

引文: 朱建鲁, 张捷, 李玉星, 等. 纯氢/掺氢管道密封圈与密封垫性能研究进展[J]. 油气储运, 2024, 43(7): 730-739.

ZHU Jianlu, ZHANG Jie, LI Yuxing, et al. Research progress on seal ring and gasket for pure hydrogen/hydrogen-enriched compressed natural gas pipeline[J]. Oil & Gas Storage and Transportation, 2024, 43(7): 730-739.

纯氢/掺氢管道密封圈与密封垫性能研究进展

朱建鲁 张捷 李玉星 刘翠伟 宁元星

中国石油大学(华东)储运与建筑工程学院

摘要:【目的】密封圈与密封垫是纯氢/掺氢管道安全运行不可或缺的密封元件,探究氢环境下密封圈与密封垫的性能对于管道的安全高效输送具有重要意义。【方法】梳理国内外关于密封圈与密封垫的研究进展,探讨分析了氢环境下常用密封材料、氢气渗透密封圈机理及伴随的吸氢膨胀现象与鼓泡断裂现象、非氢环境下垫片压缩回弹与蠕变松弛现象以及氢环境下垫片的氢脆等关键问题。【结果】目前关于非氢环境下密封圈与密封垫的性能研究较为成熟,而纯氢或掺氢管道的发展正处于初级阶段,对于纯氢或掺氢环境下密封圈与垫片密封性能研究尚不完善,存在许多薄弱环节亟待解决。【结论】氢气以分子形式渗透橡胶O形圈,施加气体压力与外界环境温度都会影响氢气渗透橡胶密封材料的进程,填充材料分别为炭黑与二氧化硅时橡胶材料吸氢量差异性较大,需进一步评价其他填充材料与添加剂种类对吸氢量的影响;橡胶密封材料在氢气环境下会产生体积膨胀现象,吸氢膨胀与鼓泡断裂为不同性质的体积膨胀,外界压力的突降为鼓泡断裂产生不可或缺的条件,当前鼓泡断裂主要以透明的三元乙丙橡胶为研究对象,需进一步研究其他与氢相容的橡胶材料的鼓泡断裂行为,进一步研究改变掺氢比对橡胶O形圈溶胀现象的影响规律;临氢环境下垫片的原位力学试验研究不足,需明确掺氢比与垫片力学性能参数之间的定量关系。(图3,表6,参61)

关键词: 氢渗透; 吸氢膨胀; 鼓泡断裂; 压缩回弹; 蠕变松弛

中图分类号: TE89

文献标识码: A

文章编号: 1000-8241(2024)07-0730-10

DOI: 10.6047/j.issn.1000-8241.2024.07.002

Research progress on seal ring and gasket for pure hydrogen/hydrogen-enriched compressed natural gas pipeline

ZHU Jianlu, ZHANG Jie, LI Yuxing, LIU Cuiwei, NING Yuanxing

College of Pipeline and Civil Engineering, China University of Petroleum (East China)

Abstract: 【Objective】 Seal rings and gaskets are deemed indispensable sealing components for the safe operation of pure hydrogen/hydrogen-enriched compressed natural gas pipelines. Therefore, investigating their performance in hydrogen environments holds great significance for the safe operation of these pipelines. 【Methods】 This study focused on reviewing the advancements in research concerning seal rings and gaskets both in China and abroad. It delved into pivotal aspects, including prevalent seal materials for hydrogen environments, the mechanism of hydrogen permeation through seal rings accompanied by hydrogen absorption induced swelling and blister fracture, as well as the compression resilience and creep relaxation of gaskets in non-hydrogen environments, and hydrogen embrittlement of gaskets within hydrogen environments. 【Results】 Current researches on the properties of seal rings and gaskets in non-hydrogen environments have achieved promising progress. However, since pure hydrogen or hydrogen-enriched compressed natural gas pipelines are still in the stage of initial development, researches on the properties of seal rings and gaskets in these environments are deficient, and many weak points relating to this area are requiring urgent care. 【Conclusion】 Hydrogen permeation through rubber O-rings occurs at the molecular level, and this process is influenced by gas pressure and external temperatures. Notably, carbon black and silicon dioxide, serving as filling materials, exhibit significant variations in hydrogen absorption within rubber materials. This necessitates a deeper examination of alternative filling materials and additives to understand their effects on hydrogen absorption. The volumetric expansion of rubber seal materials is observed in hydrogen environments, involving distinct mechanisms of swelling induced by hydrogen absorption and blister fracture. Acknowledging

sudden drops in ambient pressure as an indispensable condition for blister fracture and transparent EPDM rubber as the main object of the blister fracture research, this paper advocates further investigation into other hydrogen-compatible rubber materials and the impact of varying hydrogen blending ratios on O-ring swelling. It also underscores the deficiency of in-situ mechanical experimental research on gaskets in contact with hydrogen, emphasizing the crucial need to establish a quantifiable relationship between hydrogen blending ratios and the mechanical performance parameters of gaskets. (3 Figures, 6 Tables, 61 References)

Key words: hydrogen permeation, swelling induced by hydrogen absorption, blister fracture, compression resilience, creep relaxation

氢气是一种清洁高效的能源,被誉为现阶段最具发展潜力的二次能源^[1],采用纯氢/掺氢管道可实现氢气的大规模高效输送^[2-3]。纯氢/掺氢天然气管道研究正处于初级阶段,仍有诸多问题亟待解决。氢气在橡胶密封材料中的渗透率比在聚乙烯、聚氯乙烯等塑料材质中更高^[4],因此更容易发生泄漏。氢气渗透在橡胶密封圈中可导致密封圈吸氢膨胀,随着渗透过程进行,若外界氢压降低可能诱发密封圈鼓泡断裂,降低密封圈的使用寿命;长期处于氢气环境下的金属垫片内部会产生微小裂纹并产生氢脆现象,进而加速垫片失效,降低系统的安全稳定性,因此研究氢环境下密封圈与密封垫的性能对于纯氢/掺氢管道的安全运行具有重要意义。

基于上述问题,调研国内外相关研究,首先介绍了纯氢/掺氢天然气管道密封元件及相应材料,其次综述了密封圈性能研究,以橡胶O形圈为研究对象分析了氢渗透过程的影响因素及伴随的吸氢膨胀、鼓泡断裂现象,然后介绍了非氢环境下垫片压缩回弹性能、蠕变松弛等特性以及氢环境下的氢脆现象,最后提出国内外在管道密封方面存在的短板与建议。

1 纯氢/掺氢天然气管道常用密封材料

密封元件的性能优劣会影响管道输送的稳定性。截止阀与球阀是管道输送气体常用的控制阀,在切断工况下要求其无泄漏,但氢气分子质量小,易渗透控制阀的密封填料。对于法兰连接,介质压力脉动及附加载荷等因素与氢的耦合作用可能使得高应力区产生氢富集现象,长时间氢与应力的耦合作用可能会导致法兰密封面失效^[3],因此掺氢管道对设备密封性能有更高的要求。

管道常用密封元件为密封垫与密封圈,常见应用场合如下(图1、图2)。GB 50177—2005《氢气站设计规范》对氢气管道选用法兰密封面形式与垫片材质有

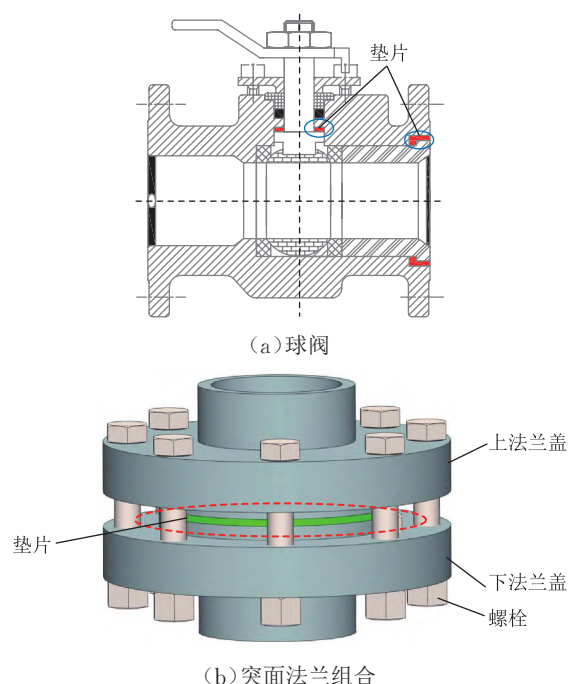


图1 密封垫常见应用场合示意图
Fig. 1 Schematic diagram of typical applications of seal gaskets

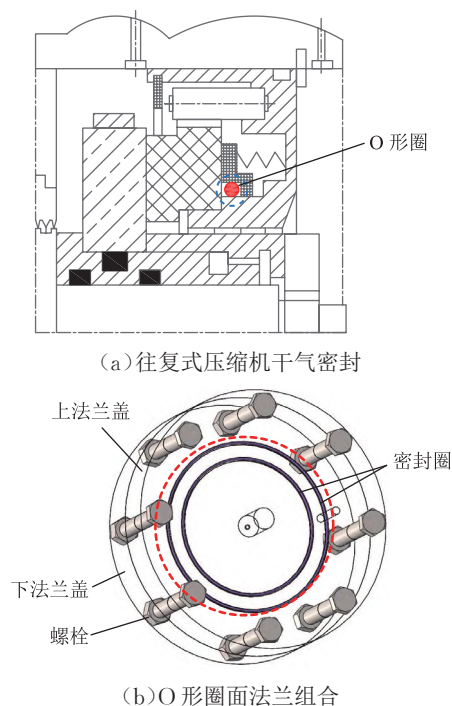


图2 密封圈常见应用场合示意图
Fig. 2 Schematic diagram of typical applications of seal rings

所规定(表 1, 其中 p_0 为设计压力)。杨浩骞^[5]指出管道压力容器、阀门以及外壳结合面等位置处平垫密封较为常见, 且垫片材料可为橡胶、聚四氟乙烯及高强石墨等非金属, 也可为铝、铜以及碳钢等金属材料。

表 1 氢气站管道法兰密封面形式与垫片材料统计表
Table 1 Sealing surface forms and gasket materials for pipe flanges at hydrogen stations

设计压力/MPa	法兰密封面形式	垫片材料
$p_0 < 2.5$	突面式	聚四氟乙烯板
$2.5 \leq p_0 \leq 10.0$	凹凸式或榫槽式	金属缠绕式垫片
$p_0 > 10.0$	凹凸式或梯形槽	硬钢纸板或退火紫铜板

常用密封圈形式主要有 V 形、Y 形、O 形等(表 2)。与其他形式的密封圈相比, O 形圈具有自紧密封与双向密封的特性, 因此其适用场合最为广泛。O 形圈主要用于静密封(如法兰连接件处密封)与往复运动密封(如压缩机活塞杆处密封与阀门阀杆处密封)。赵连元^[6]指出在压缩机干气密封处通常选用丁腈橡胶、氟橡胶等材质的 O 形圈。周池楼^[7]指出丁腈橡胶、氟橡胶以及氟硅橡胶与氢气具有较好的相容性, 因此更适用于纯氢/掺氢管道中。

表 2 常见密封圈分类及适用场景统计表
Table 2 Classification of typical seal rings and application scenarios

密封圈形式	密封圈材质	应用场合	适用范围
O 形圈	氟橡胶、丁腈橡胶、硅胶、双氟橡胶、三元乙丙橡胶等	静密封、往复运动密封	0.1~400 MPa, -60~200 °C
Y 形圈	氟橡胶、丁腈橡胶、氟橡胶等	往复运动密封	不高于 40 MPa, -30~80 °C
U 形圈	氟橡胶、丁腈橡胶、硅胶、双氟橡胶、三元乙丙橡胶等	往复运动密封	0~40 MPa, 30~110 °C
V 形圈	氟橡胶、丁腈橡胶等	转轴无压密封	最高工作压力可超过 60 MPa, -30~80 °C
D 形圈	氟橡胶、丁腈橡胶、硅胶、双氟橡胶、三元乙丙橡胶等	静密封、往复运动密封	0.1~400 MPa, -60~200 °C
孔用 XY 形圈	聚四氟乙烯橡胶、聚氢酯橡胶等	往复运动密封	不高于 32 MPa, -40~120 °C

2 密封圈性能

2.1 氢渗透机理

孙爱玲等^[8-10]对丁腈橡胶、三元乙丙橡胶等材料研究发现, 氢气在橡胶材料中以分子形式进行溶解-扩散的传输过程, 该过程分为 3 步: ①高压侧的气体溶解在

聚合物表面; ②气体分子在聚合物内扩散; ③聚合物低压侧的气体分子解吸附^[11]。氢气扩散过程遵循菲克第二定律^[12]。

Menon 等^[13]对比分析了丁腈橡胶、氟橡胶以及三元乙丙橡胶的渗透率、溶解度系数以及扩散率, 在 20 °C 下, 三元乙丙橡胶的渗透率、扩散率及溶解度系数最大, 氢渗透量最高, 但该研究所取温度较为单一, 测试结果是否适用于更高的温度有待验证。

Yamabe 等^[14]分析不同密封填料工况下三元乙丙橡胶吸氢量与压力的关系, 发现填充材料的尺寸与种类对三元乙丙橡胶吸氢量影响较大。在相同压力下随炭黑粒径尺寸增大, 三元乙丙橡胶的氢吸收量反而降低。在压力 0.1 MPa 下炭黑粒径从 19 nm 增至 66 nm, 三元乙丙橡胶的氢吸收量约降低 74.4%, 且填充二氧化硅的橡胶材料对氢气的吸收能力比填充炭黑的橡胶材料强。

为进一步揭示压力对橡胶吸氢量的影响, Yamabe 等^[10, 15]分别研究了 30 °C、23 °C 工况下三元乙丙橡胶与丁腈橡胶吸氢量与压力的关系, 结果表明当氢压不超过 10 MPa 时橡胶吸氢量与氢气压力呈线性关系, 且温度越高, 橡胶材料的吸氢量越大。Jung 等^[15]发现 23 °C 时丁腈橡胶的扩散系数随压力升高而减小, 三元乙丙橡胶的扩散系数随压力升高呈现先减再增后减的趋势。

橡胶密封圈允许氢气透过量越小, 密封件的密封性能越好, 通过改进填充材料种类、增大炭黑粒径等方式都能降低橡胶的吸氢量。目前关于橡胶材料组成以及压力如何影响氢渗透的研究较多, 结论较为成熟, 但关于橡胶密封材料的微观结构与添加剂对橡胶密封材料中氢气渗透过程的影响研究较为缺乏, 且鲜有实际管输条件下掺氢比对橡胶密封圈渗氢量的定量影响研究。

2.2 吸氢行为

2.2.1 吸氢膨胀

吸氢膨胀是指氢气溶解在橡胶 O 形圈内部时, 氢分子与橡胶材料分子链产生溶剂化效应^[16](溶质分子被溶剂分子紧密包围), 橡胶材料分子链之间的距离变宽, 进而使得氢分子渗透的空间增大, 造成橡胶密封圈材料体积膨胀增大的现象^[17]。处于氢环境下密封组合的密封过程主要包括预紧密封、密封件滑移、自紧密封、吸氢膨胀^[7]4 个阶段。为分析密封圈吸氢膨胀行

为,研究者通过开展试验、软件模拟计算等方式探究氢环境下密封组合的性能变化(表3)。

表3 密封圈吸氢膨胀行为研究进展统计表
Table 3 Research progress on swelling behavior induced by hydrogen absorption of seal rings

研究者	研究方法	研究结论
Yamabe 等 ^[18]	试验与有限元软件模拟相结合	吸氢膨胀后,O形圈表面开裂或断裂的概率增大
Zhou 等 ^[19]	ABAQUS有限元软件	随氢压升高,Mises 应力峰值从O形圈中间位置的左右两侧向密封沟槽的左下方与右下方两个方向转移
周池楼等 ^[9]	ABAQUS有限元软件	吸氢膨胀一方面可提高接触应力,有利;另一方面可增加Mises 应力,不利
Zhou 等 ^[20]	ABAQUS有限元软件	吸氢膨胀效应可提高密封圈与密封槽的接触宽度,提高组件的密封性能
王璐等 ^[21]	ABAQUS有限元软件	基于吸氢膨胀,高压储氢气瓶密封组合模型加入挡圈可提高系统的密封性能

为了衡量吸氢膨胀效应是否会引起密封圈的失效,可遵循以下两大密封准则^[22]:

$$\sigma_{\max} \geq p \tag{1}$$

式中: $\sigma_{\max}$ 为密封面上的最大接触应力,MPa; p 为施加气体压力,MPa。

$$\sigma_m \leq [\sigma] \tag{2}$$

式中: σ_m 为密封件上的最大 Mises 应力,MPa; $[\sigma]$ 为密封材料的许用应力,MPa。

分析可知,吸氢膨胀效应将在一定程度上增大密封圈的接触应力与接触宽度,进而提高密封组合的密封性能;但 Mises 应力增大会加速密封圈表面断裂,导致应力松弛,降低密封圈的密封性能,缩短其使用寿命。在后续研究中需基于吸氢膨胀效应合理设计密封结构的尺寸参数,放大膨胀效应的优点并规避其弊端。

2.2.2 鼓泡断裂

橡胶聚合物材料在压力工况下容易渗透氢气。当聚合物饱和时,若外部环境压力突然减小,氢气会从橡胶聚合物材料的内部泄放至外部,这一过程会促使橡胶密封材料内部形成气泡^[23]。随着时间推移,气泡的尺寸与数量不断累积最终成为裂纹^[24]而导致密封失效,此现象被称为鼓泡断裂(或爆破减压失效、气体快速减压、气蚀损伤)。Yamabe 等^[10]提出一次减压下的鼓泡断裂模型,指出气泡的生长有两方面原因:一是氢气从气泡内部通过基体(除填料以外的橡胶复合材料

成分)扩散到橡胶自由表面之间的竞争,二是橡胶基体力学性能对三轴载荷的抵抗。Yamabe 等^[25]通过原子力显微镜试验发现,高压氢减压可引起三元乙丙橡胶产生亚微米级与微米级断裂。声发射法(Acoustic Emission, AE)被认为是检测密封橡胶材料内部断裂的有效手段,Yamabe 等^[26]基于声发射法研究发现暴露于 0.7 MPa 氢气环境下三元乙丙橡胶试样产生的 AE 信号是由于气泡引起橡胶材料小规模破裂。Koga 等^[27]将三元乙丙橡胶密封圈置于耐压的玻璃可视容器中,通过光学显微镜观察,当施加气体介质分别为氮气、氦气、氢气时,气体压力从 10 MPa 降至大气压时密封圈内部变化,发现透明三元乙丙橡胶 O 形圈在氮气中鼓泡断裂现象最严重,而在氢气中的鼓泡断裂损伤较轻微。Yamabe 等^[18]将三元乙丙橡胶置于 100 °C 氢环境中循环升降压,发现较高温度将使橡胶材料的机械性能恶化,加速产生内部裂纹。橡胶密封材料鼓泡断裂进程的影响因素较多,李恩军等^[28]对比了常见填料的抗气体快速减压性能:芳纶浆粕>碳纳米管>四氟乙烯微粉>纯炭黑。以下揭示了气体快速减压引起的密封圈裂纹扩展速率与不同因素之间的相关性(表4)。

表4 橡胶密封圈材料鼓泡断裂裂纹扩展速率与不同因素的相关性分析表

Table 4 Correlation analysis between crack growth rate of blister fracture in rubber seal ring material and various factors

研究者	裂纹扩展速率与其影响因素的相关性
Rutherford 等 ^[29]	温度(正相关)
Yamabe 等 ^[30]	氢气压力(正相关)
Yamabe 等 ^[31]	碳化层含量(正相关)、炭黑初级粒度(负相关)
Fujiwara 等 ^[32]	减压时间(负相关)、氢气扩散速率(负相关)
陈明战等 ^[33]	泄压速度(正相关)、O形圈缺陷深度(正相关)
陈明战 ^[34]	O形圈截面直径(正相关)

鼓泡断裂行为与吸氢膨胀行为是两种体积膨胀行为,橡胶密封材料中吸氢膨胀行为的产生不需外界压力突然降低,但外界压力突降是鼓泡断裂行为产生的一个关键条件。目前,关于鼓泡断裂行为的研究大多集中在透明的三元乙丙橡胶上,缺乏针对氟橡胶等其他橡胶鼓泡断裂行为的定量研究。

3 密封垫性能

密封垫、法兰以及螺栓是化工压力容器与管道连接常用的密封元件^[35],三者相互配合,具有拆卸方便、

密封性能良好以及可替换性强等优点^[36],其中垫片(图 3)的性能是决定系统安全可靠性的关键因素。

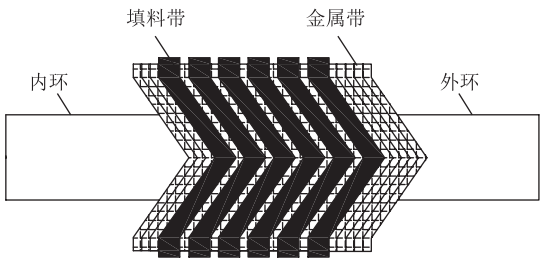


图 3 管道常用金属缠绕垫片的二维结构示意图
Fig. 3 Two-dimensional structure of typical metal spiral wound gasket for pipeline

3.1 压缩回弹性能(非氢环境)

压缩回弹性能^[37-39]是反映垫片密封性的重要力学性能。压缩性象征垫片补偿法兰表面缺陷的能力,回弹性象征垫片适应压力、温度等变化的能力^[40]。利用垫片的压缩回弹特性可实现法兰-螺栓-垫片组合的密封^[41-42],以下列举了垫片压缩回弹性能的常见影响因素(表 5)。

表 5 垫片压缩回弹性能的影响因素统计表
Table 5 Factors affecting compression resilience property of gaskets

影响因素	影响结果
压力波动频率 ^[43]	压力波动频繁导致垫片塑性变形增大,回弹性能下降
压缩载荷 ^[44]	压缩载荷增大,垫片的压缩性能提高,但回弹性能降低
温度 ^[45]	温度升高,垫片的回弹模量增大,更易被压缩与回弹
施加压力 ^[37]	施加压力增大,垫片抵抗变形的能力增强,但回弹性能降低
加载速率 ^[46]	加载速率增加,垫片的最大压缩量减小,压缩模量增大
垫片缠绕密度 ^[47]	金属缠绕垫片的缠绕密度增大,垫片压缩变形量减小
材料组成 ^[40]	柔性石墨组合垫片的压缩回弹性能普遍优于聚四氟乙烯组合垫片
石墨密度 ^[48]	石墨密度增大,柔性石墨波齿复合垫片的压缩率减小,而回弹率增大

GB/T 12622—2008《管法兰用垫片压缩率和回弹率试验方法》对垫片压缩率 C 与回弹率 R_e 的计算公式进行了说明,其中压缩率 C 表征垫片承载能力,回弹率 R_e 表征垫片对密封面分离后的补偿能力,体现垫片的回弹性能。 C 、 R_e 的表达式为:

$$C = \frac{l_1}{h_0} \times 100\% \tag{3}$$

$$R_e = \frac{l_1 - l_2}{l_1} \times 100\% \tag{4}$$

式中: l_1 为总载荷下的压缩量,mm; h_0 为垫片厚度,mm; l_2 为垫片在卸载后的压缩量,mm。

3.2 蠕变松弛性能(非氢环境)

垫片蠕变是指在螺栓法兰连接系统中,螺栓预紧使得垫片承受一定的载荷且其厚度减小,但是装置工作一段时间后,在并未继续增大载荷的情况下垫片厚度却持续减小的现象^[49]。垫片在长时间的应力作用下都会产生蠕变,使其弹性变形消失,引起连接系统中各个受力元件的应力松弛^[38],从而导致连接系统密封失效,因此减缓垫片蠕变这一问题亟待解决。

垫片蠕变一般经历 3 个典型阶段:①初始蠕变阶段,一般持续时间较短且蠕变速率随时间延长而减小;②稳定蠕变阶段,通常持续时间较长且蠕变速率基本恒定不变;③蠕变加速阶段,蠕变速率快速上升,可导致材料失效^[39]。依据《法兰用密封垫片实用手册》,垫片蠕变量的计算式如下:

$$\frac{D_G}{D_K} = 1 + (B_R + C_R T) \ln t \tag{5}$$

式中: D_G 为垫片蠕变量,mm; D_K 为垫片位移,mm; B_R 、 C_R 均为回归系数,其值参考文献[50]; t 为试验时间,s; T 为试验温度,℃。

垫片蠕变松弛行为将影响密封系统的密封性能以及管道系统的安全运行,为此,国内外学者们针对非氢环境下垫片的蠕变松弛特性开展了大量研究(表 6)^[51-57],垫片厚度、温度以及预紧力等因素都会影响垫片的蠕变性能。郑兴等^[58]研究不同材料垫片在 200℃、工作时长 72 h 的松弛率发现,垫片材质也是影响垫片应力松弛率的关键因素,垫片材质不同,其在高温下应力松弛率差别很大。石墨材质的垫片应力松弛率较低,其中增强石墨复合垫片的松弛率最低为 0.9%;非石棉纤维橡胶与改性聚四氟乙烯的应力松弛率最高,为 31.3%~46.7%。

压缩回弹特性越好,蠕变松弛现象发生的概率越低,垫片的密封性能越好。需指出的是,施加介质为纯氢或掺氢天然气时垫片的上述性能是否会产生变化需进一步研究。

3.3 氢脆

金属垫片在加氢装置中常用作密封元件,在一定条件下会产生氢脆失效现象。王小宁等^[59]采用扫描电子显微镜对某一加氢装置用 06Cr13 钢垫片断口微观形貌进行分析发现,由于选用垫片碳含量超标,氢原

表 6 垫片蠕变松弛行为研究结果统计表
Table 6 Research outcomes on creep relaxation behavior of gaskets

研究者	研究方法	研究结论
Kobayashi 等 ^[51]	模拟与试验相结合	垫片的蠕变松弛特性会导致螺栓载荷一定程度的降低,进而使得密封组件的密封性能降低
谢苏江等 ^[52]	试验研究	随垫片厚度增加,蠕变松弛率呈线性增加,垫片的抗蠕变松弛能力下降
顾伯勤等 ^[53]	试验研究	垫片的蠕变量随温度升高而增大
Yamaguchi 等 ^[54]	数值模拟	三维黏弹性模型相比传统单轴的黏弹性模型,更能精确评估高温下非石棉压缩纤维片板垫片的蠕变性能
屈春叶等 ^[55]	ANSYS 有限元软件模拟	波齿复合垫片在波谷处的蠕变应变最大,在齿尖区域的蠕变应变最小
Zhou 等 ^[56]	通过 Fortran 语言编写蠕变用户程序,ABAQUS 软件模拟	发生蠕变后垫片密封应力显著降低
马俊宏等 ^[57]	试验研究	石墨垫片的蠕变量随预紧力增加呈现先增后减趋势

子在应力诱导下聚集在晶界及晶界析出相附近,使得垫片产生微裂纹进而导致延迟开裂,在一定程度上加速了垫片失效。镀锌是金属垫片防锈的一个重要手段,刘允棠等^[60]指出当镀液的 pH 值较低时,垫片基体呈现出原子面,若长期受到介质的冲击作用与镀液的机械化学活化效应,基体表面会有少量氢析出,导致镀锌垫片存在裂纹或断裂隐患。肖年等^[61]指出军工常用的 65Mn 钢镀锌垫片(硬度超过 45 HRC)未彻底除氢时易发生氢脆断裂,降低垫片硬度、延长除氢时间可在一定程度上防止氢脆。因此,金属垫片防锈处理时需将氢彻底清除,防止或减缓垫片氢脆现象的发生,延长垫片的使用寿命,提高管道输送的安全性。

4 结论

作为管道密封的关键元件,密封圈或密封垫的性能影响纯氢/掺氢天然气管道输送安全。通过调研大量文献,对氢环境下常用密封材料、氢气渗透密封圈机理及伴随的吸氢膨胀现象与鼓泡断裂现象、非氢环境下垫片压缩回弹与蠕变松弛现象以及氢环境下垫片的氢脆等关键问题进行了探讨分析。目前,非氢环境下密封圈或密封垫的性能研究较为成熟,纯氢/掺氢天然气管道正处于初步发展阶段,相关密封圈或垫片密封性能研究尚不完善。为此,建议加强以下 4 个方面的研究:

- 1) 填充材料会影响橡胶密封材料渗透氢气进程,未来应加强其他填充材料种类和添加剂对氢气的渗透过程研究,揭示该过程下密封材料微观结构的变化,得出适用于纯氢/掺氢环境下的最优密封材料。
- 2) 目前密封圈鼓泡断裂行为研究大多集中在三元乙丙橡胶上,应加大氢环境下其他常用橡胶密封材料

的研究力度,分析鼓泡断裂后橡胶密封圈密封性能参数的定量变化规律。

- 3) 关于氢气对密封圈影响的研究较多,其力学性能研究主要集中在高压、非原位条件下,与实际的原位试验数据存在一定误差,应加大原位试验研究力度。
- 4) 今后应开展氢环境下密封垫压缩回弹特性和蠕变松弛特性研究,揭示掺氢比与垫片压缩回弹量、蠕变量的定量关系。

参考文献:

[1] 刘方,杨宏伟,韩银杉,彭延建,杨玉霞. 天然气掺氢比对终端用气设备使用性能的影响[J]. 低碳化学与化工, 2023, 48(2): 174-178. DOI: 10.3969/j.issn.1001-9219.2023.02.023.

LIU F, YANG H W, HAN Y S, PENG Y J, YANG Y X. Effect of hydrogen-blending ratio of natural gas on performance of terminal gas equipment[J]. Natural Gas Chemical Industry, 2023, 48(2): 174-178.

[2] 刘啸奔,张东,武学健,艾红倪,陈朋超,闫锋,等. 掺氢天然气管道完整性评价技术的进展与挑战[J]. 力学与实践, 2023, 45(2): 245-259. DOI: 10.6052/1000-0879-22-636.

LIU X B, ZHANG D, WU X J, AI H N, CHEN P C, YAN F, et al. Advances and challenges of hydrogen-blended natural gas pipeline integrity assessment technology[J]. Mechanics in Engineering, 2023, 45(2): 245-259.

[3] 李凤,董绍华,陈林,朱喜平,韩子从. 掺氢天然气长距离管道输送安全关键技术进展[J]. 力学与实践, 2023, 45(2): 230-244. DOI: 10.6052/1000-0879-22-579.

LI F, DONG S H, CHEN L, ZHU X P, HAN Z C. Key safety technologies and advances in long-distance pipeline transportation of hydrogen blended natural gas[J]. Mechanics in Engineering, 2023, 45(2): 230-244.

- [4] 于子龙, 张立业, 宁晨, 孙钢, 刘泓芳, 安振华, 等. 天然气掺氢管道输运及终端应用[J]. 力学与实践, 2022, 44(3): 491-502. DOI: 10.6052/1000-0879-21-558.
- YU Z L, ZHANG L Y, NING C, SUN G, LIU H F, AN Z H, et al. Natural gas hydrogen mixing pipeline transportation and terminal application[J]. Mechanics in Engineering, 2022, 44(3): 491-502.
- [5] 杨浩骞. 天然气管道设备静密封与无泄漏管理分析[J]. 中国石油和化工标准与质量, 2023, 43(10): 53-55. DOI: 10.3969/j.issn.1673-4076.2023.10.019.
- YANG H Q. Static tightness and leakage control in natural gas pipeline and equipment[J]. China Petroleum and Chemical Standard and Quality, 2023, 43(10): 53-55.
- [6] 赵连元. 干气密封在气分装置液态烃泵中的应用[J]. 石油和化工设备, 2021, 24(10): 123-126. DOI: 10.3969/j.issn.1674-8980.2021.10.034.
- ZHAO L Y. Application of dry gas seal in liquid hydrocarbon pump of gas separator[J]. Petro & Chemical Equipment, 2021, 24(10): 123-126.
- [7] 周池楼. 140 MPa 高压氢气环境材料力学性能测试装置研究[D]. 杭州: 浙江大学, 2015.
- ZHOU C L. Research on material mechanics properties testing equipment in 140 MPa high-pressure hydrogen environment[D]. Hangzhou: Zhejiang University, 2015.
- [8] 孙爱玲. 气体分子在聚砜膜中溶解扩散过程的分子模拟[D]. 天津: 天津理工大学, 2014.
- SUN A L. Molecular simulation of diffusion and solution of gas molecules in polysulfone membranes[D]. Tianjin: Tianjin University of Technology, 2014.
- [9] 周池楼, 陈国华. O型橡胶密封圈高压氢气环境中特性表征[J]. 化工学报, 2018, 69(8): 3557-3564. DOI: 10.11949/j.issn.0438-1157.20171691.
- ZHOU C L, CHEN G H. Characterization of rubber O-ring seal in high-pressure gaseous hydrogen[J]. CIESC Journal, 2018, 69(8): 3557-3564.
- [10] YAMABE J, NISHIMURA S. Influence of fillers on hydrogen penetration properties and blister fracture of rubber composites for O-ring exposed to high-pressure hydrogen gas[J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2009, 34(4): 1977-1989. DOI: 10.1016/j.ijhydene.2008.11.105.
- [11] 刘翠伟, 张睿, 田磊, 王财林, 徐修赛, 裴业斌, 等. 非金属管材临氢环境下相容性研究进展[J]. 天然气工业, 2022, 42(9): 145-156. DOI: 10.3787/j.issn.1000-0976.2022.09.014.
- LIU C W, ZHANG R, TIAN L, WANG C L, XU X S, PEI Y B, et al. Research progress on compatibility of non-metallic pipes in hydrogen environment[J]. Natural Gas Industry, 2022, 42(9): 145-156.
- [12] BARTH R R, SIMMONS K L, MARCHI C S. Polymers for hydrogen infrastructure and vehicle fuel systems: applications, properties, and gap analysis: SAND2013-8904[R]. Livermore: Sandia National Laboratories, 2013: 1-13.
- [13] MENON N C, KRUIZENGA A M, ALVINE K J, SAN MARCHI C, NISSEN A, BROOKS K. Behaviour of polymers in high pressure environments as applicable to the hydrogen infrastructure[C]. Vancouver: ASME 2016 Pressure Vessels and Piping Conference, 2016: V06BT06A037.
- [14] YAMABE J, NISHIMURA S. Influence of carbon black on decompression failure and hydrogen permeation properties of filled ethylene-propylene-diene-methylene rubbers exposed to high-pressure hydrogen gas[J]. Journal of Applied Polymer Science, 2011, 122(5): 3172-3187. DOI: 10.1002/app.34344.
- [15] JUNG J K, KIM K T, CHUNG K S. Two volumetric techniques for determining the transport properties of hydrogen gas in polymer[J]. Materials Chemistry and Physics, 2022, 276: 125364. DOI: 10.1016/j.matchemphys.2021.125364.
- [16] 罗浩文, 刘磊, 王语馨, 魏宇航. 溶剂化效应在有机反应中的作用[J]. 广州化工, 2020, 48(16): 22-25. DOI: 10.3969/j.issn.1001-9677.2020.16.008.
- LUO H W, LIU L, WANG Y X, WEI Y H. The function of solvation effect in organic reactions[J]. Guangzhou Chemical Industry, 2020, 48(16): 22-25.
- [17] ONO H, FUJIWARA H, NISHIMURA S. Penetrated hydrogen content and volume inflation in unfilled NBR exposed to high-pressure hydrogen—What are the characteristics of unfilled-NBR dominating them?[J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2018, 43(39): 18392-18402. DOI: 10.1016/j.ijhydene.2018.08.031.
- [18] YAMABE J, KOGA A, NISHIMURA S. Failure behavior of rubber O-ring under cyclic exposure to high-pressure hydrogen gas[J]. Engineering Failure Analysis, 2013, 35: 193-205. DOI: 10.1016/j.engfailanal.2013.01.034.
- [19] ZHOU C L, ZHENG J Y, GU C H, ZHAO Y Z, LIU P F. Sealing performance analysis of rubber O-ring in high-pressure gaseous hydrogen based on finite element method[J].

- International Journal of Hydrogen Energy, 2017, 42(16): 11996-12004. DOI: 10.1016/j.ijhydene.2017.03.039.
- [20] ZHOU C L, CHEN G H, LIU P F. Finite element analysis of sealing performance of rubber D-ring seal in high-pressure hydrogen storage vessel[J]. Journal of Failure Analysis and Prevention, 2018, 18(4): 846-855. DOI: 10.1007/s11668-018-0472-y.
- [21] 王璐, 徐鹏, 陶家辉. 高压氢气环境下橡胶 O 形圈静密封结构有限元分析[J]. 液压与气动, 2022, 46(7): 143-149. DOI: 10.11832/j.issn.1000-4858.2022.07.019.
- WANG L, XU P, TAO J H. Finite element analysis of O-ring static seal structure in high-pressure gaseous hydrogen[J]. Chinese Hydraulics & Pneumatics, 2022, 46(7): 143-149.
- [22] 韩宁. 动密封系统密封性能分析[D]. 太原: 中北大学, 2014.
- HAN N. Performance analysis of dynamic sealing system[D]. Taiyuan: North University of China, 2014.
- [23] MELNICHUK M, THIÉBAUD F, PERREUX D. Non-dimensional assessments to estimate decompression failure in polymers for hydrogen systems[J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2020, 45(11): 6738-6744. DOI: 10.1016/j.ijhydene.2019.12.107.
- [24] LAKE G J, LINDLEY P B. Cut growth and fatigue of rubbers. II. Experiments on a noncrystallizing rubber[J]. Journal of Applied Polymer Science, 1964, 8(2): 707-721. DOI: 10.1002/app.1964.070080212.
- [25] YAMABE J, NISHIMURA S. Nanoscale fracture analysis by atomic force microscopy of EPDM rubber due to high-pressure hydrogen decompression[J]. Journal of Materials Science, 2011, 46(7): 2300-2307. DOI: 10.1007/s10853-010-5073-4.
- [26] YAMABE J, MATSUMOTO T, NISHIMURA S. Application of acoustic emission method to detection of internal fracture of sealing rubber material by high-pressure hydrogen decompression[J]. Polymer Testing, 2011, 30(1): 76-85. DOI: 10.1016/j.polymertesting.2010.11.002.
- [27] KOGA A, YAMABE T, SATO H, UCHIDA K, NAKAYAMA J, YAMABE J, et al. A visualizing study of blister initiation behavior by gas decompression[J]. Tribology Online, 2013, 8(1): 68-75. DOI: 10.2474/trol.8.6.
- [28] 李恩军, 张勇, 王仕峰. 高强度抗气体快速减压氟橡胶材料的配方研究[J]. 特种橡胶制品, 2022, 43(6): 1-5, 9. DOI: 10.16574/j.cnki.issn1005-4030.2022.06.006.
- LI E J, ZHANG Y, WANG S F. Study on the recipes of fluoroelastomer compounds with high strength and rapid gas decompression resistance[J]. Special Purpose Rubber Products, 2022, 43(6): 1-5, 9.
- [29] RUTHERFORD S W, KURTZ R E, SMITH M G, HONNELL K G, COONS J E. Measurement and correlation of sorption and transport properties of ethylene-propylene-diene monomer (EPDM) elastomers[J]. Journal of Membrane Science, 2005, 263(1/2): 57-65. DOI: 10.1016/j.memsci.2005.04.015.
- [30] YAMABE J, NISHIMURA S, KOGA A. A study on sealing behavior of rubber O-ring in high pressure hydrogen gas[J]. SAE International Journal of Materials and Manufacturing, 2009, 2(1): 452-460. DOI: 10.4271/2009-01-0999.
- [31] YAMABE J, MATSUMOTO T, NISHIMURA S. Internal crack initiation and growth behavior and the influence of shape of specimen on crack damage of EPDM for sealing high-pressure hydrogen gas[J]. Journal of the Society of Materials Science, Japan, 2010, 59(12): 956-963. DOI: 10.2472/jsms.59.956.
- [32] FUJIWARA H, YAMABE J, NISHIMURA S. Evaluation of the change in chemical structure of acrylonitrile butadiene rubber after high-pressure hydrogen exposure[J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2012, 37(10): 8729-8733. DOI: 10.1016/j.ijhydene.2012.02.084.
- [33] 陈明战, 王素玲, 姜民政, 李金波. 气体快速减压橡胶失效计算模型建立及分析[J]. 石油机械, 2020, 48(10): 142-148. DOI: 10.16082/j.cnki.issn.1001-4578.2020.10.021.
- CHEN M Z, WANG S L, JIANG M Z, LI J B. The establishment of computational model and analysis of elastomer failure induced by rapid gas decompression[J]. China Petroleum Machinery, 2020, 48(10): 142-148.
- [34] 陈明战. 气体快速减压下橡胶破裂失效机理研究[D]. 大庆: 东北石油大学, 2021.
- CHEN M Z. Mechanism research of rubber fracturing failure induced by rapid gas decompression[D]. Daqing: Northeast Petroleum University, 2021.
- [35] 苏美玉. 流体动密封技术应用于石油化工设备的分析[J]. 化学工程与装备, 2015(8): 191-192.
- SU M Y. Analysis of fluid dynamic sealing technology applied to petrochemical equipment[J]. Chemical Engineering & Equipment, 2015(8): 191-192.
- [36] 高旭, 曾国英. 螺栓法兰连接结构有限元建模及动力学分析[J].

- 润滑与密封, 2010, 35(4): 68-71. DOI: 10.3969/j.issn.0254-0150.2010.04.016.
- GAO X, ZENG G Y. The finite element modeling and dynamic analysis of bolts-flanges connecting structure[J]. Lubrication Engineering, 2010, 35(4): 68-71.
- [37] 王修慧, 李慧芳, 钱才富. 金属缠绕垫片结构参数对压缩-回弹性能的影响[J]. 计算机辅助工程, 2021, 30(3): 55-60, 72. DOI: 10.13340/j.cae.2021.03.010.
- WANG X H, LI H F, QIAN C F. Effect of structural parameters of metal spiral gasket on compression-rebound performance[J]. Computer Aided Engineering, 2021, 30(3): 55-60, 72.
- [38] 励行根, 励勇, 励洁, 宋炜, 蔡仁良. 核电站石墨密封垫片的试验研究[J]. 液压气动与密封, 2010, 30(11): 29-32. DOI: 10.3969/j.issn.1008-0813.2010.11.010.
- LI H G, LI Y, LI J, SONG W, CAI R L. Experiment research of graphite sealing gaskets for nuclear power plant[J]. Hydraulics & Pneumatics & Seals, 2010, 30(11): 29-32.
- [39] 章兰珠, 毕乐文. 考虑高温蠕变的螺栓和法兰材料的选配[J]. 润滑与密封, 2021, 46(9): 68-74. DOI: 10.3969/j.issn.0254-0150.2021.09.011.
- ZHANG L Z, BI L W. Selection of bolt and flange materials with considering high temperature creep[J]. Lubrication Engineering, 2021, 46(9): 68-74.
- [40] 陈斐. 低温下具有覆盖层的齿形金属垫片压缩回弹性能研究[D]. 兰州: 兰州理工大学, 2021.
- CHEN F. Study on compressive resilience of metallic toothed composite gasket at low temperature[D]. Lanzhou: Lanzhou University of Technology, 2021.
- [41] 马璇涛. 常温下金属垫片压缩回弹曲线数值模拟[J]. 广州化工, 2021, 49(4): 48-50. DOI: 10.3969/j.issn.1001-9677.2021.04.016.
- MA X T. Numerical simulation of compression springback curve of metal gasket at room temperature[J]. Guangzhou Chemical Industry, 2021, 49(4): 48-50.
- [42] 殷小明. 基于石墨垫片的压缩回弹特性研究进展[J]. 橡塑技术与装备, 2023, 49(3): 29-32. DOI: 10.13520/j.cnki.rpte.2023.03.006.
- YIN X M. Research progress of compression and rebound characteristics based on graphite gasket[J]. China Rubber/Plastics Technology and Equipment, 2023, 49(3): 29-32.
- [43] DONG X L, ZHOU F, JIANG W C, XIE Y T, ZHANG Y P, XIE X F, et al. Failure analysis of the conical gaskets in ultra-high pressure pipeline sealing devices: Experiment and numerical simulation[J]. Engineering Failure Analysis, 2022, 133: 105946. DOI: 10.1016/j.engfailanal.2021.105946.
- [44] SUN Y, ZHANG Y, CHEN Z Y, LIN X C, ZHAO X H, LI Y J, et al. Investigation on compression-springback performance of the SUS301 stainless steel gasket considering the residual stress[J]. Materials Today Communications, 2022, 33: 104296. DOI: 10.1016/j.mtcomm.2022.104296.
- [45] 周期律. 核级石墨密封垫片的循环压缩回弹及蠕变性能研究[D]. 成都: 西南交通大学, 2020.
- ZHOU Q L. Study on cyclic compression rebound and creep properties of nuclear graphite gasket[D]. Chengdu: Southwest Jiaotong University, 2020.
- [46] 郑小涛, 文翔, 桑聪, 喻九阳, 徐建民. 高温波齿复合垫片的循环压缩回弹性能[J]. 武汉工程大学学报, 2016, 38(4): 382-385, 398. DOI: 10.3969/j.issn.1674-2869.2016.04.013.
- ZHENG X T, WEN X, SANG C, YU J Y, XU J M. Cyclic Compression-Resilience of flexible graphite corrugated metal gaskets at high temperature[J]. Journal of Wuhan Institute of Technology, 2016, 38(4): 382-385, 398.
- [47] VEIGA J C, CIPOLATTI C F, KAVANAGH N, REEVES D. The influence of winding density in the sealing behavior of spiral wound gaskets[C]. Baltimore: ASME 2011 Pressure Vessels and Piping Conference, 2011: 103-111.
- [48] 李军, 李翔, 何兴建. 柔性石墨波齿复合垫片压缩回弹性能研究[J]. 化工科技, 2015, 23(5): 21-23. DOI: 10.3969/j.issn.1008-0511.2015.05.005.
- LI J, LI X, HE X J. Compressibility and resilience performance of flexible graphite gaskets reinforced by corrugated metal sheet[J]. Science & Technology in Chemical Industry, 2015, 23(5): 21-23.
- [49] 文翔. 高温疲劳载荷下 PTFE 垫片的变形及密封性能[D]. 武汉: 武汉工程大学, 2017.
- WEN X. Deformation and sealing performance of PTFE gasket under high temperature fatigue loading[D]. Wuhan: Wuhan Institute of Technology, 2017.
- [50] 张增禧, 王曙, 顾伯勤, 程梅. 垫片高温性能及其表示方法[J]. 化工设备与管道, 2001, 38(4): 63-64. DOI: 10.3969/j.issn.1009-3281.2001.04.019.
- ZHANG Z X, WANG S, GU B Q, CHENG M. Properties of gasket in high temperature and expression method[J]. Process

- Equipment & Piping, 2001, 38(4): 63-64.
- [51] KOBAYASHI T, NISHIDA T, YAMANAKA Y. Effect of Creep-Relaxation characteristics of gaskets on the bolt loads of gasketed joints[C]. Cleveland: ASME 2003 Pressure Vessels and Piping Conference, 2003: 111-118.
- [52] 谢苏江, 蔡仁良. 压缩非石棉纤维垫片密封材料的蠕变松弛行为的试验研究[J]. 流体机械, 2000, 28(5): 10-13. DOI: 10.3969/j.issn.1005-0329.2000.05.003.
- XIE S J, CAI R L. Creep and relaxation behavior of compressed non-asbestos fiber reinforced rubber sheet gasket materials[J]. Fluid Machinery, 2000, 28(5): 10-13.
- [53] 顾伯勤, 时黎霞, 陆晓峰. 不锈钢柔性石墨缠绕垫片的高温性能研究[J]. 石油机械, 2000, 28(2): 13-16. DOI: 10.3969/j.issn.1001-4578.2000.02.005.
- GU B Q, SHI L X, LU X F. Investigation of high-temperature performances of spiral-wound gaskets with flexible graphite filler[J]. China Petroleum Machinery, 2000, 28(2): 13-16.
- [54] YAMAGUCHI A, TSUJI H, HONDA T. Evaluation of creep properties for non-asbestos compressed fiber sheet gaskets at elevated temperature using 3-D viscoelasticity model[J]. Journal of High Pressure Institute of Japan, 2010, 48(2): 61-69. DOI: 10.11181/hpi.48.61.
- [55] 屈春叶, 李力驳. 柔性石墨金属波齿复合垫片金属骨架高温蠕变性能研究[J]. 山东化工, 2017, 46(24): 103-109. DOI: 10.19319/j.cnki.issn.1008-021x.2017.24.043.
- QU C Y, LI L B. Research on high-temperature creep performance of flexible graphite covered wave-serrated metal gaskets metal frame[J]. Shandong Chemical Industry, 2017, 46(24): 103-109.
- [56] ZHOU W B, WANG H. Study on sealing performance of bolted flange structure after creep based on ABAQUS[J]. IOP Conference Series: Earth and Environmental Science, 2021, 687(1): 012150. DOI: 10.1088/1755-1315/687/1/012150.
- [57] 马俊宏, 沈火明, 刘娟, 王宇星, 傅孝龙. 核级石墨密封垫片压缩蠕变性能研究[J]. 重庆理工大学学报(自然科学), 2022, 36(11): 161-166. DOI: 10.3969/j.issn.1674-8425(z).2022.11.019.
- MA J H, SHEN H M, LIU J, WANG Y X, FU X L. Investigations on compression creep performance of nuclear-grade graphite gaskets[J]. Journal of Chongqing University of Technology (Natural Science), 2022, 36(11): 161-166.
- [58] 郑兴, 冯梅, 应道宴, 蔡暖姝. 法兰接头在高温下的应力松弛分布测定[J]. 化工设备与管道, 2018, 55(6): 66-69. DOI: 10.3969/j.issn.1009-3281.2018.06.016.
- ZHENG X, FENG M, YING D Y, CAI N S. Measurement of stress relaxation distribution in flange joint in elevated temperature[J]. Process Equipment & Piping, 2018, 55(6): 66-69.
- [59] 王小宁, 辛瑞瑞, 徐小霞. 一起钢圈垫片开裂失效的原因分析[J]. 内燃机与配件, 2018(17): 168-170. DOI: 10.3969/j.issn.1674-957X.2018.17.084.
- WANG X N, XIN R R, XU X X. Analysis of the causes of cracking failure of steel rim gasket[J]. Internal Combustion Engine & Parts, 2018(17): 168-170.
- [60] 刘允棠, 刘银庭, 王胜民. 65Mn高弹性垫片的机械镀锌研究[J]. 表面技术, 2017, 46(9): 235-239. DOI: 10.16490/j.cnki.issn.1001-3660.2017.09.037.
- LIU Y T, LIU Y T, WANG S M. Mechanical galvanizing of 65Mn high elastic washer[J]. Surface Technology, 2017, 46(9): 235-239.
- [61] 肖年, 田跃峰. 钢制镀锌垫片氢脆及解决措施[J]. 表面工程资讯, 2005, 5(4): 35.
- XIAO N, TIAN Y F. Hydrogen embrittlement and solutions of steel galvanized gasket[J]. Information of Surface Engineering, 2005, 5(4): 35.
- (编辑: 刘朝阳)
-
- 基金项目:** 国家重点研发计划“氢能技术”重点专项资助项目“中低压纯氢与掺氢燃气管道扩散机理与相容性研究”, 2021YFB4001601。
- 作者简介:** 朱建鲁, 男, 1985年生, 副教授, 2013年博士毕业于中国石油大学(华东)油气储运工程专业, 现主要从事液化天然气储运技术与掺氢天然气储运技术研究工作。地址: 山东省青岛市黄岛区长江西路66号, 266580。电话: 13468280804。Email: upczjl@upc.edu.cn
- 通信作者:** 李玉星, 男, 1970年生, 教授, 博士生导师, 1997年博士毕业于中国石油大学(北京)油气储运工程专业, 现主要从事油气及特殊气体管输技术研究。地址: 山东省青岛市黄岛区长江西路66号, 266580。电话: 0532-86981818。Email: liyx@upc.edu.cn
- Received: 2023-07-27
 - Revised: 2023-08-28
 - Online: 2024-04-12

