

形核密度对 AlON 粉体合成及其透明陶瓷制备的影响

许建鑫¹, 单英春¹, 王光¹, 徐久军¹, 王亮¹, 李江涛²

(1. 大连海事大学 材料系, 大连 116026; 2. 中国科学院 理化技术研究所, 北京 100080)

摘要: 以 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 为原料, 采用碳热还原氮化法合成 AlON 粉体, 利用活性炭和亚微米碳粉改变球磨后一次粉体 ($\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 和 C 混合粉体) 的形核密度, 并研究形核密度对 AlON 粉体相组成、形貌及其透明陶瓷透光性的影响。结果表明, 形核密度不同的一次粉体在 1750℃ 保温 60 min 均能合成纯相 AlON 粉体, 但是所合成的两种 AlON 粉体形貌和性能差异较大。高形核密度下(添加活性炭)合成的 AlON 粉体形貌不规则、结构疏松且晶粒较小, 并易于球磨获得细颗粒粉体($\sim 0.93\ \mu\text{m}$); 而低形核密度下(添加亚微米碳粉)合成的 AlON 粉体整体形貌呈近球形, 晶粒发育较完整, 且尺寸较大, 该粉体球磨后颗粒尺寸较大($\sim 2.13\ \mu\text{m}$)。因此, 形核密度是影响 AlON 粉体形貌、结构特征和破碎性的主要因素。研究表明, 高形核密度粉体合成的 AlON 粉体具有更好的烧结活性, 它在 1880℃ 保温 150 min 获得的透明陶瓷最大红外透过率达 76.5% (3 mm 厚), 比低形核密度粉体制备的透明陶瓷提高 48.3%。因此, 以 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 为原料时, 提高形核密度有利于制备颗粒较小的高活性 AlON 粉体, 该粉体适合制备高透过率 AlON 透明陶瓷。

关键词: AlON; $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$; 形核密度; 活性炭; 亚微米碳粉

中图分类号: TB321; TB332 文献标识码: A

Nucleation Density on the Synthesis of AlON Powder and Preparation of Transparent Ceramics

XU Jian-Xin¹, SHAN Ying-Chun¹, WANG Guang¹, XU Jiu-Jun¹, WANG Liang¹, LI Jiang-Tao²

(1. Department of Materials Science and Engineering, Dalian Maritime University, Dalian 116026, China; 2. Technical Institute of Physics and Chemistry, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080, China)

Abstract: Aluminum oxynitride (AlON) powders were synthesized by carbothermal reduction and nitridation process using $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ powder as starting material. Activated charcoal powder and submicron carbon powder were mixed with $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ respectively to vary nucleation density of AlON. Influence of nucleation density on phase assemblages, morphology of AlON powders and transparency of AlON ceramics were studied. Single phase AlON powders were synthesized after holding at 1750℃ for 60 min with for both mixture powders of different nucleation density. The results show that the synthesized powders exhibit different morphology and milling property. The AlON powder synthesized by $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ and activated charcoal mixture show irregular shape, loose structure and small particle size, due to its high nucleation density. Moreover, it is easier to mill the obtained AlON powder into small particle (0.93 μm). However, for the AlON powder synthesized by mixture of $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ and submicron carbon powder, their grain grow obviously during the synthesis of the AlON powder, due to its low nucleation density with large near sphere particles close to 2.13 μm in diameter. Therefore, nucleation density plays a key role in controlling

收稿日期: 2017-04-28; 收到修改稿日期: 2017-06-20

基金项目: 国家重点研发计划(2017YFB0310300); 中央高校基本科研业务费专项资金(3132017028)

National Key R&D Program of China (2017YFB0310300); Fundamental Research Funds for the Central Universities (3132017028)

作者简介: 许建鑫(1990-), 男, 博士研究生. E-mail: xujianxin@163.com

通讯作者: 单英春, 教授. E-mail: shanyunchun@dlmu.edu.cn; 徐久军, 教授. E-mail: jjxu@dlmu.edu.cn

morphology, structure characteristics and milling performance of the AlON powders. Using the AlON powder synthesized by high nucleation density powders, high transparent AlON ceramics was fabricated by pressureless sintering at 1880°C for 150 min, the maximum transmittance was ~76.5% (3 mm in thickness). It is 48.3% higher than that using AlON powder synthesized by low nucleation density powders. Therefore, for using α -Al₂O₃ as starting material to prepare AlON powder, high nucleation density is beneficial to AlON powder with small particle size and high sintering ability, which contributes to the high transmittance of AlON ceramics.

Key words: AlON; α -Al₂O₃; nucleation density; activated charcoal powder; submicron carbon

立方尖晶石结构的 AlON 陶瓷在近紫外-红外波段都具有良好的透光性, 并拥有优异的力学性能, 是一种理想的结构功能一体化多晶陶瓷材料, 在无线电电子技术、特种仪器制造等诸多领域具有广阔的应用前景^[1-5]。AlON 粉体的合成是制备高透过率透明陶瓷的关键步骤。近年来的研究表明合成方法是影响 AlON 粉体相组成、纯度、粒度及其烧结活性的重要因素之一, 并且进一步影响 AlON 透明陶瓷的透光性。

目前, 高温固相法和碳热还原法是合成 AlON 粉体的两种常用方法。高温固相法必须以价格昂贵的高纯、超细 AlN 粉体为原料, 因此该方法仅限于实验室制备 AlON 粉体。此外, 固相反应法获得的陶瓷通常透过率较低, 从而限制了其应用^[6]。相比之下, 碳热还原法不仅成本低, 而且合成的 AlON 粉体纯度高、粒度小, 更利于实现高透过率透明陶瓷的烧结^[7-9]。研究表明碳源种类及其掺量^[10-11]、球磨时间^[12]和转速^[13]等直接影响 Al₂O₃ 和 C 的分布, 进而影响 AlON 粉体的纯度、烧结活性和 AlON 透明陶瓷的性能。雷景轩等^[10]研究结果揭示碳源尺寸及形貌对 AlON 粉体的合成温度、粉体形貌及颗粒大小的影响, 采用微米碳粉在 1750°C 煅烧 2 h 制备了高纯度的 AlON 粉体, 并进一步获得了直线透过率 ~80% (1 mm 厚样品) 的高透光性 AlON 透明陶瓷。可见, 活性炭和碳粉均是碳热还原合成 AlON 粉体的理想碳源, 而且碳源尺寸及反应原料中 Al₂O₃ 和 C 的分布都直接影响 AlON 粉体的性能。尽管诸多研究基于多孔结构、高比表面积的 γ -Al₂O₃ 合成了纯相 AlON 粉体^[14-15], 并制备了高透过率的 AlON 透明陶瓷, 但是 γ -Al₂O₃ 粉体的这些特征又大大增加了其吸附气体的能力和吸附气体量, 导致粉体合成过程前期吸附气体的排出过程耗时长、效率低, 且极易发生粉末飞散, 增加了 AlON 粉体合成过程的风险。相比之下, Al₂O₃ 的另一种稳定结构 α -Al₂O₃, 它的比表面积小, 气体吸附量少, 可以有效降低 AlON 粉体合成过程中混合粉体净化过程的风险。另外, 由于纳米 α -Al₂O₃ 技术已经成熟, 产品质量稳

定, 更有利于合成性能稳定的 AlON 粉体。因此, 采用 α -Al₂O₃ 为原料, 通过碳热还原法合成 AlON 粉体可行性强, 且其成果更易提高单产。在多晶材料中, 形核和生长都是非常重要的步骤, 它们控制着制备过程中的许多相变、再结晶过程及产物的粒径。一般来说, 产物的平均粒径直接决定着其性能, 粉体粒径越小、比表面积越大, 其烧结活性越好^[16]。Lee 和 Easton 等的研究表明通过提高形核密度可抑制晶体生长, 是减小晶粒尺寸的一种有效方法^[17-19]。因此, 在碳热还原氮化合成 AlON 粉体过程中, 通过减小 C 的粒度、改善 C 与 Al₂O₃ 的分布均匀性来提高形核密度应该是获得高纯度、细颗粒、高活性 AlON 粉体的有效方法。

本研究以纳米 α -Al₂O₃ 为原料, 利用活性炭和亚微米碳粉改变球磨后一次粉体的形核密度, 分析形核密度对 AlON 粉体形貌、结构、性能及其透明陶瓷透光性的影响规律, 并进一步阐明 AlON 粉体的形成过程。

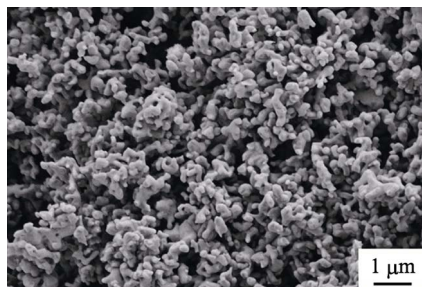
1 实验方法

1.1 实验原料

实验原料为纳米 α -Al₂O₃ (99.99%)、活性炭 (>97.8%) 和亚微米碳粉 (>99.99%), 图 1 是 α -Al₂O₃ 粉体在扫描电镜 (SEM; supra 55, Zeiss) 下的形貌, 粉体的平均粒径为 80 nm。图 2 是活性炭与亚微米碳粉的 SEM 照片。图 2(a) 和 (b) 显示试验采用的活性炭具有疏松多孔的结构特征, 且颗粒较大。图 2(c) 是亚微米碳粉的形貌, 显示亚微米碳粉为颗粒状, 且粒径较小。采用粒度分布仪 (Mastersizer 2000, Malvern, UK) 对亚微米碳粉的粒度分布进行测试。如图 3 所示, 亚微米碳粉的粒径范围为 70~400 nm, 平均粒径为 189.9 nm。

1.2 氧化铝和碳混合粉体制备

按质量比 94.4:5.6 分别称取 α -Al₂O₃ 粉体和碳粉 (活性炭粉或亚微米碳粉), 将其倒入聚四氟乙烯球磨罐中, 以氮化硅球为球磨介质, 无水乙醇为分

图1 α - Al_2O_3 粉体的 SEM 照片Fig. 1 SEM image of α - Al_2O_3 powder

散介质, 在行星式球磨机中以 170 r/min 球磨混合 24 h。料浆经烘干、造粒后分别得到一次粉体 AA (活性炭+ α - Al_2O_3) 和 SA (亚微米碳粉+ α - Al_2O_3)。

粒度分布测试结果表明, 一次粉体 AA 和 SA 具有相似的粒度分布, 见图 4。由图 5 表明, 一次粉体 AA 和一次粉体 SA 中氧化铝粉体的颗粒大小和形貌与原料氧化铝(图 1)相近, 说明在原料混合过程中氧化铝颗粒大小未发生明显变化。但是, BET 多点法 (3H-2000PS1) 测得 AA 粉体的比表面积明显大于 SA 粉体的比表面积, 二者的比表面积分别为 $171.2 \text{ m}^2/\text{g}$ 和 $137.9 \text{ m}^2/\text{g}$ 。因此, AA 粉体的高比表面积应源于活性炭, 活性炭的高比表面积使 AA 粉体中 C 与 α - Al_2O_3 接触概率增大, 有利于提高形核密度。

1.3 粉体合成及透明陶瓷烧结

将混合后的一次粉体 AA 和 SA 分别置于石墨

模具中, 在高纯流动 N_2 气氛下, 升温至 1550°C , 分别保温 0 和 60 min, 降温后进行物相组成分析。此外, 一次粉体 AA 和 SA 升温至 1550°C 保温 60 min 后, 继续升温到 1750°C 煅烧 60 min 合成 AION 粉体。合成的 AION 粉体在空气中除碳 4 h, 然后添加 0.5wt% Y_2O_3 作为烧结助剂, 采用前述球磨工艺进行球磨混合, 料浆经烘干、造粒后获得待烧粉体。球磨后的 1.4 g AION 粉体在 70 MPa 压力下成型后, 置于碳炉中, 在 N_2 气氛下 1880°C 保温 150 min, 样品随炉冷却后, 获得 AION 透明陶瓷, 样品双面抛光后进行透光性测试。

1.4 粉体及透明陶瓷性能表征

采用 X 射线衍射 (XRD, D/Max-ULTIMA+, Rigaku) 对样品进行物相分析; 采用场发射扫描电镜进行微观结构观察; 采用红外氮氧仪 (力可 TC500) 测试 AION 粉体中 O 和 N 的原子比; 用粒度分布仪测试球磨后的 AION 粉体的粒度分布。陶瓷样品的直线透过率用傅立叶红外光谱仪 (Frontier, PE) 进行测定。

2 结果与讨论

2.1 碳热还原氮化法合成粉体的物相组成

图 6 是一次粉体 AA 和 SA 加热至 1550°C 分别保温 0 和 60 min, 及分别在 1550°C 保温 60 min 后继续

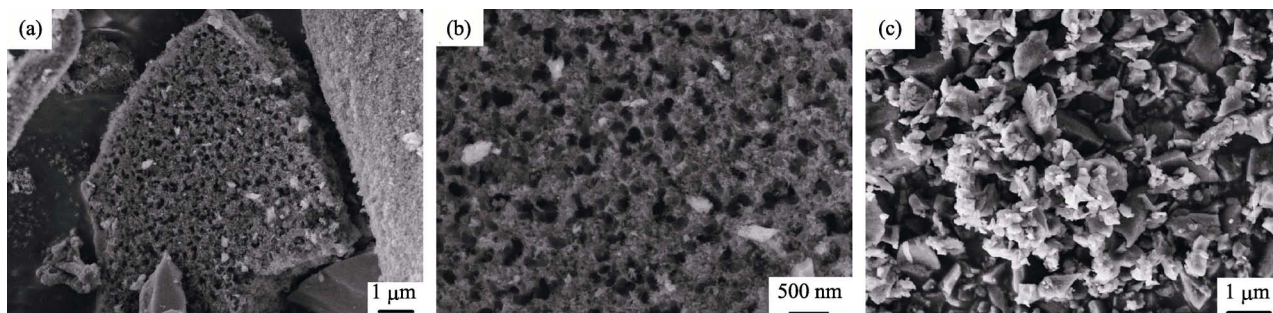


图2 活性炭(a, b)和亚微米碳粉(c)的 SEM 照片

Fig. 2 SEM images of activated charcoal powder (a, b) and submicron carbon (c)

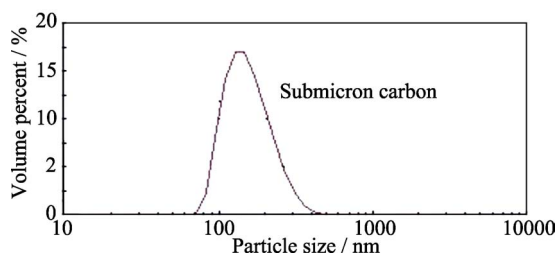
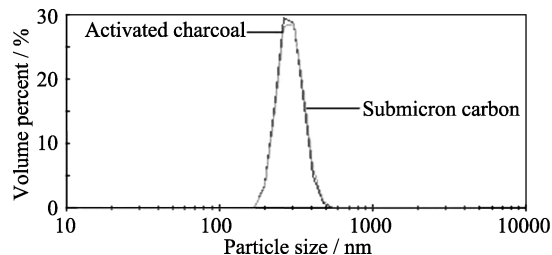


图3 亚微米碳粉粒度分布图

Fig. 3 Particle size distribution curve of submicron carbon powder

图4 α - Al_2O_3 与碳粉混合球磨后粉体的粒度分布Fig. 4 Particle size distribution curves of milled powders (α - Al_2O_3 and carbon)

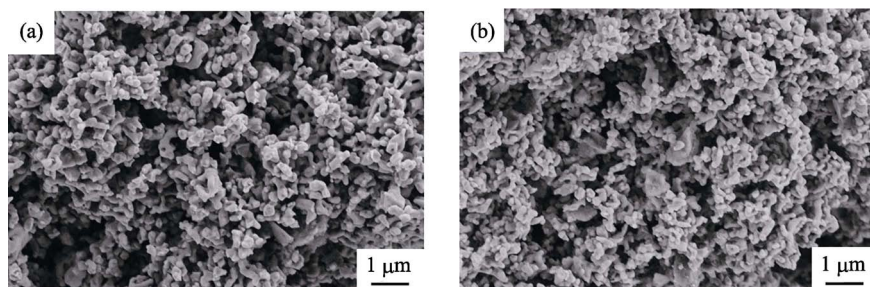


图 5 α - Al_2O_3 和 C 混合粉体的 SEM 照片
Fig. 5 SEM images of the mixtures of α - Al_2O_3 and C
(a) AA powder; (b) SA powder

升温到 1750°C 煅烧 60 min 得到粉体的 XRD 图谱。图 6 表明, 升温至 1550°C 时 AA 和 SA 两种粉体中均有 AlN 相生成, 而且当保温时间延长至 60 min 时, 粉体中的 AlN 含量明显增多。图 6 还表明, AA、SA 两种粉体在 1750°C 煅烧后均合成了纯相 AlON 。进一步的元素含量分析表明, 两种 AlON 粉体的 O 和 N 原子比差异较大, 分别为 5.48(AA)和 7.71(SA), 说明合成的 AlON 粉体氮化程度不同, 即以活性炭为碳源合成的 AlON 粉体氮化程度较高(氧含量较低), 这应归因于一次粉体 AA 的高比表面积。

2.2 AlON 粉体的形貌特征及破碎性能

图 7 是合成 AlON 粉体的 SEM 照片, 由图可以看出 AA 和 SA 粉体合成的 AlON 粉体形貌和结构

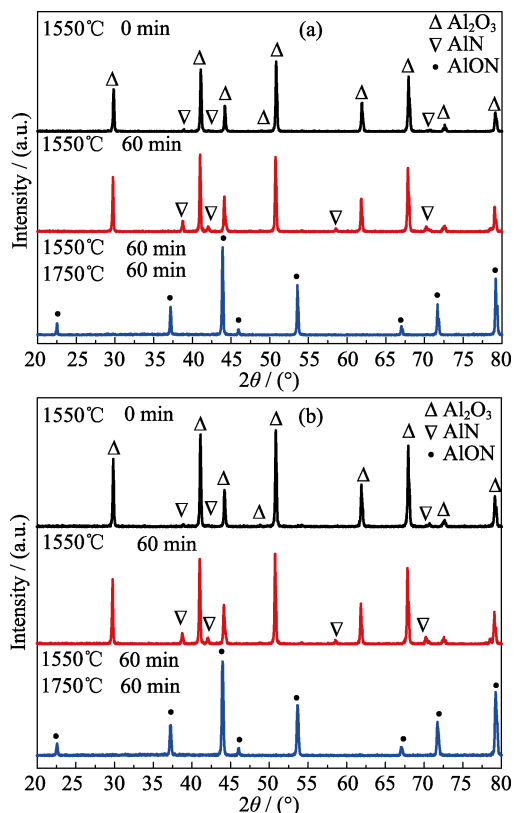


图 6 一次粉体 AA(a)和 SA(b)在不同处理工艺的 XRD 图谱
Fig. 6 XRD patterns of powders synthesized by activated charcoal powder (a) and submicron carbon (b)

差异很大。采用活性炭为碳源时合成的 AlON 粉体呈无序状分布, 颗粒及晶粒尺寸较小(图 7(a)和(b)), 而采用亚微米碳粉合成的 AlON 粉体颗粒形貌规则, 呈椭球形(与亚微米碳粉中碳颗粒形貌相似, 见图 2(c)和图 7(c)), 且颗粒及晶粒尺寸较大(图 7(c)和(d))。AA 和 SA 两种粉体中的碳元素分布密度应该是影响合成的 AlON 粉体形貌和结构差异的主要原因。在粉体 AA 中, 由于碳颗粒密度较大, 且与氧化铝混合均匀, 因此在碳热还原氮化反应发生时首先在较低温度下($1500\sim 1600^\circ\text{C}$)形成数量较多且分布均匀的 AlN , 当温度升至 AlON 的形成温度(1700°C)以上时, 它与未被氮化的氧化铝反应形成的颗粒细小、无序结构的 AlON 粉体, 如图 7(a)和(b)所示。而在粉体 SA 中, 由于 C 分布密度较低, 使低温保温阶段形成的 AlN 数量较少, 导致 AlON 形成时晶核密度较低, 晶体生长空间充足, 因此获得了颗粒尺寸较大、晶体结构完整且致密的 AlON 粉体, 如图 7(c)和(d)所示。

此外, 一次粉体 AA 和 SA 所合成 AlON 粉体的微观形貌与碳源的形貌特征有关。无定形、多孔结

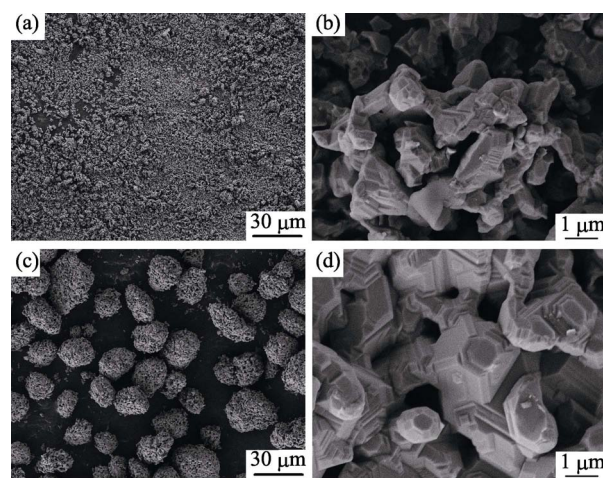


图 7 用 AA(a)~(b)和 SA(c)~(d)粉体合成 AlON 粉体的 SEM 照片

Fig. 7 SEM images of AlON powders synthesized by activated charcoal powder (a)-(b) and submicron carbon (c)-(d)

构的活性炭合成的 AION 粉体仍呈现出无序状分布特征,而颗粒状的亚微米碳粉合成的 AION 粉体形貌与碳颗粒形貌相似(图 7(a)和(c))。以上现象进一步表明碳应是 AION 粉体的形核中心,即以 C 为中心首先低温形成 AlN, AlN 和氧化铝在较高温度形核、生长形成 AION 粉体。在 SA 粉体中,由于碳颗粒结构致密、比表面积小且单位面积分布数量较少,造成氮化的初级阶段 AlN 生成量及单位面积分布数量较少,因此合成的 AION 粉体中氧含量较高(O/N 值较大),且颗粒较大(图 7(c)和(d))。

图 8 和图 9 分别是球磨后 AION 粉体的 SEM 照

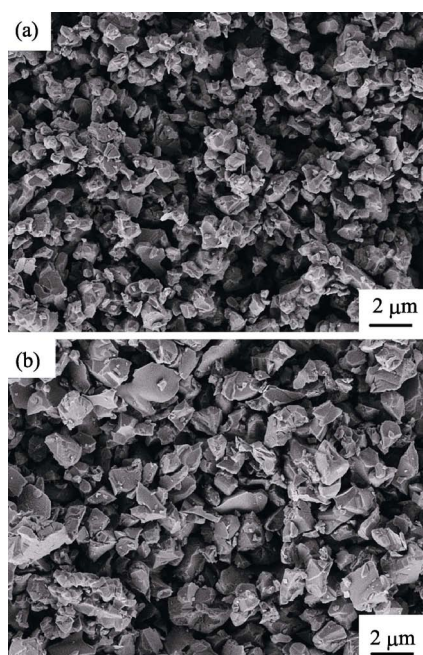


图 8 用 AA(a)和 SA(b)粉体合成 AION 粉体球磨后的 SEM 照片

Fig. 8 SEM images of milled AION powders synthesized by activated charcoal powder (a) and submicron carbon (b)

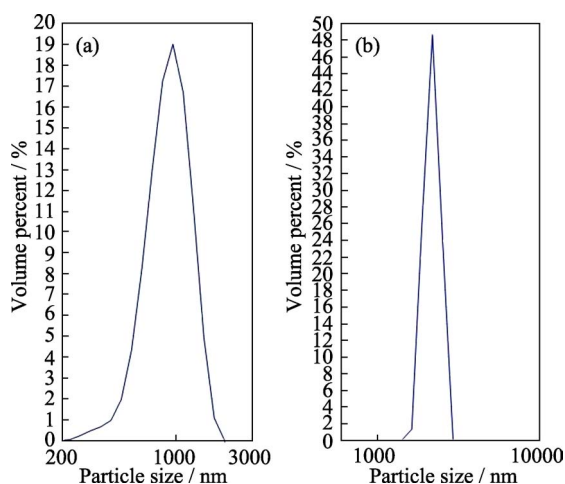


图 9 球磨后 AION 粉体的粒度分布图

Fig. 9 Particle size distribution of milled AION powders synthesized by activated charcoal powder (a) and submicron carbon (b)

片和粒度分布图。图 8 表明以活性炭为碳源时,合成的 AION 粉体球磨后粒径较小(图 8(a)),其平均粒径约为 $0.91\ \mu\text{m}$ (图 9(a)),而以亚微米碳粉为碳源时获得的 AION 粉体球磨后粒径较大(图 8(b)),平均粒径约为 $2.13\ \mu\text{m}$ (图 9(b)),即高形核密度条件下合成的 AION 粉体更易通过球磨获得颗粒较小的粉体。这表明提高形核密度是制备颗粒细小 AION 粉体的有效途径。

2.3 AION 粉体的形核与生长

基于上述研究结果,依据两种一次粉体 AA 和 SA 中 C 的分布特征、AION 粉体形貌特征(图 7)及 AlN-Al₂O₃ 相图^[20], AION 粉体的形核和生长过程示意图如图 10 所示。图 10(a)是一次粉体 AA 和 SA 中 Al₂O₃ 和 C 的分布状态:一次粉体中在单位面积内分散着被 Al₂O₃(绿色)包覆的碳颗粒(黑色),在 C 总面积相同条件下,粉体 AA 中 C 数量较多,而 SA 粉体中 C 数量较少。根据图 6 所示的粉体物相组成,当温度升至 1550°C 时, C 与 Al₂O₃ 在氮气环境中反应开始生成 AlN,如图 10(b)所示,其中紫色为 AlN。在 1550°C 保温过程中, Al₂O₃ 和 C、N 不断反应使生成的 AlN 量不断增加(黑色 C 和绿色 Al₂O₃ 减少,紫色 AlN 增加),见图 10(c)。当温度继续升高至 1700°C 以上时, AlN 和 Al₂O₃ 反应开始生成 AION 相(图 10(d)中蓝色),且在 1750°C 保温过程中伴随着生成 AlN 反应的进行生成 AION(图 10(e)),直至 AlN 和 Al₂O₃ 全部转化为 AION(图 10(f))。一般在合成的产物中仍残留少量 C,图 10(f)未对其进行描述。

2.4 AION 透明陶瓷的组成、结构和性能

图 11 是 AION 粉体无压烧结获得样品的 XRD 图谱,表明制备的透明陶瓷相组成均为纯相 AION。图 12 和图 13 分别是 AION 陶瓷的断面形貌和透光性结果。粉体 AA 合成的 AION 粉制备的陶瓷样品中未见明显气孔(图 12(a)),陶瓷相对密度较大,达到 99.6%。图 13 表明在波长为 $200\sim 6000\ \text{nm}$ 范围内,该陶瓷透光性较好,样品的最大红外透过率为 76.5% (3 mm 厚样品)。与之相比,粉体 SA 合成的 AION 粉制备的陶瓷样品中可见数量较多、尺寸较大的气孔(图 12(b)),陶瓷相对密度较小(99.1%)、透光性较差(最大红外透过率为 28.2%)。由于光在样品中遇到气孔将发生散射等现象,使透射光强减弱^[5],因此相对密度应是造成这两种 AION 陶瓷透光性差异较大的主要原因。上述结果表明,形核密度较大的一次粉体 AA 合成的颗粒较小的 AION 粉体更易实现致密化烧结,从而获得高透光性的 AION 透明陶瓷。

综上所述,以活性炭为碳源的粉体合成的 AION 粉更适合无压烧结制备高透过率 AION 透明

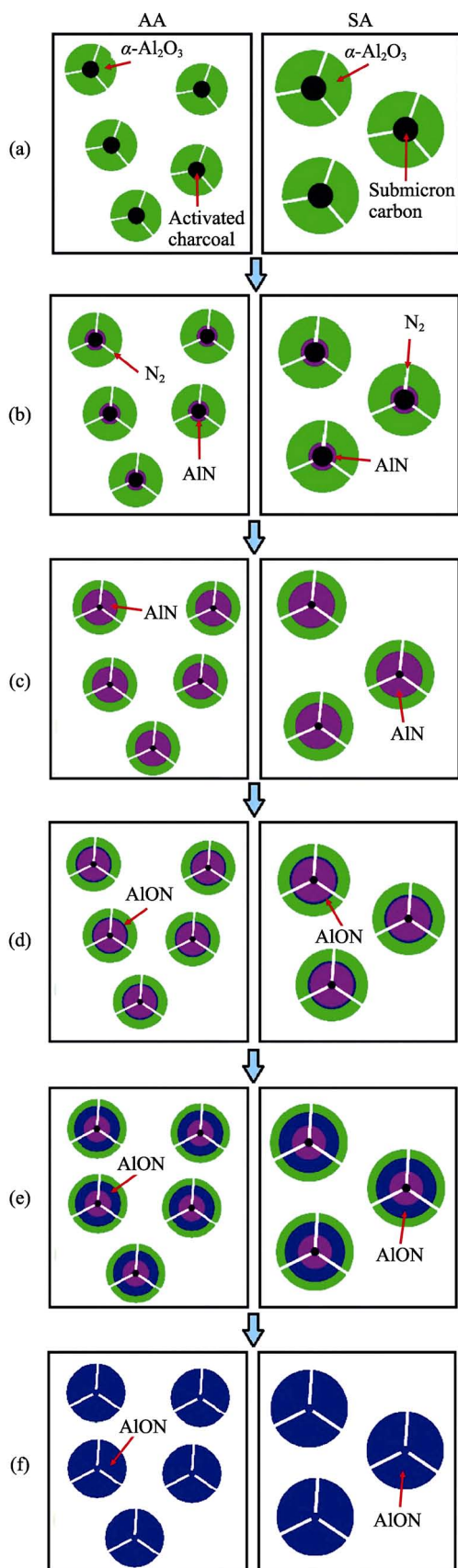


图 10 碳热还原氮化法合成 AION 粉体的形成过程示意图
Fig. 10 Formation process of AION powder synthesized by carbothermal reduction and nitridation
(a) Mixture of Al_2O_3 and C; (b) Heated to 1550°C ; (c) Held at 1550°C for 60 min; (d) $\geq 1700^\circ\text{C}$; (e) After holding at 1750°C for a period of time (<60 min); (f) Held at 1750°C for 60 min

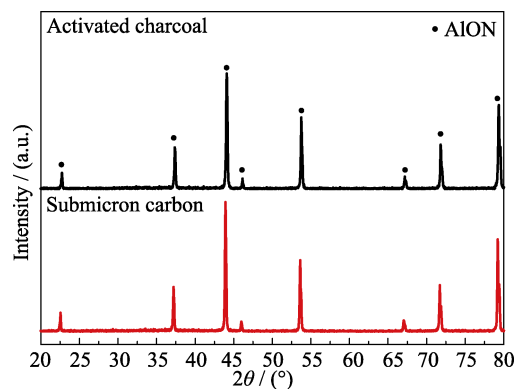


图 11 AION 陶瓷的 XRD 图谱
Fig. 11 XRD patterns of AION ceramics

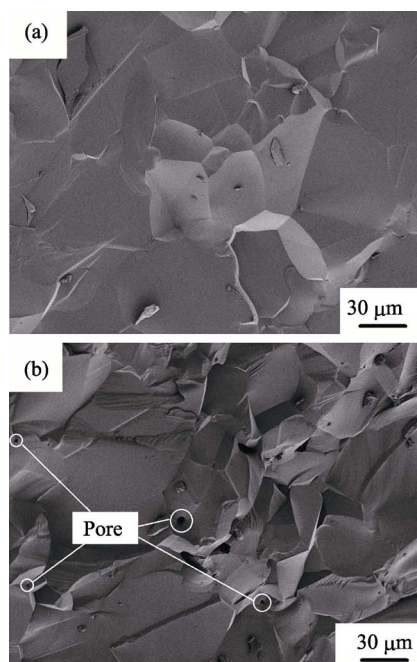


图 12 AION 陶瓷的断口形貌
Fig. 12 Fracture surfaces of AION ceramics
(a) Activated charcoal powder; (b) Submicron carbon

陶瓷, 在 1880°C 保温 150 min 样品的最大红外透过率比以亚微米碳粉为碳源合成的 AION 粉制备的陶瓷最大红外透过率提高 48.3%。

3 结论

1) 以 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 为原料, 采用活性炭和亚微米碳粉为碳源, 均合成了纯相 AION 粉体, 但是以活性炭为碳源时, 合成的 AION 粉体晶粒较小, 且呈无序状分布, 更易通过球磨获得颗粒细小的 AION 粉体。

2) 以活性炭为碳源时, 合成的 AION 粉体更适合无压烧结制备 AION 透明陶瓷, 样品的最大红外透过率为 76.5% (3 mm 厚样品), 比以亚微米碳粉为碳源合成的 AION 粉体制备的陶瓷透过率提高 48.3%。

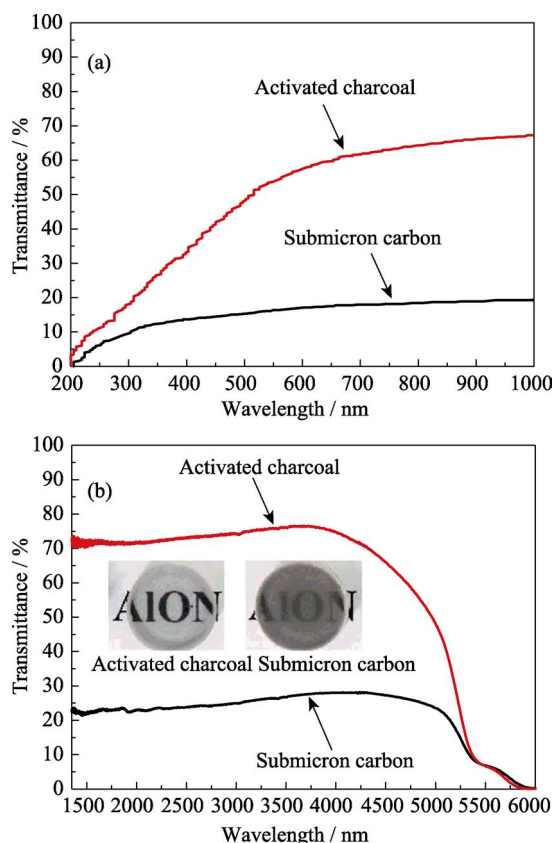


图13 AION 透明陶瓷的透过率曲线

Fig. 13 Transmittance curves of the transparent ceramics
(a) Visible light; (b) Infrared band

3) 活性炭的多孔结构特征及其高比表面积的特点有效地增加了 AION 粉体形成过程中的形核密度, 是获得较小晶粒且为无序状分布、易于球磨破碎获得高活性 AION 细粉的主要原因。因此, 增加形核密度有利于合成纯相、细颗粒、高活性的 AION 粉体。

参考文献:

- [1] JIANG DONG-LIANG. Transparent ceramics: one of the most important field of research and development of inorganic materials. *Journal of Inorganic Materials*, 2009, **24**(5): 873–881.
- [2] JIN X, LIAN G, JING S, *et al.* Highly transparent AION pressureless sintered from powder synthesized by a novel carbothermal nitridation method. *J. Am. Ceram. Soc.*, 2012, **95**(9): 2801–2807.
- [3] SONG K X, WU S Y, CHEN X M. Effects of Y_2O_3 addition on microwave dielectric characteristics of Al_2O_3 ceramics. *Mater. Lett.*, 2007, **61**(16): 3357–3360.
- [4] HARTNETT T M, BERNSTEIN S D, MAGUIRE E A, *et al.* Op-

- tical properties of AION (aluminum oxynitride). *Infrared. Phys. Technol.*, 1998, **39**(4): 203–211.
- [5] KRELL A, HUTZLER T, KLIMKE J. Transmission physics and consequences for materials selection, manufacturing, and applications. *J. Eur. Ceram. Soc.*, 2009, **29**(2): 207–221.
- [6] LIAO L L, TAN S H, JIANG D L. Liquid-phase sintering of SiC with $Al-B_4C-C$ as sintering aids. *Journal of Inorganic Materials*, 2002, **17**(2): 265–270.
- [7] WEINGARTEN N S, BYRD E F C. Special quasirandom structures of AION. *Comput. Mater. Sci.*, 2015, **96**(PartA): 312–318.
- [8] TU B, WANG H, LIU X, *et al.* First-principles study on site preference of aluminum vacancy and nitrogen atoms in γ -AION. *J. Am. Ceram. Soc.*, 2013, **96**(6): 1937–1943.
- [9] ZHANG N, LIANG B, WANG X Y, *et al.* The pressureless sintering and mechanical properties of AION ceramic. *Mater. Sci. Eng. A*, 2011, **528**(19): 6259–6262.
- [10] LEI JING-XUAN, SHI YING, XIE JIAN-JUN, *et al.* Effect of carbon sources on synthesis of AION powder and fabrication of transparent ceramics. *Journal of Materials Engineering*, 2015, **43**(8): 37–42.
- [11] YAO XIU-MIN, LIANG HAN-QIN, LIU XUE-JIAN, *et al.* Effect of carbon source and adding ratio on the microstructure and properties of solid-state sintering silicon carbide. *Journal of Inorganic Materials*, 2013, **28**(9): 1009–1013.
- [12] SHAN YING-CHUN, XU JIAN-XIN, GUAN CHUN-LONG, *et al.* Effects of milling time on phase assemblages of AION powders synthesized by CTRN. *Journal of Functional Materials*, 2014, **45**(4): 112–115.
- [13] LIU JING, LIU JUN, LI JIANG, *et al.* Influence of ball milling speed on microstructure and optical transparency of Nd: YAG ceramics. *Journal of Inorganic Materials*, 2015, **30**(6): 581–587.
- [14] LIU XUE-JIAN, YUAN XIAN-YANG, ZHANG FANG, *et al.* Fabrication of aluminum oxynitride transparent ceramics by carbothermal reduction nitridation process. *Journal of Inorganic Materials*, 2010, **25**(7): 678–682.
- [15] LIU Q, JIANG N, LI J, *et al.* Highly transparent AION ceramics sintered from powder synthesized by carbothermal reduction nitridation. *Ceram. Int.*, 2016, **42**(7): 8290–8295.
- [16] OFFERMAN S E, DIJK N H V, SIETSMA J, *et al.* Grain nucleation and growth during phase transformations. *Science*, 2002, **298**(5595): 1003–1005.
- [17] LEE S Y, FEIGELSON R S. Reduced optical losses in MOCVD grown lithium niobate thin films on sapphire by controlling nucleation density. *J. Cryst. Growth*, 1998, **186**(4): 594–606.
- [18] EASTON M, STJOHN D. An analysis of the relationship between grain size, solute content, and the potency and number density of nucleant particles. *Metall. Mater. Trans. A*, 2005, **36**(7): 1911–1920.
- [19] LEE Y C, DAHLE A K, STJOHN D H, *et al.* The effect of grain refinement and silicon content on grain formation in hypoeutectic Al-Si alloys. *Mater. Sci. Eng. A*, 1999, **259**(1): 43–52.
- [20] CORBIN N D. Aluminum oxynitride spinel: a review. *J. Eur. Ceram. Soc.*, 1989, **5**(3): 143–154.