显减小.

(3) 加入 UPSWC 作用后, 合理选择 UPSWC 特征参数, 可减小焊缝熔合区宽度, 改善焊接接头的硬度分布.

(4) 加入 UPSWC 作用可显著改善和提高 2219-T87 焊接接头的力学性能, 接头强度和塑性均明显增强. 与未加入 UPSWC 作用相比, 当脉冲电流幅值 100 A, 脉冲频率 40 kHz, 占空比 20% 时, 接头抗拉强度和断后伸长率分别增加了约 22% 和 111%.

参考文献

- [1] Albertini G, Bruno G, Dunn B D, Fiori F, Reimers W, Wright J S. *Mater Sci Eng*, 1997; A224: 157
- [2] Liu C F. *Aeronaut Manufact Technol*, 2003; (2): 22 (刘春飞. 航空制造技术, 2003; (2): 22)
- [3] Yang C G, Guo X M, Hong Z F, Qian B N. *Acta Metall Sin*, 2005; 41: 1077 (杨成刚, 国旭明, 洪张飞, 钱百年. 金属学报, 2005; 41: 1077)
- [4] Qi B J, Cong B Q. *Trans Chin Weld Inst*, 2008; 29: 57 (齐铂金, 从保强. 焊接学报, 2008; 29: 57)
- [5] Cong B Q, Qi B J, Zhou X G, Luo J. *Trans Chin Weld Inst*, 2009; 30: 25 (从保强, 齐铂金, 周兴国, 罗军. 焊接学报, 2009; 30: 25)
- [6] Cong B Q, Qi B J, Zhou X G, Luo J. *Aerospace Mater Technol*, 2009; 39: 71 (从保强, 齐铂金, 周兴国, 罗军. 宇航材料工艺, 2009; 39: 71)
- [7] Cook G E, Eassa E H. *IEEE Trans Indust Applic*, 1985; 1A-21: 1294
- [8] Cong B Q. *PhD Thesis*, Beihang University, Beijing, 2009 (从保强. 北京航空航天大学博士学位论文, 北京, 2009)
- [9] Guo X M, Yang C G, Qian B N, Xu Q, Zhang H Y. *Acta Metall Sin*, 2005; 41: 397 (国旭明, 杨成刚, 钱百年, 徐强, 张洪延. 金属学报, 2005; 41: 397)
- [10] Hunt J D. *Mater Sci Eng*, 1984; A65: 75
- [11] Sun J S, Wu C S. *Acta Phys Sin*, 2001; 50: 209 (孙俊生, 武传松. 物理学报, 2001; 50: 209)
- [12] Kou S, Le Y. *Weld J*, 1986; 65: 305
- [13] Yunjia H, Frost R H, Olson D L, Edwards G R. *Weld J*, 1989; 68: 280
- [14] Kou S, Le Y. *Metall Trans*, 1988; 19A: 1075
- [15] Dvornak M J, Frost R H, Olson D L. *Weld J*, 1991; 70: 271
- [16] Hao C Y, Yu E J, Ying H J, Shi C G. *Acta Metall Sin*, 1996; 32: 647 (郝传勇, 于尔靖, 应慧筠, 施成根. 金属学报, 1996; 32: 647)
- [17] Wang Q, He J C, Kawai S, Iwai K, Asai S. *Acta Metall Sin*, 2002; 38: 961 (王强, 赫冀成, 川合悟, 岩井一彦, 浅井滋生. 金属学报, 2002; 38: 961)
- [18] Yu E J, Hao C Y, Ying H J, Shi C G, Li G H. *Trans Chin Weld Inst*, 1996; 17: 1 (于尔靖, 郝传勇, 应慧筠, 施成根, 李敢红. 焊接学报, 1996; 17: 1)
- [19] Gutierrez A, Lippold J C. *Weld J*, 1998; 77: 123
- [20] Reddy G M, Gokhale A A. *J Mater Sci*, 1997; 32: 4117
- [21] Huang C, Kou S. *Weld J*, 2000; 79: 113
- [22] Huang C, Kou S. *Weld J*, 2001; 80: 9