다단침전법을 이용한 구형 $(Ba_{1-x},Sr_x)_2SiO_4$:Eu형광체의합성과발광특성

(Preparation and Luminescent properties of Spherical $(Ba_{1-x},Sr_x)_2SiO_4$:Eu Phosphors by Multistage precipitation method)

박정민, 김창해, 정하균, 박희동, 박윤창*
한국화학연구원 화학소재연구부
*성균관대학교 화학과

1. 서론

최근 발광다이오드의 응용 범위가 빠르게 확대되고 있는 가운데 국내 LED 업체들이 디스플레이용 '삼원색(RGB) LED 램프' 와 '백색 LED 램프'를 개발하였다. 이번에 개발된 삼원색 램프는 모두 동일 소재를 사용하기 때문에, 색깔 별로 각기 다른 화합물 반도체 소재를 적용함으로 인해 개별 램프 사이의 전기 광학적 특성 차가 심했던 기존 제품과는 달리, 색 구현 능력이 훨씬 뛰어난 것으로 알려져 있다. 또한, 백색 LED는 일본 니찌하(Nichia)의 황색 형광체를 이용한 기술이 아닌, 삼원색 광량의 비를 이용하는 방식이 사용되고도 있다. 이중에서 녹색형광체로 쓰이는 물질 중에 하나로써 $(Ba_{1-x},Sr_x)_2SiO_4$:Eu는 구형으로 제조된 예는 보고 된 바가 거의 없다. 본 연구에서는 입자형상이 제어된 실리카를 이용한 다단 침전법으로 구형의 녹색 형광체를 제조하였으며, 그에 따른 형광특성을 검토하였다.

2. 실험 방법

$(Ba_{1-x},Sr_x)_2SiO_4$:Eu 형광체를 제조하기 위한 출발 물질로 TEOS (tetraethyl orthosilicate)와 고순도의 $BaCO_3$, $SrCO_3$, Eu_2O_3를 이용하였다. 여기서, TEOS는 구형의 실리카를 제조하기 위해 사용되었으며, Eu_2O_3는 발광을 위한 활성제로써 사용되었다. 이 공정은 실리카를 침전시킨 후에 각각의 금속이온을 공침 시키는 다단 침전법에 의한 공정이다. 먼저, 다양한 크기를 가진 실리카를 제조하기 위해 EtOH 와 H_2O, Ammonia water를 10:1:1의 비율로 섞은 용액 상에서 TEOS를 상온 가수분해 시켰다. 이와 같이 제조된 실리카 입자와 $BaCO_3$, $SrCO_3$ 그리고 Eu_2O_3을 질산에 녹인 용액을 혼합한 후에, Oxalic acid를 침전제로 사용하여 2차 침전 시켰다. 이러한 침전법에 의해 형성된 전구체를 공기분위기에서 열처리 한 다음, 수소분위기에서 다시 한번 열처리함으로써 $(Ba_{1-x},Sr_x)_2SiO_4$:Eu의 녹색 형광체를 얻었다. 이 제조된 형광체의 결정성을 확인하기 위하여 X선 회절 패턴을 측정하였으며, 그 입자의 형상은 주사전자 현미경을 이용하여 관찰하였다. 그에 따른 발광 특성은 PL(photoluminescence spectroscopy)을 사용하여 평가하였다.

3. 실험 결과

다단 침전법에 의하여 제조된 $(Ba_{1-x},Sr_x)_2SiO_4$:Eu 형광체는 실리카 입자 크기를 0.5㎛에서 2㎛까지 조절하여 최종 생성물의 형상을 제어할 수 있었다. 이 형광체의 X-선 회절 패턴 분석 결과 고상 반응법에 의해 제조된 형광체 보다 낮은 온도에서 orthorhombic의 space group의 단일상을 얻을 수 있었음을 확인하였다. 또한, Sr mol%가 증가함에에 따라 PL 중심파장이 장파장으로 이동됨을 알수 있었다.