

졸겔법에 의한 YAG:Ce 형광체의 발광 특성

최형욱, 이승규, 차재혁, 장낙원*
 경원대학교, *한국해양대학교

Photoluminescence characteristics of YAG:Ce phosphor by sol-gel method

Hyung-Wook Choi, Seung-Kyu Lee, Jae-Hyeck Cha, Nak-Won Jang*
 Kyungwon University, *Korea Maritime University

Abstract : The Ce-doped YAG(Yttrium Aluminum Garnet, $Y_3Al_5O_{12}$) phosphor powders were synthesized by Sol-gel method. The luminescence, formation process and structure of phosphor powders were investigated by means of XRD, SEM and PL. The XRD patterns show that YAG phase can form through sintering at 1000°C for 2h. This temperature is much lower than that required to synthesize YAG phase via the conventional solid state reaction method. There were no intermediate phases such as YAP(Yttrium Aluminum Perovskite, $YAlO_3$) and YAM(Yttrium Aluminum Monoclinic, $Y_4Al_2O_9$) observed in the sintering process. The powders absorbed excitation energy in the range 410~510nm. Also, the crystalline YAG:Ce showed broad emission peaks in the range 480~600nm and had maximum intensity at 528nm.

Key Words : YAG(Yttrium Aluminum Garnet), Sol-gel, PL(Photoluminescence), Phosphor

1. 서론

백색 LED(Light Emitting Diode)는 실내조명등, 자동차 전조등 등의 조명장치와 BLU(Back Light Unit)를 필요로 하는 LCD(Liquid Crystal Display) TV, 모니터, 핸드폰 단말기, 디지털 카메라 및 캠코더 등의 표시장치에서 폭 넓게 사용되어지고 있다. 이는 LED가 가지고 있는 높은 색재현성과 전력 효율 그리고 낮은 적용 전압과 긴 수명 등의 장점 때문이다. 따라서, 현재 차세대 백색 광원용 LED에 대한 연구는 활발히 진행되고 있다.[1] 한편 백색 광원용 청색출수, 황색발광의 형광체에는 희토류 원소인 세륨(Ce)이 첨가된 YAG 형광체가 사용되고 있다.[2] 따라서 본 연구에서는 다성분계의 경우 성분 간의 균질한 혼합 및 분포가 가능하며 저온공정으로 입자의 제도가 가능한 졸겔법을 이용하여 YAG:Ce 형광체 전구체를 합성하였고, 소결 온도에 따른 YAG:Ce 형광체 입자의 특성을 XRD, SEM 그리고 PL을 이용하여 연구하였다.

2. 실험

YAG:Ce 형광체를 제작하기 위하여 출발 물질로서 $Y(NO_3)_3 \cdot 6H_2O$ (99.9%, Aldrich), $Al(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$ (99.997%, Aldrich), $Ce(NO_3)_3 \cdot 6H_2O$ (99.999%, Aldrich) 그리고 반응물과 용제로 citric acid와 ethylene glycol을 사용하였다. 졸겔반응을 위한 $Y(NO_3)_3$, $Al(NO_3)_3$ 그리고 $Ce(NO_3)_3$ 용액은 증류수를 이용하여 용해 시켰으며, 2.88Y:5Al:0.12Ce의 몰비로 혼합하였다. 이후 혼합된 용액에 citric acid와 ethylene glycol을 첨가하였고, hot plate와 magnetic bar를 이용하여 적합한 온도와 시간으로 stirring하였으며, 최종적으로 황색을 띤 전구체를 획득하였다. 획득한 전구체는 상승온도 5°C/min로 소결온도 800, 1000°C까지 승온한 후 2시간 동안 유지하고 furnace에서 냉각하는 조건으로 소결하여

YAG:Ce 형광체를 제작하였다.

3. 결과 및 고찰

전구체와 각각 다른 온도에서 소결된 YAG:Ce 형광체의 XRD 패턴을 그림 1에 나타내었다. 소결온도 800°C에서는 JCPDS file 33-0040에서 보고된 (420) 주피크를 갖는 YAG 상의 피크들이 서서히 나타나기 시작하였고, 이는 YAG 상의 결정화는 800°C부터 이루어지기 시작함을 나타낸다. 소결 온도 1000°C에 이르자 800°C에서의 잔 피크들은 사라지고 완벽한 YAG 상을 형성하였다. 이러한 소결 온도는 고상반응법에서 보다 훨씬 낮은 온도로 합성이 가능함을 나타내고, 게다가 안정한 중간체인 YAM과 YAP의 피크들은 전혀 보이지 않았다.

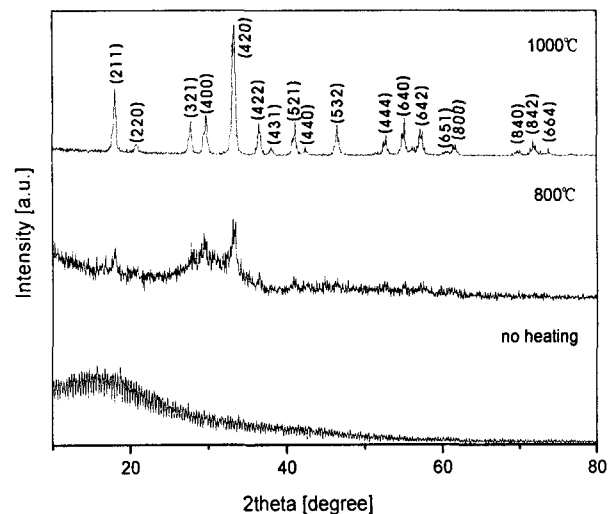


그림 1. 소결온도에 따른 YAG:Ce 형광체의 XRD 패턴

그림 2는 YAG:Ce 형광체의 소결온도에 따른 SEM 사진을 나타낸 것이다. 전구체에서는 입자의 모양이 고르지 못하고, 800℃에서 결정의 생성이 이루어지기 시작하여 원형의 형상을 나타내기 시작하였으며, 1000℃에서는 구조가 더 치밀화 되어 결정의 생성이 마무리 되는 것을 알 수 있다. 그림 3은 소결온도 변화에 따른 YAG:Ce 형광체의 여기 스펙트럼을 나타낸다. 800℃로 소결한 경우 470nm 부근에서 매우 미약한 스펙트럼이 발견되었고, 1000℃로 소결하자 410~510nm의 폭넓은 흡수 밴드를 나타내었으며, 466nm에서 최대의 밀도를 보였다. 이것은 GaN계 청색 LED와 함께 적용되기 위한 형광체로서 사용 가능함을 나타낸다. 방출 스펙트럼은 그림 4에 나타내었다. 소결온도 800℃에서는 방출 피크를 거의 찾아 볼 수 없었고, 1000℃에서는 480~600nm의 매우 넓은 방출 밴드를 나타내었으며, 528nm에서 최대의 밀도를 보였다. 이것은 일반적인 백색 발광을 위한 청색 흡수, 황색 발광의 형광체로서 사용이 가능함을 나타낸다.

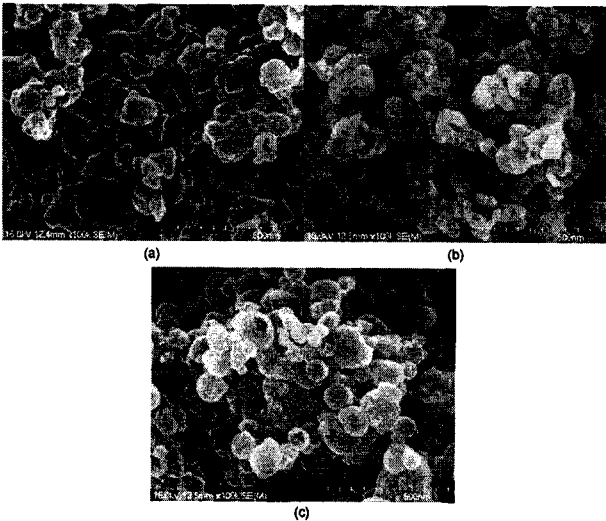


그림 2. 소결온도에 따른 YAG:Ce 형광체의 SEM 사진
(a) no heating, (b) 800℃, (c) 1000℃

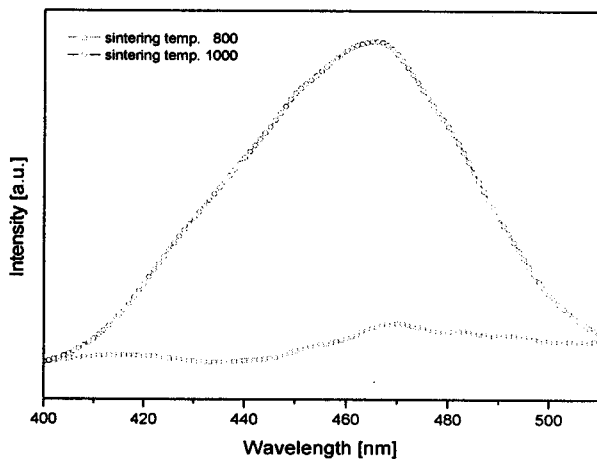


그림 3. 소결온도에 따른 YAG:Ce 형광체의 여기 스펙트럼

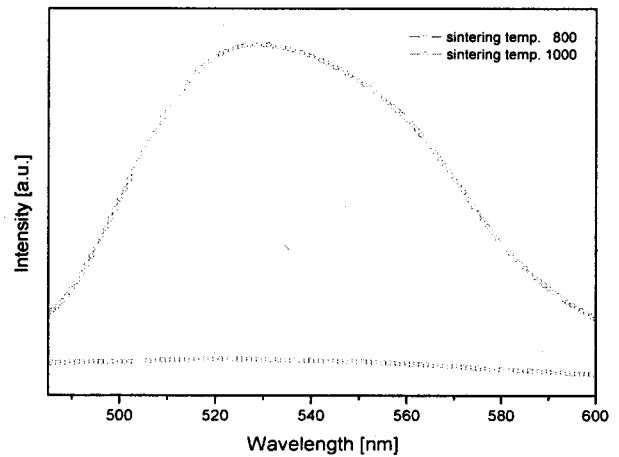


그림 4. 소결온도에 따른 YAG:Ce 형광체의 방출 스펙트럼

4. 결론

줄겔법을 이용하여 YAG:Ce 형광체를 제작하였고, 전구체 자체와 소결온도에 따른 전구체의 특성 변화에 대해 고찰하였으며 다음과 같은 결론을 도출하였다.

- 1) YAG:Ce 형광체는 소결온도 1000℃에서 JCPDS file 33-0040에 보고된 바와 같이 (420) 주피크를 갖는 XRD 피크가 확인 되었다.
- 2) SEM 사진을 통하여 소결온도 증가에 따라 전구체에서 YAG 결정으로의 결정화 과정을 관찰 할 수 있었고, 입자의 크기는 100nm 이하였다.
- 3) 1000℃에서 소결한 YAG:Ce 형광체의 여기 스펙트럼은 466nm의 중심을 갖는 폭 넓은 대역을 나타내었고, 방출 스펙트럼은 528nm의 중심을 갖고 480~600nm의 매우 넓은 대역을 나타내었다.

이와 같이 고상반응법보다 낮은 온도로 YAG:Ce 형광체를 제조 할 수 있었고, 제조된 형광체는 GaN계 청색 LED를 여기원으로 하여 황색을 방출하는 청색 흡수, 황색 발광의 백색 광원용 LED에 적용 가능한 형광체로서 사용이 가능할 것으로 사료된다.

참고 문헌

- [1] Y. Pan, M. Wu, and Q. Su, "Tailored photoluminescence of YAG:Ce phosphor through various methods", Journal of Physics and Chemistry of Solids, Vol. 65, No. 5, p. 845, 2004.
- [2] X. Li, H. Liu, J. Wang, H. Cui, and F. Han, "YAG:Ce nano-sized phosphor particles prepared by a solvothermal method", Materials Research Bulletin, Vol. 39, No. 12, p. 1923, 2004.