

3Y-TZP/LZAS 微晶玻璃功能梯度涂层的微观结构与性能

龚 伟^{1,2}, 李 华³, 周黎明¹, 白朝中¹, 王恩泽⁴

(1. 西南科技大学 制造科学与工程学院, 绵阳 621010; 2. 中国工程物理研究院 激光聚变研究中心, 绵阳 621900;
3. 西南科技大学 国防科技学院, 绵阳 621010; 4. 西南科技大学 材料科学与工程学院, 绵阳 621010)

摘 要: 为了提高钢基体微晶玻璃涂层的韧性, 在 Q235 钢基体上采用涂搪法制备了钇稳定四方相氧化锆/Li₂O-ZnO-Al₂O₃-SiO₂ (3Y-TZP/LZAS) 微晶玻璃功能梯度涂层。采用 XRD、SEM 分析了梯度涂层的物相组成和微观结构, 采用压痕法测试并计算了涂层的显微硬度和断裂韧性, 通过粘接-拉伸法测试了涂层的结合强度。结果表明, 3Y-TZP/LZAS 微晶玻璃功能梯度涂层各层之间的界面结合紧密; 涂层与钢基体依靠玻璃中的 SiO₂ 与铁的氧化物发生界面反应形成牢固的结合, 反应产物为 Fe₂SiO₄ 和 FeSiO₃; 涂层的显微硬度和断裂韧性沿涂层厚度方向逐渐增大, 涂层韧性提高是表面残余压应力增韧、3Y-TZP 相变及 3Y-TZP 的颗粒增韧共同作用的结果; 梯度涂层与 Q235 的结合强度达 16.3 MPa。热震实验表明, 梯度涂层在 300℃ 下经历 30 余次热循环, 表现出较好的抗热震性能。

关 键 词: 功能梯度涂层; 微晶玻璃; 涂搪法; 微观结构

中图分类号: TG174 文献标识码: A

Microstructure and Properties of 3Y-TZP/LZAS Glass-ceramic Functionally Gradient Coatings

GONG Wei^{1,2}, LI Hua³, ZHOU Li-Ming¹, BAI Cao-Zhong¹, WANG En-Ze⁴

(1. School of Manufacturing Science and Engineering, Southwest University of Science and Technology, Mianyang 621010, China; 2. Laser Fusion Research Center, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, China; 3. School of National Defence Science and Technology, Southwest University of Science and Technology, Mianyang 621010, China; 4. School of Material Science and Engineering, Southwest University of Science and Technology, Mianyang 621010, China)

Abstract: In order to improve toughness of glass-ceramic coatings, 3mol% yttria-tetragonal zirconia polycrystal/Li₂O-ZnO-Al₂O₃-SiO₂ (3Y-TZP/LZAS) glass-ceramic functionally gradient coatings on Q235 steel substrate were prepared by slurry method. Phase constitution and microstructure of samples were examined by XRD and SEM, respectively. Their micro-hardness and fracture toughness were measured by indentation method. And their bonding strength of the coatings was also investigated by pulling test. Resulting data indicate that the seamless interfaces among toughening coatings, LZAS transition layer and substrate are obtained. SiO₂ in the LZAS glass reacts with iron oxides at interfacial region forming Fe₂SiO₄ and FeSiO₃, which causes tight interface bind between gradient coatings and steel substrate. Micro-hardness and fracture toughness from inner substrate to top surface on the section of the coatings increase gradually. Residual compressive stress toughening, 3Y-TZP particles toughening and 3Y-TZP transformation toughening are the dominant factors for improving fracture toughness of the gradient coatings. Bonding strength of the coatings is up to 16.3 MPa. The gradient coatings withstand more than 30 thermal cycles at 300℃, demonstrating their excellent thermal shock resistance.

收稿日期: 2016-03-29; 收到修改稿日期: 2016-07-05

基金项目: 四川省高校科技成果转化培育项目(15ZC0011); 西南科技大学自然科学基金(15ZX7157)

Industrialization Cultivation Project of Education Department of Sichuan Province (15CZ0011); Natural Science Foundation of Southwest University of Science and Technology (15ZX7157)

作者简介: 龚 伟(1973—), 男, 博士, 副教授. E-mail: jszsgw@163.com

Key words: functionally gradient coating; glass-ceramic; slurry method; microstructure

金属表面微晶玻璃涂层在电子工业、航空航天、生物医学等领域有重要的应用价值。芦玉峰等^[1]将 BAS 微晶玻璃介质浆料印刷于不锈钢基板表面,经过干燥、烧成后形成的介质膜层与不锈钢基板共同组成复合基板可替代传统的 Al_2O_3 基板。周宏明等^[2]采用料浆喷涂法在镍合金 GH140 基体上制备了 SiO_2 -BaO-MgO-ZnO 微晶玻璃抗氧化涂层,该涂层与基体结合良好,表面十分致密,大幅度提高了基体的抗氧化能力。SHEN 等^[3]采用等离子喷涂法在高温镍合金基体上制备了 SiO_2 - Al_2O_3 - ZrO_2 -CaO-ZnO 微晶玻璃抗氧化涂层,该涂层具有良好的抗氧化和抗热震性能。黄凯等^[4]采用溶胶-凝胶法,以三嵌段共聚物 F127 为模板剂,在 AZ31 镁合金表面制备了介孔 45S5 生物玻璃陶瓷涂层。

利用微晶玻璃强度高、耐磨耐腐蚀好、成分可调和经济性好的特点,研究人员在金属表面还制备了微晶玻璃装饰和耐磨涂层^[5]。YILMAZ 等^[6]采用等离子喷涂方法在 AISI1040 钢基体上制备了玄武岩矿渣微晶玻璃涂层,晶化温度和晶化时间严重影响涂层硬度,涂层硬度最大达到 1295 $\text{HV}_{0.05}$ 。ROTHER 等^[7]在汽车铝合金轮毂上采用电子束蒸发的方法制备了 SiO_2 - Al_2O_3 微晶玻璃保护层,涂层的厚度和硬度均达到了使用要求。但是,微晶玻璃是脆性材料,低韧性限制了其在耐磨抗冲蚀领域中的进一步应用。目前,有关微晶玻璃涂层强韧化的研究鲜有报道。

通过第二相颗粒弥散增韧或纤维、晶须补强增韧等相对单一的强韧化措施,仅能有限地提高微晶玻璃涂层的强韧性。添加了 3mol% Y_2O_3 的钇稳定四方相氧化锆(3Y-TZP)常用于结构陶瓷材料增韧。因此,本工作利用功能梯度材料原理以及 Li_2O -ZnO- Al_2O_3 - SiO_2 (LZAS)系微晶玻璃软化温度低、热膨胀系数可调,适用与多种金属封接的特性^[8-9],在 Q235 钢基体上通过涂搪法制备 3Y-TZP/LZAS 微晶玻璃功能梯度涂层,该涂层通过 3Y-TZP 的体积分数逐层递增使热膨胀系数逐层递减,从而在表层形成残余压应力。涂层可在残余压应力增韧、3Y-TZP 陶瓷颗粒增韧和相变增韧的协同作用下提高韧性。

1 实验方法

1.1 实验材料

基础玻璃的各组分含量为: 18.7mol% Li_2O , 39mol% SiO_2 , 11.7mol% ZnO , 10.6mol% Al_2O_3 , 13.5mol% B_2O_3 ,

1.5mol% P_2O_5 , 5mol% Na_2O 。其中 Li_2O 、 Na_2O 分别以 Li_2CO_3 、 Na_2CO_3 引入,晶核剂 P_2O_5 通过 $(\text{NH}_4)\text{H}_2\text{PO}_4$ 引入,其它直接使用相应氧化物原料。所有原料均为分析纯。将上述原料混合均匀后装入刚玉坩埚,然后放入 TMF-4-13 型陶瓷纤维高温炉,在 1400~1450℃ 熔制 2 h。将熔制的玻璃液快速倒入水中,水淬得到玻璃颗粒。玻璃颗粒清洗后烘干,使用 KQM-X/B 球磨机球磨 90 min,过 74 μm 筛,得到基础玻璃粉。

用于梯度涂层制备的 3Y-TZP 陶瓷颗粒平均粒径约 1.0 μm (江西泛美亚材料有限公司)。

1.2 钢基体的预处理

将 Q235 钢加工成 2 mm×30 mm×40 mm 尺寸的钢板,然后喷砂粗化,使其粗糙度约为 $R_a 1.6 \mu\text{m}$ 。最后用丙酮清洗干净。

1.3 浆料的制备

将制备的基础玻璃粉体和 3Y-TZP 粉末按比例混合,再将混合粉末、无水乙醇和 8wt% 的聚乙烯醇缩丁醛(PVB)溶液按 1:0.35:0.04(质量比)混合,利用磁悬浮搅拌机搅拌,制备出具有一定的流动性和粘附性的浆料。

1.4 梯度涂层的制备

LZAS 微晶玻璃、Q235 钢、3Y-TZP 陶瓷的热膨胀系数分别为 11.5×10^{-6} 、 12×10^{-6} 和 $10 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ ^[10]。在 LZAS 中添加 3Y-TZP 陶瓷颗粒后涂层的热膨胀系数会逐层降低。为了避免在涂层与 Q235 钢基体界面处产生过大的热应力,在涂覆 3Y-TZP/LZAS 梯度涂层之前,先涂覆纯 LZAS 微晶玻璃涂层(0vol% 3Y-TZP)作为过渡层。作者运用有限元软件分析了梯度层数目、梯度层厚度和层间 3Y-TZP 组分差等参数对涂层/基体界面残余热应力的影响。结果表明^[10],3Y-TZP/LZAS 梯度涂层的最佳层数为 3~5 层,层间 3Y-TZP 的最佳组分差 5vol%~8vol%,涂层最佳厚度为 1.0~1.5 mm。

YAMADA 等^[11]认为重复烧结有利于烧结致密化。因此,本实验中 3Y-TZP 的含量按 5vol% 逐层增加,通过重复涂烧制备含 4 层增韧层的 3Y-TZP/LZAS 涂层。每一层涂覆时通过质量控制实现层厚要求,每层增韧层厚度约 0.25 μm ,过渡层层厚约 0.3 μm 。梯度涂层的制备工艺流程见图 1。

1.5 性能测试与表征

采用美国 Rheotronic II 型旋转粘度计测定 LZAS 基础玻璃的高温粘度。采用 χ' Pert PRO 型 X 射线衍射仪分析涂层物相。采用 ULTRA55 型场发射扫描

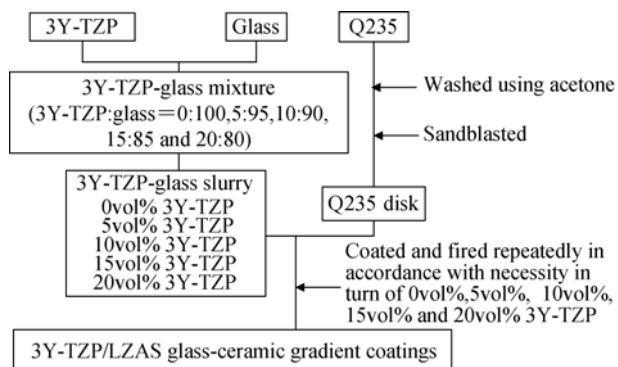


图 1 3Y-TZP/LZAS 梯度涂层的制备工艺流程

Fig. 1 Flow chart for preparing 3Y-TZP/LZAS gradient coatings by slurry method

电镜(带能谱分析仪)观察样品的微观结构。将梯度涂层横截面抛光, 用 HV-1000 型显微硬度计测量横截面上各层的硬度, 载荷 9.8 N, 加载时间 20 s。采用压痕法测量横截面上各层的断裂韧性: 采用 4XC 型光学显微镜测量截面硬度压痕的对角线长度和裂纹半长, 根据 Evans-Charles 公式^[12]计算断裂韧性值。显微硬度和断裂韧性测试时每层测试 5 个数据后取平均值。采用 WSM-10KN 型万能试验机测试涂层与钢基体的结合强度以及 Q235 钢基体在涂烧前后的力学性能。

2 结果与分析

2.1 过渡层与 Q235 钢之间的涂烧温度

合适的玻璃粘度有利于改善玻璃与金属基体的润湿性, 缓解涂烧中产生的热应力^[13]。采用 VFT 方程^[14]表示玻璃粘度和温度的关系:

$$\lg \eta = A + \frac{B}{T - T_0} \quad (1)$$

式中, η 为粘度; A 、 B 和 T_0 为常数; T 为温度。

在玻璃转变温度 T_g 和玻璃软化温度 T_f 下, 玻璃的粘度值为定值, 分别为 $10^{12.4}$ Pa·s 和 10^{10} Pa·s^[15]。前期研究表明, LZAS 微晶玻璃的玻璃转变温度 T_g 和软化温度 T_f 分别为 420℃ 和 480℃^[16]。据此, 利用高温粘度计测得 LZAS 基础玻璃的高温粘度曲线, 并将 T_g 、 T_f 及高温粘度曲线中的某一温度及其相应粘度值代入(1)式, 可以得到 3 个方程, 联立求解可得 A 、 B 和 T_0 参数。通过 VFT 方程拟合出 LZAS 微晶玻璃的温度-粘度曲线, 见图 2。玻璃适合于金属熔封的粘度范围为 $10^3 \sim 10^{5.5}$ Pa·s^[17], 由图 2 可计算出涂烧温度应大于 730℃。

图 3 为 LZAS 微晶玻璃与 Q235 钢进行润湿实验时润湿角变化情况, 在每个温度点保温 15 min。

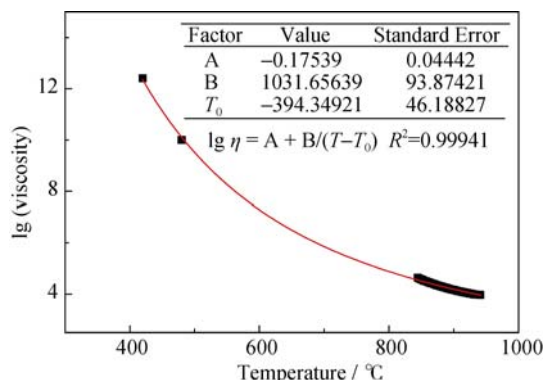


图 2 LZAS 微晶玻璃的粘度与温度的关系

Fig. 2 Relationship between viscosity of LZAS glass ceramic and temperature

可见, 750℃ 时润湿角为 35.6°。当玻璃与金属的润湿角为 30~40° 时即可实现熔封^[18]。由图 2 可知 750℃ 时 LZAS 微晶玻璃的粘度为 $10^{5.2}$ Pa·s。综上, 钢基体与 LZAS 微晶玻璃过渡层的涂烧温度确定为 750℃ 即可, 涂烧时间为 15 min。

2.2 梯度涂层的涂烧制度

熔封过程中基础玻璃析出的大量微晶将会增加玻璃相的粘度, 阻碍微晶玻璃在金属表面铺展^[19]。而 LZAS 微晶玻璃在 530℃ 就析出晶体^[16]。因此在涂烧过程中, 以 3 °C/min 的升温速率升温到 450℃ 保温 30 min 排除 PVB 后, 应快速升温(8 °C/min)到涂烧温度保温 15 min, 以防止 LZAS 基础玻璃在升温过程中析晶。涂烧结束后应随炉冷却, 在缓慢的冷却过程中完成析晶。

在微晶玻璃中添加陶瓷颗粒会增加其粘度, 降低烧结驱动力, 阻碍致密化进程, 提高烧结温度。因此,

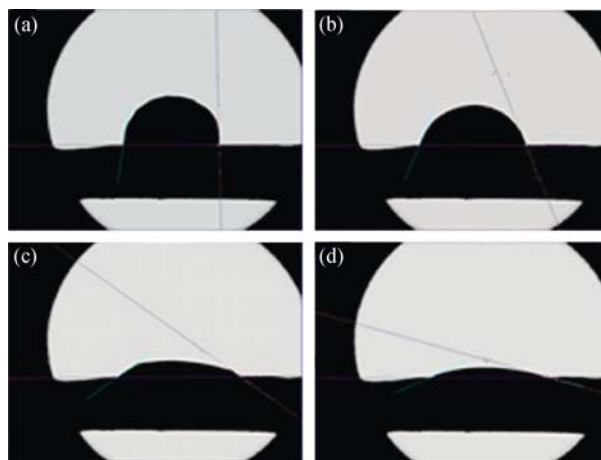


图 3 不同温度下 LZAS 微晶玻璃与 Q235 的润湿结果

Fig. 3 Wettability of LZAS glass ceramic with Q235 steel at different temperatures

(a) 690℃, 88.9°; (b) 720℃, 68.3°; (c) 750℃, 35.6°; (d) 780℃, 15.9°

随着 3Y-TZP 含量增加, 涂烧温度应逐层递增。经反复试验, 确定第 1、2、3 和 4 层增韧层的涂烧温度分别是 770℃、790℃、810℃和 830℃。3Y-TZP/LZAS 微晶玻璃梯度涂层的涂烧制度见图 4。

2.3 梯度涂层的物相及显微结构

图 5 为梯度涂层顶层的 XRD 图谱, 由图可见, 顶层涂层中的晶相主要包括 γ_0 -LZS($\text{Li}_2\text{ZnSiO}_4$)、方石英(Cristobalite)、 β -石英固溶体($\text{Li}_2\text{Al}_2\text{Si}_3\text{O}_{10}$)、t- ZrO_2 和 m- ZrO_2 。LZAS 微晶玻璃与 3Y-TZP 未发生反应, 涂层中 t- ZrO_2 含量较高。

图 6 为 3Y-TZP/LZAS 微晶玻璃梯度涂层背散射电子截面组织形貌图(以含 3 层增韧层的梯度涂层为例)。由图 6 可见, 梯度涂层分为 3 个区域。上面灰白色区域为 Q235 钢基材; 中间区域是不含 3Y-TZP 的 LZAS 微晶玻璃过渡层; 下面区域是分布有白色 3Y-TZP 颗粒的增韧层。层中白色颗粒越多, 表示 3Y-TZP 含量越大。涂层中存在浆料涂烧材料的孔洞, 但各层之间的界面结合紧密, 无裂纹缺陷。

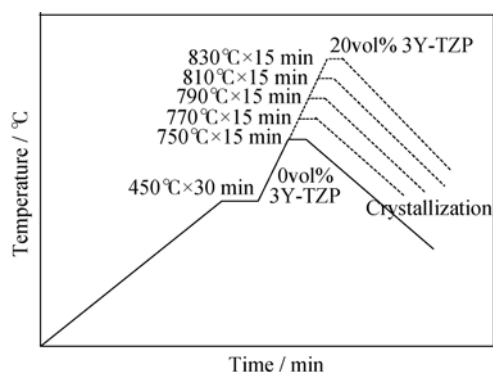


图 4 3Y-TZP/LZAS 微晶玻璃梯度涂层的涂烧制度

Fig. 4 Firing schedule for the 3Y-TZP/LZAS gradient coatings

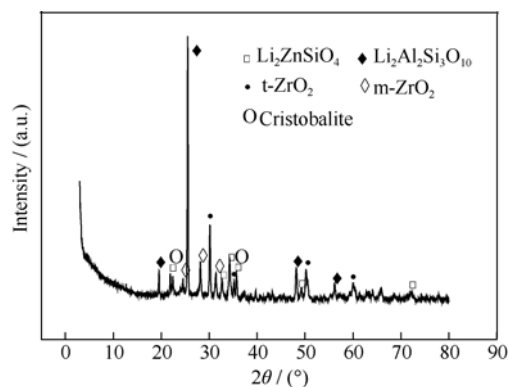


图 5 3Y-TZP/LZAS 梯度涂层顶层的 XRD 图谱

Fig. 5 XRD pattern of the top surface of 3Y-TZP/LZAS gradient coatings

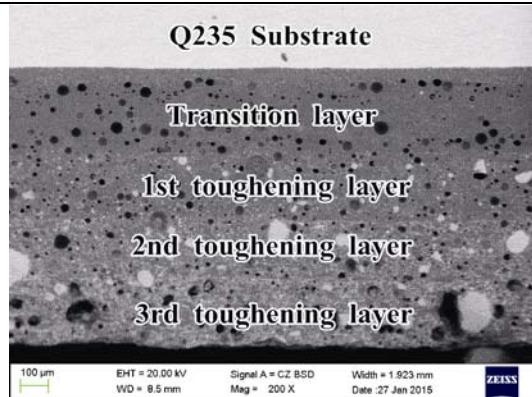


图 6 3Y-TZP/LZAS 微晶玻璃梯度涂层截面组织形貌

Fig. 6 Section morphology of the 3Y-TZP/LZAS gradient coatings

图 7 为 Q235 钢基体与 LZAS 微晶玻璃过渡层之间的界面区域的 SEM 照片。可见, 在界面区域存在羽毛状和块状晶体。能谱分析发现这些晶体中均含 Fe、O、Si 和 P 元素。对微晶玻璃与 Q235 钢的界面区域进行 X 射线衍射分析, 结果如图 8 所示。Q235-LZAS 微晶玻璃界面处存在玻璃相、FeO、 Fe_3O_4 、 $\text{Li}_x\text{Al}_x\text{Si}_{3-x}\text{O}_6$ 、 Fe_2SiO_4 及 FeSiO_3 , 其中 FeO、

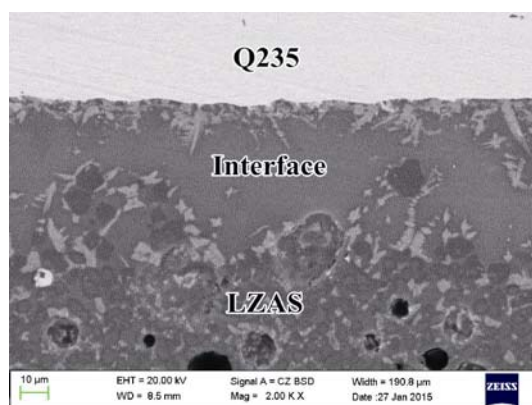


图 7 Q235 与 LZAS 微晶玻璃界面区域的组织形貌

Fig. 7 Interface morphology of Q235-LZAS glass-ceramic

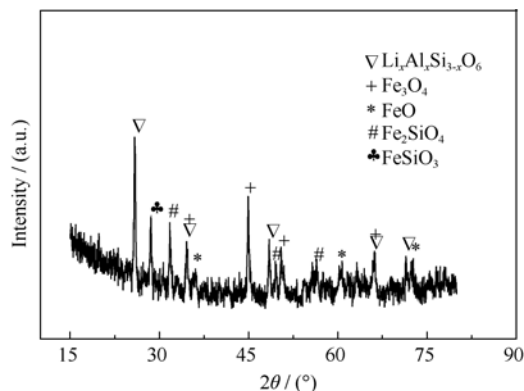


图 8 Q235-LZAS 微晶玻璃界面处的 X 射线衍射图谱

Fig. 8 XRD pattern of the interface between LZAS glass ceramic and Q235 steel

Fe_3O_4 是 Q235 钢在空气中涂烧形成的氧化产物; $\text{Li}_x\text{Al}_x\text{Si}_{3-x}\text{O}_6$ 相为 β -石英固溶体的变体^[20]; Fe_2SiO_4 和 FeSiO_3 应是 FeO 、 Fe_3O_4 与玻璃中的 SiO_2 发生界面反应生成的产物。Q235 与 LZAS 微晶玻璃正是通过这种界面反应形成了牢固的结合。

2.4 3Y-TZP/LZAS 微晶玻璃梯度涂层的性能

涂层各层的显微硬度和断裂韧性值见表 1, 从中可见, 随着梯度涂层中硬质 3Y-TZP 含量由里至表梯度递增, 涂层的硬度值逐层增大。

图 9 为涂层截面的压痕形貌, 从图中可以看出, 在相同的加载力下, 随着增韧层中 3Y-TZP 体积分数增大, 涂层的裂纹扩展路径减小。这表明随着涂层中 3Y-TZP 的体积分数逐层增大, 涂层的断裂韧性逐层提高。

表 1 中涂层各层的断裂韧性值进一步证实了上述结论。作者采用 XRD 法测试了梯度涂层的残余应力, 测试结果表明涂层存在残余压应力, 且随着层数增加, 残余压应力增大^[10]。3Y-TZP 与 LZAS 微

晶玻璃存在热膨胀系数和弹性模量的差异^[10], 且涂层中含有较高含量的 t-ZrO_2 (图 5), 这使得涂层具备了 3Y-TZP 颗粒增韧和相变增韧的条件。因此, 涂层韧性的提高应是表面残余压应力增韧、3Y-TZP 颗粒增韧及应力诱导相变增韧综合作用的结果。

采用 WSM-10KN 型万能试验机, 通过粘接-拉伸法评价梯度涂层与 Q235 钢基体的结合强度(粘结剂为丙烯酸酯结构胶)。实验表明尽管断裂总发生在涂层与 Q235 钢基体的界面处, 但涂层与 Q235 钢基体之间仍具有较高的结合强度, 结合强度值高达 16.3 MPa。

对梯度涂层进行热冲击试验。将试样放入陶瓷纤维炉中, 在 300℃ 保温 30 min 后取出, 吹压缩空气冷却至室温, 如此反复, 直到涂层出现剥落。实验表明, 梯度涂层经历 30 次热循环后在涂层边缘出现裂纹, 然后再经历 6 次热循环后最终出现涂层剥落。这说明层与层之间的热物理性能实现了良好的梯度过渡, 涂层表现出良好的抗热震性。

将直径 15 mm 的 Q235 试样按图 4 所示的涂烧制度加热、冷却, 然后通过拉伸实验测定 Q235 钢基体涂烧前后的力学性能。结果表明涂烧后 Q235 钢的拉伸强度从 477.3 MPa 降为 438.5 MPa, 而伸长率由 29% 增加到 35%, 其变化趋势与文献[21]报道一致。可见, Q235 钢基体涂烧后强度和塑性变化均在 10% 以内, 其力学性能变化不足以影响该涂层的使用。

与热喷涂法、等离子喷涂法、火焰喷涂、溶胶-凝胶法、丝网印刷、流延法制备微晶玻璃涂层相比, 涂搪法制备微晶玻璃涂层具有操作简单、成本低、设备依赖性不高的特点。将本研究与电泳共

表 1 梯度涂层各层的显微硬度与断裂韧性值

Table 1 Micro-hardness and fracture toughness of different layer for the 3Y-TZP/LZAS gradient coatings

Layer	Micro-hardness H_v/GPa	Fracture toughness $K_{IC}/(\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2})$
Transition layer	2.43	0.62
1st toughening layer	3.24	1.32
2nd toughening layer	3.78	1.94
3rd toughening layer	4.53	2.12
4th toughening layer	5.11	2.83

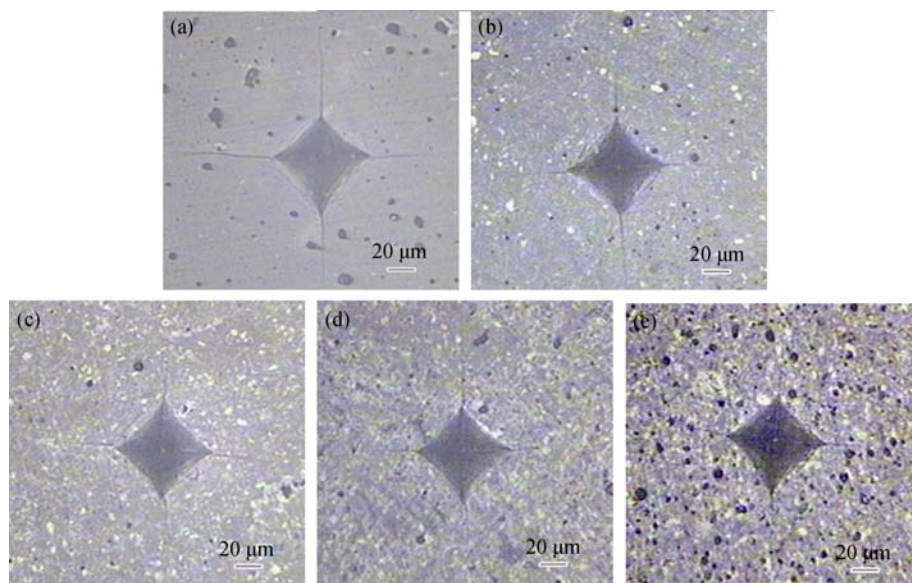


图 9 涂层截面的压痕形貌

Fig. 9 Optical images of Vickers indentation on the section of coatings

(a) Transition layer; (b) The 1st toughening layer; (c) The 2nd toughening layer; (d) The 3rd toughening layer; (e) The 4th toughening layer

沉积-烧结技术^[22]结合,可在形状复杂表面制备梯度涂层。因此,本研究为冶金和热电行业的锅炉省煤器管道、再热器管道、水冷壁管道制备强韧化防护涂层提供了思路。3Y-TZP/LZAS 微晶玻璃梯度涂层在选矿行业的料仓、溜槽、浮选机机体、叶片、漏斗和各种排放口等工况场合具有广阔的应用前景。

3 结论

1) 采用涂搪法在 Q235 钢基体上制备了 3Y-TZP/LZAS 微晶玻璃功能梯度涂层。Q235 钢基体上 LZAS 微晶玻璃过渡层的涂烧温度为 750℃,随着 3Y-TZP 含量逐层增加,各增韧层的涂烧温度逐层升高。PVB 排除结束后,应快速升温以防止在涂烧过程中析出晶体。微晶玻璃的析晶应安排在涂烧结束后的随炉冷却过程中进行。

2) 3Y-TZP/LZAS 微晶玻璃功能梯度涂层各层之间的界面结合紧密。梯度涂层与 Q235 钢依靠玻璃中的 SiO₂ 与铁的氧化物发生界面反应形成牢固的结合,反应产物为 Fe₂SiO₄ 和 FeSiO₃。梯度涂层与 Q235 的结合强度达 16.3 MPa。梯度涂层在 300℃ 下循环 30 余次,表现出良好的抗热震性能。

3) 涂层的显微硬度和断裂韧性沿涂层厚度方向由里至表逐层增大。涂层韧性提高是表面残余压应力增韧、3Y-TZP 相变及 3Y-TZP 颗粒增韧共同作用的结果。

参考文献:

- [1] LU YU-FENG, LOU MIAO, DENG LI-RONG, *et al.* Research of dielectric coatings for 0Cr18Ni9 stainless steel substrate prepared by BaO-Al₂O₃-SiO₂ glass-ceramics. *Journal of Functional Materials*, 2010, **41(12)**: 2216–2219.
- [2] ZHOU HONG-MING, JIA YANG, LI JIAN, *et al.* Microstructure, phase composition and oxidation resistance of glass-ceramic coating prepared by slurry spraying technique. *Journal of Central South University*, 2014, **45(1)**: 45–50.
- [3] SHEN M L, ZHU S L, WANG F H. Cyclic oxidation behavior of glass-ceramic composite coatings on superalloy K38G at 1100℃. *Thin Solid Films*, 2011, **519**: 484–488.
- [4] HUANG KAI, CAI SHU, REN MONG-GUO, *et al.* Preparation of mesoporous 45S5 bioactive glass-ceramic coating on magnesium alloy and its *in vitro* biodegradation. *Journal of the Chinese Ceramic Society*, 2014, **42(7)**: 846–850.
- [5] ERCENK E, SEN U, YILMAZ S. Tribological properties of SiC-reinforced basalt-based coatings. *Tribol. Lett.*, 2014, **56(2)**: 337–354.
- [6] YILMAZ S, BAYRAK G, SEN S, *et al.* Structural characterization

- of basalt-based glass-ceramic coatings. *Mater. Design*, 2006, **27(10)**: 1092–1096.
- [7] ROTHER B, MUCHA A. Transparent glass-ceramic coatings: property distribution on 3D parts. *Surf. Coat. Tech.*, 2000, **124**: 128–134.
- [8] HU X L, CUI L, LIU T Y, *et al.* Crystallization and properties of B₂O₃ doped LZAS vitrified bond for diamond grinding tools. *J. Non-cryst. Solids*, 2015, **427**: 69–75.
- [9] CUI L, HAO X J, HU X L, *et al.* Effects of Y₂O₃ addition on structure and properties of LZAS vitrified bond for CBN grinding tools application. *Ceram. Int.*, 2015, **41**: 9916–9922.
- [10] GONG WEI, ZHOU LI-MING, WANG EN-ZE. Analysis on the residual stresses in Y-TZP/LZAS glass-ceramic gradient coatings. *Journal of Functional Materials*, 2014, **45(17)**: 17140–17144.
- [11] YAMADA K, IMAMURA K, ITOH H, *et al.* Bone bonding behavior of the hydroxyapatite containing glass-titanium composite prepared by the cullet method. *Biomaterials*, 2001, **22**: 2207–2214.
- [12] EVANS A G, CHARLES E A. Fracture toughness determination by indentation. *J. Am. Ceram. Soc.*, 1976, **59**: 371–372.
- [13] GAO CHAO, LU AAN-XIAN, WANG KE-QIANG, *et al.* Investigation of high-temperature thermal stability of a novel solid oxide fuel cell seal glass. *Journal of wuhan University of Technology*, 2011, **33(10)**: 1–6.
- [14] HRMA P. Glass viscosity as a function of temperature and composition: a model based on Adam-Gibbs equation. *J. Non-Cryst. Solids*, 2008, **354**: 3389–3399.
- [15] XIAO ZI-FAN, CHENG JIN-SHU, WU HAO. Effect of Al₂O₃/SiO₂ ratio on the viscosity and workability of high-alumina soda-lime-silicate glasses. *Journal of the Chinese Ceramic Society*, 2012, **40(7)**: 1000–1005.
- [16] GONG WEI, ZHONG LI-MING, LIU CHUAN-HUI, *et al.* Effect of heat treatment on crystallization behaviors of LZAS system glass-ceramics. *Journal of Synthetic Crystals*, 2015, **44(11)**: 3140–3146.
- [17] WANG JUN. Study on the sealing properties of Bi₂O₃-ZnO-B₂O₃ low-melting glass. *Wuhan University of Technology*, 2011.
- [18] YANG DAN, SHEN ZHUO-SHEN. Study on the Li₂O-Al₂O₃-ZnO-SiO₂ glass-ceramics used for the sealing of Kovar. *Electronic components and materials*, 2010, **29(4)**: 57–60.
- [19] WU MAO, QU XUAN-HUI, HE XIN-BO, *et al.* Wettability of Kovar with glass-ceramics of ZnO-Al₂O₃-B₂O₃-SiO₂ system. *Transactions of Materials and Heat Treatment*, 2009, **30(6)**: 25–30.
- [20] OMAR A A, EI-SHENNAWI A W A, EI-GHANNAM A R. Thermal expansion of Li₂O-ZnO-Al₂O₃-SiO₂ glasses and corresponding glass-ceramics. *J. Mater. Sci.*, 1991(**26**): 6049–6056.
- [21] CHEN JIAN-FENG, CAO PING-ZHOU. Experimental investigation into mechanical properties of steel post high temperatures. *Journal of PLA University of Science and Technology*, 2010, **11(3)**: 328–332.
- [22] KARIMI E, KHALIL-ALLAFI J, KHALILI V. Electrophoretic deposition of double-layer HA/Al composite coating on NiTi. *Mat. Sci. Eng C-Mater.*, 2016, **58**: 882–890.