● 试验研究 Experimental Research ●

DOI:10.16410/j.issn1000-8365.2023.3047

原位直接氮化法制备片状 AlN 粉体

庞皓然,李 康,赵 蕾,魏智磊,史忠旗

(西安交通大学 材料科学与工程学院,金属材料强度国家重点实验室,陕西 西安 710049)

摘 要:片状 AlN 粉体作为热界面材料的填料应用前景广阔,但制备工艺难度大、成本高限制了其实际应用。本文以球磨处理后得到的片状 Al 粉为铝源,在氮气气氛中通过原位直接氮化法成功制备出由等轴状微米颗粒结合而成的片状 AlN 粉体,并研究了球磨处理、氮化温度和升温速率对产物物相组成及显微形貌的影响。结果表明,球磨处理可增强 Al 粉的反应活性、提升氮化速率。升高氮化温度可提升 Al 粉的氮化率,但过高的氮化温度则会导致产物无法保持片状形貌;提高升温速率会增大等轴状微米颗粒的粒径。当氮化温度为 640 ℃、升温速率为 5 ℃/min 时,制备的片状 AlN 粉体表面最为致密、平整,有望作为热界面材料的填料使用。

关键词:氮化铝粉体;直接氮化法;填料;粉体形貌

中图分类号:TB383.3 **文献标识码**:A **文章编号**:1000-8365(2023)05-0405-06

Preparation of Flake-like AlN Powder by the In-situ Direct Nitridation Route

PANG Haoran, LI Kang, ZHAO Lei, WEI Zhilei, SHI Zhongqi

(State Key Laboratory for Mechanical Behavior of Materials, School of Materials Science and Engineering, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China)

Abstract: Flake-like AlN powder has broad application prospects as a filler for thermal interface materials (TIMs). However, the difficulty of preparation technology and high cost limit its practical application. In this work, flake-like AlN powder composed of equiaxed micro-particles was successfully prepared by in-situ direct nitridation in nitrogen atmosphere using flake-like Al powder obtained by ball milling as the Al source. The effects of the ball milling process, nitriding temperature and heating rate on the phase composition and microstructure of the products were studied. The results show that the ball milling process can enhance the reaction activity and nitridation rate of Al powder. Increasing the nitriding temperature can improve the nitriding rate of Al powder, but excessive nitriding temperature leads to the inability to maintain the flake-like morphology of the raw material. In addition, increasing the heating rate results in an increase in the particle size of equiaxed micron-particles. When the nitriding temperature is 640 ℃ and the heating rate is 5 ℃/min, the surface of the prepared flake-like AlN powder is compact and smooth, which is expected to be used as a two-dimensional inorganic filler for TIMs.

Key words: AlN powder; direct nitridation; filler; powder morphology

氮化铝(AlN)陶瓷具有六方纤锌矿型晶体结构,为强共价键化合物。AlN 陶瓷符合原子量低、晶格共振好、原子结合力强等原则,是一种热导率很高的陶瓷材料,其理论热导率可达 320 W/(m·K^{-1}),是Al_2O_3陶瓷的 5~10 倍[1-5]。此外,AlN 陶瓷的热膨胀系数只有 4.3×10^{-6}/K(与硅接近),且具有强度高、硬度大、介电常数低、介电损耗小、电阻率高、化学稳定性高等优点[6]。因此,AlN 陶瓷可作为热界面材料填料、高导热绝缘基板等,在电子封装领域应用广泛[4,7]。

陶瓷粉体作为热界面材料填料使用时,其颗粒尺寸及形貌对其使用性能有重要影响。一般来说,表面光滑、球形度好的粉体因其流动性好、堆积密度高,在填充量较高时可制备出热导率较高的聚合物基热界面材料[8]。但是陶瓷填料填充量较高时,也会降低热界面材料的填充性和弹性变形能力,不利于其实际应用。有研究表明,二维无机片状粉体(如片

收稿日期:2023-03-08

基金项目:国家自然科学基金(51872222);陕西省自然科学基础研究计划项目(2023-JC-JQ-29)

作者简介:庞皓然,1995 年生,硕士生.研究方向:热管理用氮化物陶瓷研究.电话:13384966702, Email: panghaoran0702@163.com

通讯作者:史忠旗,1982 年生,博士,教授.研究方向:结构功能一体化陶瓷研究.电话:15209229750, Email: zhongqishi@xjtu.edu.cn

引用格式:庞皓然,李康,赵蕾,等.原位直接氮化法制备片状 AlN 粉体[J].铸造技术,2023,44(5):405-410.

PANG H R, LI K, ZHAO L, et al. Preparation of flake-like AlN powder by the in-situ direct nitridation route[J]. Foundry Technology, 2023, 44(5): 405-410.

(C)1994-2023 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

状 Al_2O_3、h-BN、石墨烯等)相比于其球形粉体,更容易在聚合物基体中相互搭接形成导热通路,从而降低填料载量[9-11]。冯乾军[12]分别以球形 Al_2O_3 和片状 Al_2O_3 粉体为填料制备 Al_2O_3/环氧树脂复合材料,在相同填充量下对比发现,片状 Al_2O_3 粉体在复合材料基体中更容易相互搭接形成连续热扩散通路,使得热导率可达 0.962 W/(m·K^{-1}),是球形 Al_2O_3/环氧树脂复合材料热导率的 2.3 倍。由此可见,二维无机片状粉体非常适合作为热界面材料的填料使用。

对于片状 AlN 粉体的制备,近期也有相关报道。Dang 等[13]以片状 Al_2O_3 粉为模板,将其与炭黑混合,再通过碳热还原氮化法在 1 500 ℃的氮气气氛下成功制备出片状 AlN 粉体;董小琳等[14]以铝盐和含氮有机物的混合溶液为原料,采用前驱体法在含氮混合气氛下,在 900~1 200 ℃保温 2~4 h 制备出片状 AlN 粉体。通过上述两种方法虽然能够成功制备出片状 AlN 粉体,但均存在原料成本高、工艺复杂、合成温度高、生产周期长等弊端,限制了片状 AlN 粉体的应用。因此,开发高效率、低成本的工艺方法制备片状 AlN 粉体,对于推动其在电子封装领域的广泛应用意义重大。

直接氮化法是工业制备 AlN 粉体的常用方法,具有工艺简单、成本较低等优点。一般来说,该方法是以 Al 和少量添加剂(如铵盐、锂盐等)的混合粉体为原料,在流动氮气气氛中在 1 000~1 200 ℃保温 2 h 左右使 Al 粉和氮气发生反应形成 AlN 粉体[15-21]。基于上述研究进展可以试想,若以片状 Al 粉为模板,通过控制直接氮化工艺过程,使片状 Al 粉发生原位氮化,有望获得片状 AlN 粉体。然而,采用原位直接氮化法制备片状 AlN 粉体必然存在诸多难题亟待解决。例如,常规 Al 粉氮化法采用的温度远高于 Al 粉的熔点(660 ℃),导致氮化时 Al 粉发生熔化和聚集。这一方面会阻碍氮气向内扩散,抑制氮化反应的继续进行,从而降低 Al 粉的氮化率;另一方面片状 Al 粉熔化后,在表面张力的作用下难以维持原始片状结构,进而难以获得所需片状 AlN 粉体。

为了解决上述问题,验证在 Al 熔点以下,直接原位氮化合成片状 AlN 粉体的工艺可行性,本研究以球磨处理后的片状 Al 粉为原料,在低于其熔点的温度下对其进行原位直接氮化,最终成功制备出了片状 AlN 粉体。详细研究了球磨处理工艺、氮化温度和升温速率对产物物相组成及显微形貌的影响,并分析了其原位氮化合成机理。

1 实验材料及方法

1.1 样品制备

以球形 Al 粉(河南远洋铝业有限公司,平均粒径 ~8 μm,纯度>99.9%)为原料,对其进行湿球磨处理获得片状 Al 粉后,采用原位直接氮化法制备片状 AlN 粉体。具体来说,首先以无水乙醇为球磨介质,通过行星式球磨机对球形 Al 粉球磨处理 7 h,移入 80 ℃的烘箱中烘干 12 h,所用球料比为 7∶1、转速为 250 r/min。球磨过程中,球形 Al 粉发生塑性变形,从而获得片状 Al 粉。球磨处理前后 Al 粉的显微形貌如图 1 所示。

可以看出,球形 Al 粉在球磨后变成了片状 Al粉,其平均直径约为 15 μm、径厚比约 10∶1。随后,将球磨处理所得的片状 Al 粉放入 Al_2O_3 坩埚,并置于管式炉中。为了降低管式炉内的氧含量,连续两次进行抽真空、充氮气处理,然后通入流量为 250 mL/min 的高纯 N_2(99.999%),在一定升温速率(2~10 ℃/min)下将温度升至 590~650 ℃进行原位氮化 3 h,最终得到片状 AlN 粉体。

1.2 样品表征

采用日本理学公司生产的 D/MAX-2400 型 X 射线衍射仪(XRD)对产物进行物相分析,测试条件为铜靶 Kα 射线,管电压 40 kV,管电流 30 mA,射线波长 1.540 6 Å,扫描角度 20°~80°,扫描步长 0.02°,驻留时间 0.15 s/step;采用日立公司生产的 SU-6600 型场发射扫描电子显微镜(SEM)观察粉体的微观形貌,表征前对 AlN 粉体表面进行喷金处理以提高样品的导电性;采用德国耐驰公司生产的 STA449F3

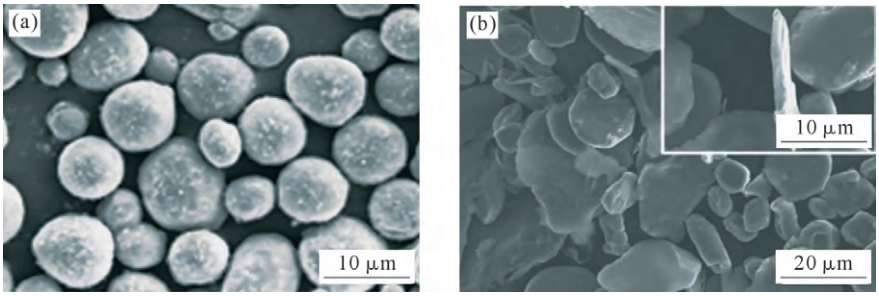


图 1 球磨前后 Al 粉的 SEM 图:(a) 原始球形 Al 粉,(b) 球磨所得片状 Al 粉

Fig.1 SEM images of Al powders before and after ball milling: (a) original spherical Al powder, (b) flake-like Al powder obtained by ball milling

(C)1994-2023 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

型同步热分析仪分析 Al 粉的氮化过程，升温速率为 10 ℃/min。

2　实验结果及讨论

2.1　球磨处理对氮化过程的影响

为了研究球磨处理对 Al 粉氮化反应过程的影响，将原始球形 Al 粉和球磨所得片状 Al 粉分别在管式炉中进行氮化处理，氮化温度为 640 ℃、保温时间为 3 h。对所得产物进行 XRD 分析，结果如图 2 所示。可以看出，在该反应条件下，原始球形 Al粉氮化后只检测到 Al 的衍射峰(PDF No. 00-089-4037)，并未发现 AlN 的衍射峰，表明原始球形 Al 粉在此条件下未发生明显氮化。而片状 Al 粉氮化后的产物中只检测到六方纤锌矿结构的 AlN 相 (PDF No. 00-025-1133)，且未检测到 Al 相的残留，表明球磨处理所得的片状 Al 粉在此条件下可发生完全氮化，其氮化反应如式 1所示。

$$2Al_{(s)}+N_{2(g)}\rightarrow 2AlN_{(s)} \quad (1)$$

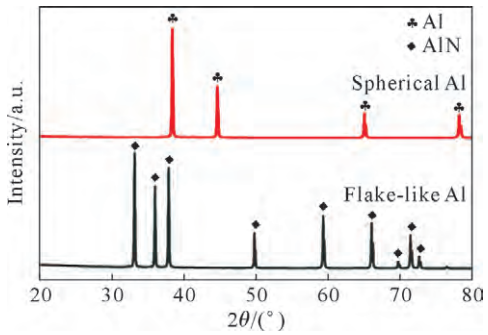


图 2　球形和片状 Al 粉在 640 ℃氮化 3 h 所得产物的 XRD 图谱

Fig.2　XRD patterns of spherical and flake-like Al powders nitrided at 640 ℃ for 3 h

为了进一步分析球磨处理对 Al 粉氮化过程的影响，将原始球形 Al 粉与球磨所得片状 Al 粉分别在 N_2 气氛下进行热重(TG)分析[22]，结果如图 3 所示。可以看出，原始球形 Al 粉在 550 ℃左右开始发生氮化增重，当温度升高至 650 ℃后增重减缓，表明此时 Al 粉的氮化速率减缓。另外，原始球形 Al 粉的氮化速率显著低于片状 Al 粉。这是由于球形 Al 粉氮化时会在表面形成 AlN 层，阻碍 N_2 向内部扩散，从而降低了氮化反应速率。片状 Al 粉在升温过程中开始出现缓慢减重，并在温度升至 550 ℃时发生氮化增重。减重阶段可能是球磨处理后的片状 Al 粉表面吸收了一定量的水分并在升温过程中挥发所致。而其氮化开始后增重速率明显高于球形 Al 粉，且并未随温度的升高而减缓。这主要是因为球磨处理过程中，Al 粉受到磨球的冲击、挤压和摩擦等作用，导致表面缺陷增多、表面能升高，因而氮化反应更容易进行。由以上结果可知，球磨处理后可以显著提升 Al 粉的氮化反应活性和速率，从而保证在低于其熔点的温度下实现完全氮化。

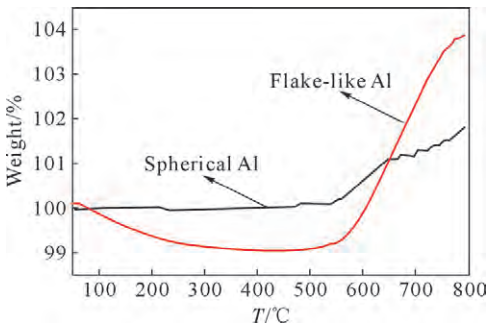


图 3　球形和片状 Al 粉在氮气气氛中的 TG 曲线

Fig.3　TG curves of spherical and flake-like Al powders in a nitrogen atmosphere

2.2　氮化温度对产物物相组成及显微形貌的影响

若氮化温度过低难以激活 Al 粉的氮化反应，而氮化温度过高(如超过 Al 的熔点)则会导致 Al 粉熔化呈液态而发生粘结或变形，难以维持原有片状形貌，进而影响原位氮化反应的进行。为探索最佳的氮化温度，以球磨所得片状 Al 粉为原料，控制升温速率为 10 ℃/min，分别在 590、610、620、640 和 650 ℃的温度下保温 3 h，研究氮化温度对所得产物相组成和微观形貌的影响。

图 4(a)为不同氮化温度所得产物的 XRD 图谱。

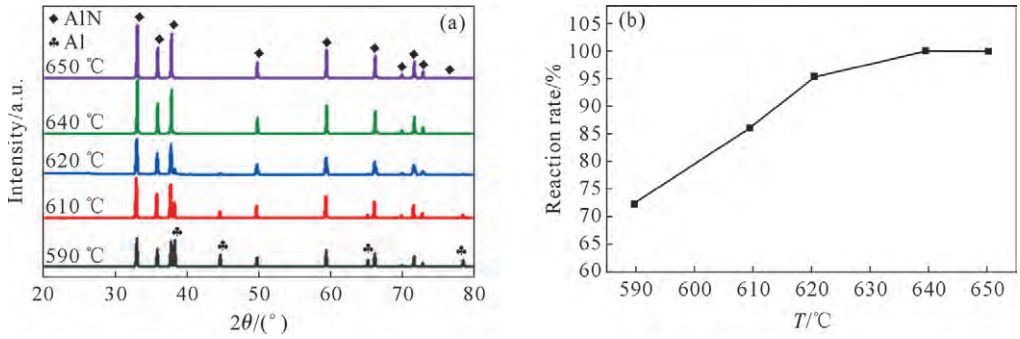


图 4　片状 Al 粉在不同氮化温度下所得产物的 XRD 图谱与氮化率：(a) 不同氮化温度所得产物的 XRD 图谱，(b) 不同氮化温度下片状 Al 粉的氮化率

Fig.4　XRD patterns of products and nitriding rate of flake-like Al powders at different nitridation temperatures: (a) XRD patterns of products obtained at different nitriding temperatures, (b) nitriding rate of flake-like Al powders at different nitriding temperatures

(C)1994-2023 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved.　http://www.cnki.net

在 590 ℃氮化反应后，所得产物中不仅存在 AlN 的衍射峰，还存在明显的 Al 衍射峰，表明在此温度下氮化反应虽然已经开始，但由于温度过低导致氮化反应不完全。随着氮化温度升高至 620 ℃，AlN 的衍射峰强度逐渐升高而 Al 的衍射峰强度逐渐降低。当氮化温度进一步升高至 640 ℃及以上时，产物中只存在 AlN 的衍射峰，表明 Al 粉已完全氮化。图 4(b)是由图 4(a)中的 XRD 结果通过 X'Pert High-Score 软件半定量计算所得的不同氮化温度下片状 Al 粉的氮化率。可以看出，随着氮化温度的升高，图 4(a)中 AlN 的衍射峰逐渐变强，XRD 半定量分析结果显示，片状 Al 粉的氮化率由 590 ℃的 72%提升到 620 ℃的 95%，并在反应温度达到 640 ℃及以上时，氮化率达到 100%，实现了完全氮化。因此，在保温 3 h 的氮化工艺条件下，640 ℃是片状 Al 粉实现完全氮化的最低温度。

图 5 为不同氮化温度所得产物的 SEM 照片。可以看出，所有氮化产物整体维持片状 Al 粉的结构。由 590 ℃和 610 ℃所得产物 SEM 照片可以清晰地看到片状 Al 的存在(图 5(a~b))，这与 XRD 结果一致。由图 5(c)可以看出，随着氮化温度升高至 640 ℃，片状 Al 粉基本消失，获得了整体为片状、表面由 1~2 μm 的等轴状颗粒结合而成的片状 AlN 粉体，其整体尺寸与片状 Al 粉相近。由此可推断，片状 Al 粉与 N_2 反应为原位氮化，AlN 晶核在 Al 粉表面多位点同时形核，晶核在保温过程中逐渐长大，形成具有这种特殊形貌的片状 AlN 粉。随着氮化温度的继续升高至 650 ℃，AlN 粉体产物无法保持 Al 粉的片状形貌，形成表面粗糙的不规则颗粒(图 5(d))。这是因为此时氮化温度接近 Al 的熔点，导致表面张力增大，片状 Al 粉在氮化过程中有恢复球形形貌的趋势。由此可知，片状 Al 粉发生原位氮化反应的最佳温度为 640 ℃，此时既能保证 Al 粉的完全氮化，又能维持其片状形貌。

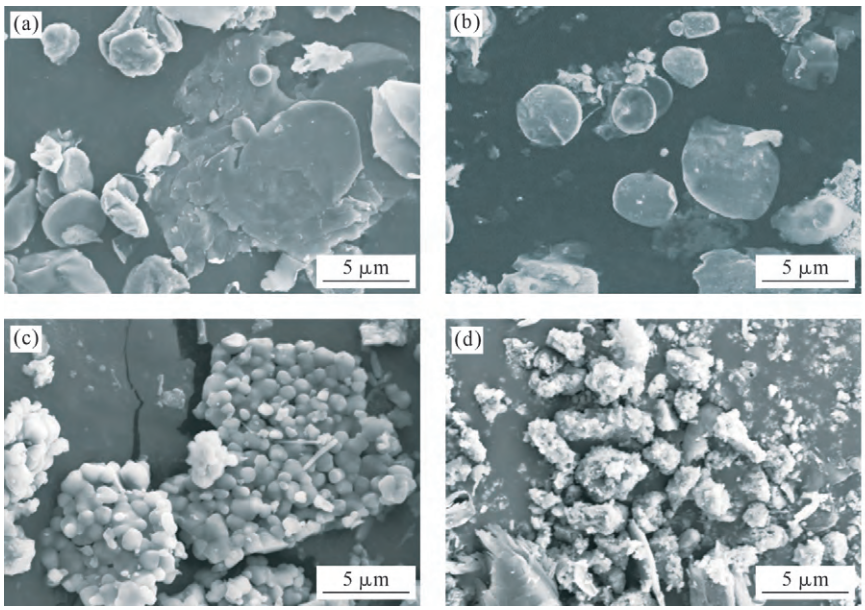


图 5 不同氮化温度所得产物的 SEM 图：(a) 590 ℃, (b) 610 ℃, (c) 640 ℃, (d) 650 ℃

Fig.5 SEM images of reaction products at different nitriding temperatures: (a) 590 ℃, (b) 610 ℃, (c) 640 ℃, (d) 650 ℃

2.3 升温速率对产物的影响

升温速率会影响晶体的形核和生长速率，进而影响产物的形貌。为了研究升温速率对产物形貌的影响，以球磨所得片状 Al 粉为原料，分别以 2、5 和 10 ℃/min 的升温速率升温到 640 ℃，保温 3 h 进行氮化反应。图 6 为不同升温速率所得产物的 XRD 图谱。在不同的升温速率下，所得氮化产物均为六方纤锌矿结构的 AlN 相，并未检测到任何杂质相。这说明升温速率对产物的物相组成并无影响，在此温度下片状 Al 粉均可完全氮化。

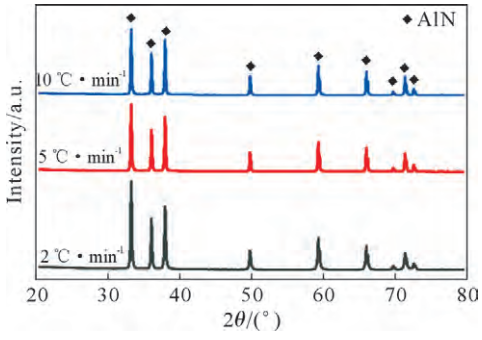


图 6 不同升温速率下所得产物的 XRD 图谱

Fig.6 XRD patterns of products obtained at different heating rates

图 7 为不同升温速率下所得产物的 SEM 照

(C)1994-2023 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

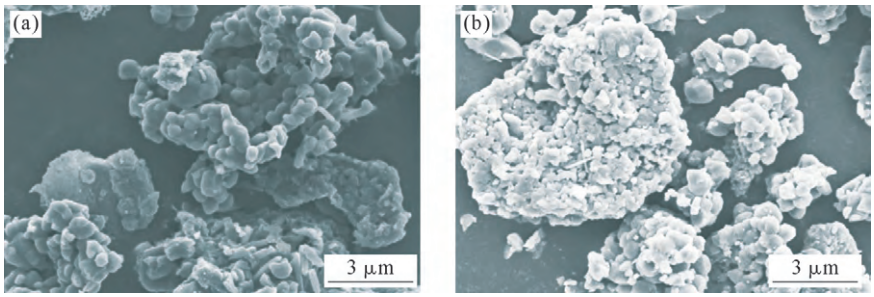


图 7　不同升温速率下所得产物的 SEM 图：(a) 2 ℃/min, (b) 5 ℃/min

Fig.7　SEM diagrams of products obtained at different heating rates: (a) 2 ℃/min, (b) 5 ℃/min

片。由图 7(a)可以看出，当升温速率较慢(2 ℃/min)时，产物边缘发生翘曲，无法较好地维持片状形貌；当升温速率提升至 5 ℃/min 时，产物表面较为致密、平整，微米尺度的等轴状 AlN 颗粒之间通过烧结颈相结合(图 7(b))；当升温速率进一步提升至 10 ℃/min 时，生成的产物表面较为疏松、等轴状 AlN 颗粒尺寸更大(图 5(c))。这主要是因为升温速率会影响物质在形核温度附近的驻留时间。适当降低升温速率可延长形核时间，在片状 Al 粉表面能够形成大量晶核，使得片状 AlN 粉体表面生成更多等轴状颗粒。借助 Nanometer 软件分析可知，在 5 ℃/min 的升温速率下，氮化产物表面颗粒的粒径更小，表面更加致密。然而过低的升温速率(2 ℃/min)会导致片状 Al 粉表面氮化物形核及晶核生长时间延长，表面晶核颗粒之间在体系能量最低的原理作用下通过应力释放造成片状颗粒边缘发生翘曲。因此，采用原位直接氮化法制备片状 AlN 粉的最优升温速率为 5 ℃/min。

2.4　片状 Al 粉的原位氮化机理

基于上述结果可知，以片状 Al 粉为原料，当氮化温度为 640 ℃、升温速率为 5 ℃/min 时，可成功制备出表面最为致密平整的片状 AlN 粉体。球磨处理对球形 Al 粉颗粒产生强烈的塑性变形，显著提升了 Al 粉的反应活性，使得球磨所得片状 Al 粉能够在低于其熔点的温度下发生完全直接氮化反应并保持片状 Al 粉的原有形貌。在氮化过程中，AlN 晶核在片状 Al 粉表面多个活性位点同时形核，且晶核在保温过程中逐渐长大，最终形成了由等轴状微米 AlN 颗粒结合而成的片状 AlN 粉体。原位直接氮化反应制备片状 AlN 粉体的生长过程如图 8 所示。

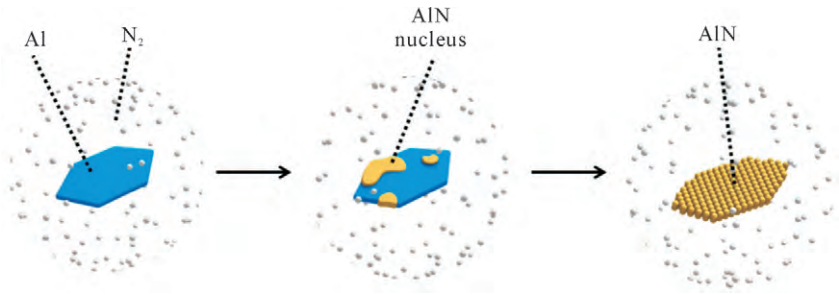


图 8　原位直接氮化制备片状 AlN 粉体的生长机理图

Fig.8　Schematic of the growth mechanism for flake-like AlN powder by in-situ direct nitridation

3　结论

(1)以球磨处理得到的片状 Al 粉为原料，通过原位直接氮化法在 N_2 气氛中以 5 ℃/min 的升温速率于 640 ℃保温 3 h，成功制备出表面较为致密平整的片状 AlN 粉体。

(2)球磨处理对球形 Al 粉颗粒产生强烈塑性变形，显著提升了 Al 粉的反应活性，使得球磨所得片状 Al 粉能够在低于其熔点的温度下发生完全直接氮化反应并保持片状 Al 粉的原有形貌。

(3)在氮化过程中，AlN 晶核在片状 Al 粉表面多个活性位点同时形核，且晶核在保温过程中逐渐长大，最终形成了由等轴状微米 AlN 颗粒结合而成的片状 AlN 粉体。所采用的原位直接氮化法具有高效率、低成本的特点，所制备的片状 AlN 粉体有望作为热界面材料填料在电子封装领域实现应用。

参考文献：

[1] XIANG M, ZHOU Y F, XU W T, et al. Hydrothermal-carbothermal synthesis of highly sinterable AlN nanopowders[J]. Journal of the American Ceramic Society, 2017, 100(6): 2482-2491.

[2] OLHERO S M, JENSEN M S, EINARSUD M A, et al. Thermodynamic studies on the AlN sintering powders treated with phosphate species[J]. Journal of the American Ceramic Society, 2007, 90(11): 3589-3595.

(C)1994-2023 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved.　http://www.cnki.net

[3] HE X L, YE F, ZHOU Z Q, et al. Thermal conductivity of spark plasma sintered AlN ceramics with multiple components sintering additive[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2010, 496(1-2): 413-417.

[4] 史忠旗, 金志浩, 宫本钦生. 燃烧合成 AlN 粉体的放电等离子烧结及其导热性能[J]. 硅酸盐学报, 2010, 38(8): 1445-1449.
SHI Z Q, JIN Z H, MIYAMOTO Y. Spark plasma sintering of AlN powders obtained from combustion synthesis and their thermal conductivity[J]. Journal of the Chinese Ceramic Society, 2010, 38 (8): 1445-1449.

[5] 张晓钰, 谢文琦, 史忠旗, 等. 陶瓷增强石墨复合材料研究进展[J]. 现代陶瓷技术, 2021, 42(1-2): 98-111.
ZHANG X Y, XIE W Q, SHI Z Q, et al. Progress of ceramic reinforced graphite composites[J]. Advanced Ceramics, 2021, 42(1-2): 98-111.

[6] BAIK Y, DREW R A L. Aluminum nitride: Processing and applications[J]. Key Engineering Materials, 1996, 122-124: 553-570.

[7] 王阿敏, 戴景杰, 欧永辉, 等. 占空比对铜/金刚石复合材料表面离子镀 AlN 膜层组织与性能的影响[J]. 铸造技术, 2020, 41 (12): 1176-1179.
WANG A M, DAI J J, OU Y H, et al. Effect of duty factor on microstructure and properties of AlN coating ion-plated on copper/diamond composite[J]. Foundry Technology, 2020, 41(12): 1176-1179.

[8] BOLT J D, BUTTON D P, YOST B A. Ceramic-fiber polymer composites for electronic substrates[J]. Materials Science and Engineering: A, 1989, 109: 207-211.

[9] SHI Z Q, MIYAMOTO Y, WANG H L. Combustion synthesis of aluminum Nitride (AlN) powders with controlled grain morphologies[M]. Hoboken: Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, 2014.

[10] 李聪, 张博, 胡加斌, 等. $MgSiN_2$-Y_2O_3 复合烧结助剂对 Si_3N_4 陶瓷力学及导热性能的影响[J]. 硅酸盐学报, 2021, 49(12): 2556-2562.
LI C, ZHANG B, HU J B, et al. Effect of $MgSiN_2$-Y_2O_3 sintering aids on mechanical properties and thermal conductivity of Si_3N_4 ceramics[J]. Journal of the Chinese Ceramic Society, 2021, 49(12): 2556-2562.

[11] HATTA H, TAYA M, KULACKI F A, et al. Thermal diffusivities of composites with various types of filler[J]. Journal of Composite Materials, 1992, 26(5): 612-625.

[12] 冯乾军. 高导热绝缘环氧树脂基复合材料的研究[D]. 浙江: 浙江工业大学, 2010.
FENG Q J. Study of thermal conduction mechanism of epoxy based composites[D]. Zhejiang: Zhejiang University of Technology, 2010.

[13] DANG T M, YOON D H, KIM C Y. Synthesis of 2-dimensional aluminum nitride platelets with (002) preferred orientation[J]. Science of Advanced Materials, 2018, 10(1): 89-94.

[14] 董小琳, 等. 一种片状氮化铝粉体的制备方法: CN108516835A[P]. 2018-09-11.
DONG X L, et al. Other inventors request not to disclose their names. A preparation method of flake aluminum nitride powder: CN108516835A[P]. 2018-09-11.

[15] 马超, 陈光德, 苑进社, 等. 直接氮化法制备氮化铝粉末的结构特性[J]. 功能材料, 2011, 42(9): 1599-1600, 1605.
MA C, CHEN G D, YUAN J S, et al. Structural characteristics of aluminium nitride nanowires synthesized by direct nitridization method [J]. Jorunal of Functional Materials, 2011, 42(9): 1599-1600, 1605.

[16] RADWAN M, BAHGAT M. A modified direct nitridation method for formation of nano-AlN whiskers [J]. Journal of Materials Processing Technology, 2007, 181(1-3): 99-105.

[17] 林健凉, 曲选辉, 黄栋生, 等. AlN 陶瓷粉末制备方法特点和进展[J]. 功能材料, 2001, 32(6): 576-579.
LIN J L, QU X H, HUANG D S, et al. Research development of synthesis methods of aluminum nitride powder [J]. Jorunal of Functional Materials, 2001, 32(6): 576-579.

[18] YIN L J, ZHU Q Q, YU W, et al. Europium location in the AlN: Eu green phosphor prepared by a gas-reduction-nitridation route [J]. Journal of Applied Physics, 2012, 111: 053534.

[19] HOTTA N, KANATANI M, YONEZAWA R, et al. Properties of AlN powders synthesized by rapid nitridation of Al powder in floating system: Thermec 2003 processing and manufacturing of advanced materials [C]. Switzerland: Trans Tech Publications, 2003. 4245-4250.

[20] 姜珩, 康志君, 谢元锋, 等. 铝粉直接氮化法制备氮化铝粉末[J]. 稀有金属, 2013, 37(3): 396-400.
JIANG H, KANG Z J, XIE Y F, et al. Synthesis of aluminum nitride powder by aluminum powder direct nitridation [J]. Chinese Journal of Rare Metals, 2013, 37(3): 396-400.

[21] 乐红志, 田贵山, 崔唐茵. 直接氮化法制备 AlN 粉的工艺研究与性能表征[J]. 硅酸盐通报, 2011, 30(6): 1449-1453.
LE H Z, TIAN G S, CUI T Y. Synthesis technique and characterization of aluminum nitride powders prepared by direct nitridation [J]. Bulletin of the Chinese Ceramic Society, 2011, 30(6): 1449-1453.

[22] 陈镜泓, 李传儒. 热分析及其应用[M]. 北京: 科学出版社, 1985.
CHEN J H, LI C R. Thermal analasis and its application[M]. Beijing: Science Press, 1985.

(C)1994-2023 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net