

화염분무열분해법에 의해 합성된 할로포스페이트 형광체 분말의 특성 Characteristics of Halophosphate Phosphor Particles Prepared by Flame Spray pyrolysis

손종락^{1,2}, 강윤찬^{*1}, 박희동¹, 윤순길²

¹한국화학연구원 화학소재부

²충남대학교 재료공학과

1. 서 론

옥외 평판 디스플레이 및 각종 표시소자로 사용되고 있는 LED(Light Emitting Diode)는 그 용도가 다양하고 휘도가 우수하여 현재 이에 대한 연구가 진행되고 있다. 하지만 적색, 녹색 및 청색을 구현하기 위하여 각각의 세라믹 박막을 따로 제조하여 하는 것 외에 백색을 구현하기 위하여 GaN LED 에 황록색 발광을 하는 YAG:Ce 형광체를 도포하는 등 제조공정이 복잡하고, 색 구현에 있어서 문제점이 제기되고 있다. 이에 장파장 자외선을 발광하는 LED에 적색, 녹색, 청색 및 이들의 조합으로 백색 발광을 하는 형광체를 도포시키는 비교적 간단한 방법이 연구중에 있다. 장파장 자외선을 발광하는 LED에 적합한 형광체중 청색 발광을 하는 형광체로는 할로포스페이트가 가장 유력하다. 하지만 기존의 제조방법인 고상법과 습식법으로 제조된 할로포스페이트 형광체는 그 크기가 수 마이크로에서 수십마이크로로 입자 크기가 크고 입도 분포 또한 상당히 광범위하여 LED 칩 위에 도포 시키기에는 문제점을 가지고 있다. 따라서 본 연구에서는 현재 미세크기 형광체 제조에 장점을 보이는 화염분무열분해법을 이용하여 할로포스페이트 형광체를 제조하였다.

2. 실험 방법

고휘도의 할로포스페이트 형광체를 제조하기 위하여 불꽃을 이용한 화염 분무열분해공정을 이용하였다. 할로포스페이트 형광체를 제조하기 위한 최적의 화염을 만들기 위해 불꽃이 생성되는 노즐의 프로판과 산소의 양 및 액적 운반기체로 사용된 산소의 양을 조절하였다.

$\text{Sr}_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ 및 $(\text{Sr},\text{Mg})_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ 형광체 분말을 제조하기 위하여 $\text{SrCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, $\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ 및 Eu_2O_3 를 증류수에 녹였고, 이렇게 하여 제조된 용액의 총 농도는 1M 로 하였다. 제조된 할로포스페이트 분말은 충분한 결정상 생성과 도핑제로 쓰인 유로피움이 청색 발광을 하는 2가로 환원되기 위하여 1000℃에서 3시간 동안 5% H_2/N_2 가스로 환원분위기를 조성하여 후열처리하였다. 최종적으로 제조되어진 할로포스페이트 형광체 분말들은 XRD, SEM에 의해 결정화 및 입자 형태를 분석하였고, 장파장 자외선(long-wavelength UV) 영역에서 빛 발광 특성을 상용 $\text{Sr}_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ 형광체와 비교 분석하였다.

3. 결과 및 고찰

화염분무열분해공정으로 제조되어진 $\text{Sr}_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ 및 $(\text{Sr},\text{Mg})_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ 형광체 분말들은 구형이면서 좁은 입도 분포를 가졌다. 하지만 결정상 생성과 유로피움의 환원을 위하여 고온에서 열처리하는 동안 염소성분의 휘발로 인하여 발광강도는 상용의 각각 18% 및 58%의 발광세기를 가졌다. 부족한 염소성분을 보충하기 위하여 기상용제의 한 방법으로 SrCl_2 및 NH_4Cl 을 후열처리 과정에서 첨가시킨 결과 상용의 각각 99% 및 110%의 발광강도를 가졌다. 하지만 후열처리 과정에서 첨가시킨 SrCl_2 와 NH_4Cl 은 기상용제의 역할을 하여 후열처리 전 구형이던 형태가 일그러지면서 중공성이면서 다공인 입자가 치밀한 구조를 가지게 되었다. 또한 장파장 자외선 발광 LED에 대한 적합성을 알아보기 위해 380nm 이상의 자외선을 이용하여 여기시킨 결과 $(\text{Sr},\text{Mg})_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ 형광체 분말은 증감제로 들어간 마그네슘의 영향으로 인하여 장파장 자외선 영역에서 우수한 발광강도를 가졌다.