

포페이트계 열 형광체의 합성 및 광특성 평가

노 세 철 · 김 유 혁[†]
단국대학교 첨단 과학부

Preparation and Luminescent Characteristics of Phosphate-Based Phosphors

Seh-Chul Noh and Youhyuk Kim

Department of Chemistry, School of Advanced Sciences, Dankook University, Cheonan, Chungnam 330-714

(2001년 10월 29일 받음, 2001년 12월 20일 최종수정본 받음)

Abstract In order to search new phosphors for plasma display panel(PDP), phosphate hosts which has a host excitation band at around 150nm were prepared and their luminescent properties were investigated. In the preparation of $YPO_4:Eu$ and $(Y,Gd)PO_4:Eu$ phosphors, the effect of oxide and oxalate starting materials on prepared phosphors were compared in terms of relative emission intensities and particle characteristics. The results showed that oxalate starting materials gave better performance in emission intensities and smaller size and more round shape phosphors which would be more applicable for high resolution display. Additionally, Gd, V, Nb and Ta ions were doped to $YPO_4:Eu$ and the luminescent properties of the resultant solid solutions were investigated to find efficient sensitizer. Among these ions, Gd, V and Nb ions increased the emission intensities of parent phosphor to around 10%. While Nb ion gave the best result in emission intensities, CIE color coordinate were improved by doping V ion into $YPO_4:Eu$ phosphor to give $x=0.6523$, $y=0.3406$ compared to commercial sample.

Key words: chemical synthesis, oxalate, phosphate, PDP(plasma Display Panel), Phosphors, Luminescence

1. 서 론

현재 디스플레이 시장에서 대형 평판 디스플레이(Flat Panel Display)의 수요는 급격한 성장을 보이고 있으며 시장 점유율에 있어서도 수 년내에 CRT를 능가 할 것으로 예상된다.¹⁾ 그중 PDP(Plasma Display Panel)는 불활성 혼합 기체 방전 시 플라즈마로부터 나오는 진공 자외선 영역(147 nm, 172 nm)의 에너지를 이용하여 형광체를 들뜨게 하는 자체 발광형으로 유망한 대형 평판 디스플레이로 부각되고 있다.²⁾ 지금까지 개발된 PDP용 적색 형광체 중 현재 사용되고 있는 형광체인 $Y_2O_3:Eu$ 의 경우는 색좌표와 잔광시간에서는 우수하지만 발광 세기에서는 떨어짐을 보여주고 있으며, $(Y,Gd)BO_3:Eu$ 형광체는 발광 세기는 우수하지만 상대적으로 색좌표가 떨어진다고 보고되고 있다.³⁾ 그러므로 보다 우수한 PDP를 위해서는 휘도, 색좌표 및 잔광시간 등을 모두 만족할 수 있는 새로운 형광체의 개발이 필수적이라 할 수 있겠다. PDP용 형광체로 가능한 후보물질로는 우선적으로 진공자외선 영역에 모체 여기 띠(host excitation band)를 갖는 물질이 유망하리라 예상되고 있다.⁴⁾ 이런 사실을 뒷받침하는 것은 현재 상용되는 PDP용 적색 형광체인 $(Y,Gd)BO_3:Eu$ 의 경우 약 160 nm에 BO_3^{3-} 에 기인하는 모체 여기 띠를 갖고있으며, 상용 녹색 형광체인 $Zn_2SiO_4:Mn$ 의 경우도 약 175 nm에 SiO_4^{4-}

에 의한 여기 띠를 상용 청색 형광체인 BAM 계열 형광체(e.g. $BAMgAl_{14}O_{23}:Eu$, $BaMgAl_{10}O_{17}:Eu$ 등)도 약 175 nm에 aluminate에 기인하는 여기 띠를 갖고 있다. 본 연구에서는 이런 맥락에서 새로운 PDP용 형광체의 후보물질로 진공자외선 영역인 150 nm에 모체흡수 띠를 갖는 포스페이트(phosphate)⁵⁾ 계열의 형광체를 합성하여 광학적 특성을 분석함으로써 새로운 PDP용 형광체로서의 가능성을 타진하였다. 한편 형광체의 제조는 일반적으로 금속 산화물을 이용한 고상 반응에 의해 이루어지나 형광체내의 활성제의 균일성, 형광체 입자형상 및 크기의 제어가 쉽지 않은 문제점을 갖고 있다. 이러한 문제점을 극복하기 위하여 많은 연구자들에 의해 다양한 형광체 합성법들이 제시되고 있다.⁶⁻⁹⁾ 본 연구에서는 형광체 제조에 사용되는 출발 물질로 금속 산화물 대신에 균일 침전법으로 제조한 옥살산 염을 이용하여 형광체를 제조한 후 합성법에 따른 형광체의 입자형상, 크기 및 광학특성을 분석하여 합성법을 개선 하고자 하였다.

2. 실험 방법

2.1 고상 반응법에 의한 형광체의 합성

고상 반응에 의한 $YPO_4:Eu$ 형광체 제조에는 Y_2O_3 , $(NH_4)_2HPO_4$, Eu_2O_3 를 출발 물질로 화학양론적으로 정량하여 유발에서 20분~30분 정도 손실이 없도록 균일하게

[†] E-mail: hyukim@anseodankook.ac.kr

혼합한다. 이때 $(\text{NH}_4)_2\text{HPO}_4$ 의 경우 대기중에 수분을 많이 흡수하므로 수분의 유입이 최소화 되도록 Glove Box에서 수행하였다. 이것을 알루미나 보트(Alumina Boat)에 채워 관상형로(Tube Furnace)에 장입하여 100°C 정도에서 2시간 유지시킨 후 1100°C 에서 2시간 소성(Calcination)하여 합성하였다. 이 때 소성 중 휘발되는 $(\text{NH}_4)_2\text{HPO}_4$ 의 양을 보정하기 위해 20~30% 정도 과량을 첨가하여 합성하였다. 소성 후 생성물에 남아 있을 수 있는 불순물등을 제거하기 위해 증류수로 세척한 후 진공 오븐에서 건조시켰다. 모체의 포스페이트 음이온의 인(phosphorus)을 같은 산화상태의 원소로 치환하여 새로운 형태의 화합물인 $\text{Y}(\text{P},\text{X})\text{O}_4:\text{Eu}$ ($\text{X} = \text{V}, \text{Nb}, \text{Ta}$)를 합성하기 위하여 출발 물질로 Y_2O_3 , $(\text{NH}_4)_2\text{HPO}_4$, Eu_2O_3 에 V_2O_5 , Nb_2O_5 , Ta_2O_5 등을 각각 첨가하여 새로운 화합물을 합성하였다. 출발 물질 중 난용성 물질이 있는 관계로 고상법으로 진행하였다. 합성 후 불순물 등을 제거하기 위해 증류수로 세척하였으며 특히 $\text{Y}(\text{P},\text{V})\text{O}_4:\text{Eu}$ 의 경우는 암모니아수로 세척하여 주었다.

2.2 옥살산 염을 출발 물질로 한 형광체의 합성

본 연구에서는 금속 산화물을 직접 이용하는 고상반응의 단점인 성분 물질의 불균일성 등의 문제를 해결하기 위하여 용액 상에서 옥살산 염 전구체를 합성한 후 소성하는 합성법을 시도하였다. Y_2O_3 와 Eu_2O_3 를 0.01 mole로 정량하여 플라스크에 넣고 아세트산을 46.5ml를 넣어 반응시킨다. 물 46.5ml를 넣어 희석시킨 후, 물을 더 첨가해 150ml로 맞추어 0.067M의 용액을 만든다. 이것을 90°C 정도의 온도를 유지시키면서 완전히 투명하게 될 때까지 녹인다. 다른 플라스크에 옥살산 41.6g을 증류수 200ml에 용해시킨 후 90°C 정도를 유지시킨다. 다 녹은 두 용액을 교반 하면서 서서히 섞으면 백색 침전의 금속 옥살산 염이 생성된다. 이 생성물을 거른 후 침전을 물로 세척하고 오븐에서 $100\sim 150^\circ\text{C}$ 로 3시간 건조시키거나 진공 챔버에서 24시간 건조시킨다. 이를 800°C 에서 3시간 1차 소성한 후 일정량의 $(\text{NH}_4)_2\text{HPO}_4$ 를 혼합하여 1100°C 에서 2시간 소성시킨다. 생성된 반응물을 증류수로 세척한 후 진공 오븐에서 완전히 마를 때까지 건조시킨다.

합성된 형광체를 확인하고 입자의 결정성을 측정하기 위해 XRD(X-ray Diffraction, Shimadzu, Model XD-D1, $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$, lamp 30kV, 30mA, Cu K α)를 사용하였고, 입자의 모양 및 균일성을 확인하기 위해 SEM(Scanning Electron Micrograph, JEOL-5200)과 PSA(Particle Size Analyzer, Aero-Sizer)를 사용하였다. 본 연구에서는 발광·여기스펙트럼(emission·excitation spectrum) 및 색좌표(color chromaticity) 특성 분석을 플라즈마 디스플레이 패널(PDP)용 형광체의 주요 여기 파장인 진공자외선 147nm 하에서 VUV spectrometer (Acton Research Corp.)를 이용하여 하였다. VUV spectrometer의 광원은 중수소(deuterium) 램프를 사용하였으며 단색화장치(monochromator)를 이용하여 147nm로 단색화하여 사용하였다. 단색화장치와 sample chamber는 Turbo Molecular

Pump(TMP)를 사용해 4×10^{-5} torr 이상의 진공으로 유지시켰으며 형광체의 발광은 1200 groove/mm의 회절발(grating)을 사용해 380~780nm 범위를 0.5nm 간격으로 주사(scanning)한 후 광증배관(photomultiplier tube)으로 검출하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 $\text{YPO}_4:\text{Eu}$ 모체의 합성 및 확인

본 연구에서는 합성방법에 따른 형광체의 발광세기의 차이점을 알아보기 위해 금속 산화물을 출발 물질로 하는 직접 고상 반응과 균일 침전법으로 합성한 금속 옥살산 염을 출발 물질로 하는 형광체 합성법(이하 옥살산 염 전구체법으로 표기함)을 이용하여 $\text{YPO}_4:\text{Eu}$ 를 합성하였다. 직접 고상 반응의 경우 Y_2O_3 와 $(\text{NH}_4)_2\text{HPO}_4$ 를 1:2 몰비로 정확히 섞은 뒤 합성한 형광체는 백색의 덩어리진 분말 형태였으며, X-선 회절 분석결과 YPO_4 이외에 출발 물질인 Y_2O_3 가 완전히 반응하지 않은 채 소량 검출되었다. 이는 $(\text{NH}_4)_2\text{HPO}_4$ 의 분해온도(= 100°C)가 매우 낮은데서 오는 결과로 해석할 수 있다. 이를 방지하기 위해 알루미나 보트에 뚜껑을 사용하였으며, 20%~30% 과량의 mole%로 $(\text{NH}_4)_2\text{HPO}_4$ 를 넣어 비교적 낮은 온도인 100°C 에서 약 2시간 정도 유지 시켜준 뒤 1100°C 에서 2시간 소성 함으로써 불순물이 없는 완전한 YPO_4 모체를 합성할 수 있었다. 이와 같은 소성 조건 및 성분비율은 고상반응법과 옥살산 염 전구체법에서 동일하게 적용되었다. Fig. 1에 $(\text{NH}_4)_2\text{HPO}_4$ 를 정량 넣었을 때, 그리고 과량 넣었을 때의 X-선 회절 결과를 도시하였다. Fig. 1(a)는 $(\text{NH}_4)_2\text{HPO}_4$ 를 30mole% 정도 과량 첨가했을 때의 결과이고 (b)는 $(\text{NH}_4)_2\text{HPO}_4$ 를 정량적으로 첨가했을 때의 결과이다. X-선 회절 결과에서 알 수 있듯이 30mole% 정도 과량 첨가했을 때 출발 물질이 남지 않은 형광체가 합성되었음을 확인할 수 있었다.

합성된 형광체의 입자 크기 및 모양을 알아보기 위해 SEM과 PSA를 측정하였다. Fig. 2는 $\text{YPO}_4:\text{Eu}$ 형광체의 SEM 사진으로 (a)는 직접 고상 법으로 (b)는 옥살산

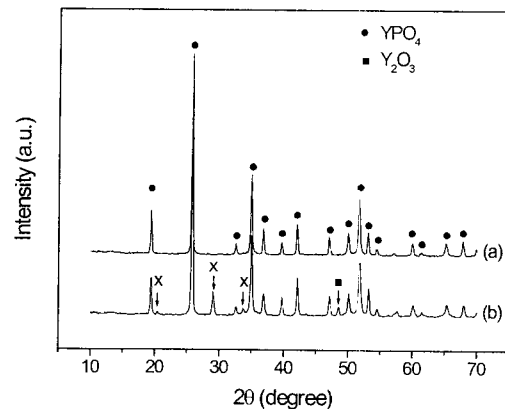


Fig. 1. XRD patterns of $\text{YPO}_4:\text{Eu}$ phosphors prepared by (a) using excess of ammonium hydrogen phosphate and (b) using stoichiometric amount of ammonium hydrogen phosphate

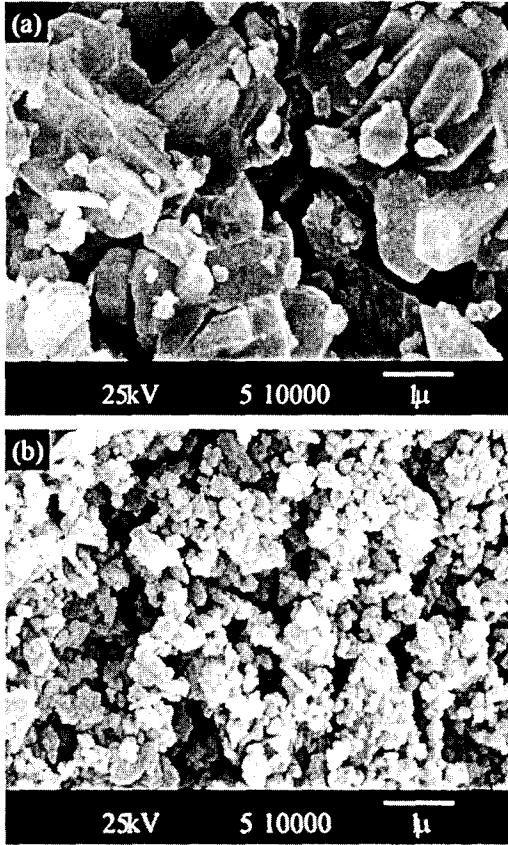


Fig. 2. SEM images of $YPO_4:Eu$ phosphors prepared by (a) using oxide starting materials and (b) using co-precipitated oxalate

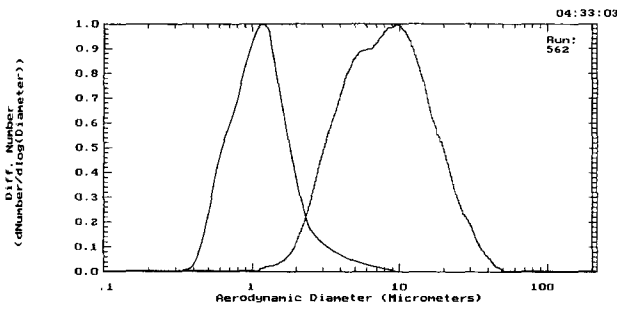


Fig. 3. Particle size analysis of $Y_{0.88}PO_4:Eu_{0.12}$ phosphors prepared by (a) using co-precipitated oxalate and (b) using oxide starting materials

염 전구체법으로 제조한 형광체이다. SEM 사진에 보듯이 옥살산 염 전구체법 의해 합성된 형광체는 고상 반응법에 의한 형광체보다 더욱 작은 $0.1 \sim 0.5 \mu m$ 의 고른 크기를 갖고 있으며 외형 또한 구형을 하고 있다. 형광체의 평균 입도크기는 Fig. 3의 PSA 분석결과에서 보듯이 고상 반응법은 $10 \mu m$ 이며 옥살산 염 전구체법은 $1 \mu m$ 로 보다 미세한 크기의 형광체를 주고 있다. 옥살산 염 전구체법에 의해 얻어진 형광체의 미세 구형 특성은 디스플레이 패널 제작시 광특성이 우수한 고 밀도의 형광막을 형성하리라 기대된다.

3.2 Eu 이온에 의한 농도 소광 (Concentration Quenching)¹⁰⁾

활성제인 Eu 이온의 농도를 조절하여 발광휘도가 최상인

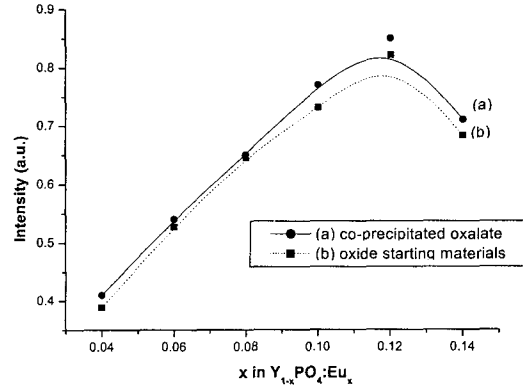


Fig. 4. Variation of emitting intensities of $Y_{1-x}PO_4:Eu_x$ phosphors prepared by (a) using co-precipitated oxalate and (b) using oxide starting materials as a function of Eu ion concentration under 147 nm excitation

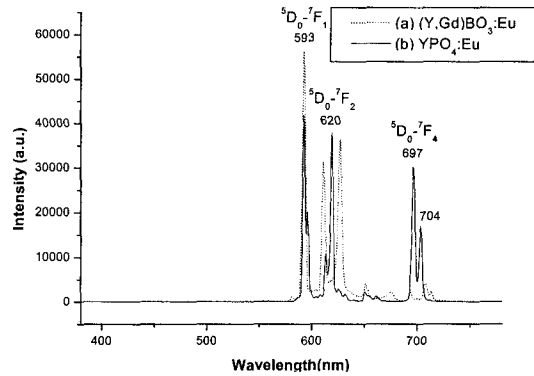


Fig. 5. Emission spectra of $YPO_4:Eu$ and $(Y,Gd)BO_3:Eu$ phosphors ($\lambda_{ex} = 147 nm$)

조성을 찾기 위하여 Y_2O_3 와 Eu_2O_3 의 조성에 변화를 주어 고상법과 옥살산 염 전구체법으로 $Y_{1-x}PO_4:Eu_x$ 를 제조하였다. 제조된 형광체의 휘도를 147nm의 진공자외선 하에서 상용 형광체인 $(Y,Gd)BO_3:Eu$ (Kasei)와 비교하였다. Fig. 4는 활성제인 Eu 이온 농도 변화 ($x = 0.04 \sim 0.14$)에 따른 147nm 진공자외선 하에서의 휘도 변화를 나타낸 것으로 활성제인 Eu의 농도가 12mol%일 때 상용 형광체 대비 82% 효율로 가장 좋은 발광 세기를 보였다. 그 이상의 농도에서는 농도 소광 현상에 의해 휘도가 감소하였다. 한편 합성방법의 차이에 따른 농도 소광점의 변화는 보이지 않았으나 옥살산 염 전구체법으로 합성한 형광체가 고상 반응법으로 합성한 형광체보다 전반적으로 높은 휘도를 보이고 있다. 이는 SEM 결과에서 알 수 있듯이 옥살산 염 전구체법으로 제조된 형광체가 작고 균일하며 구형인데서 오는 효과로 보다 큰 형광체 표면적에 의해 증가된 광량 효과로 설명할 수 있다.^{11,12)}

Fig. 5의 (a)는 147nm 광원하에서의 상용 $(Y,Gd)BO_3:Eu$ 의 발광스펙트럼이며 (b)는 $YPO_4:Eu$ 형광체의 발광스펙트럼이다. Fig. 5에서 알 수 있듯이 $YPO_4:Eu$ 형광체는 $\lambda = 593 nm$ 에서 가장 강한 발광피크를 보여준다. 이 피크는 Eu 이온의 f^6 케도내의 전자의 $5D_0 \rightarrow 7F_1$ 의 전이에 의한 스펙트럼을 보여준다. 그 외에 620nm, 697nm에서 비교적 강한 발광피크를 보여 주는데 620nm의 발광피크는 $5D_0 \rightarrow$

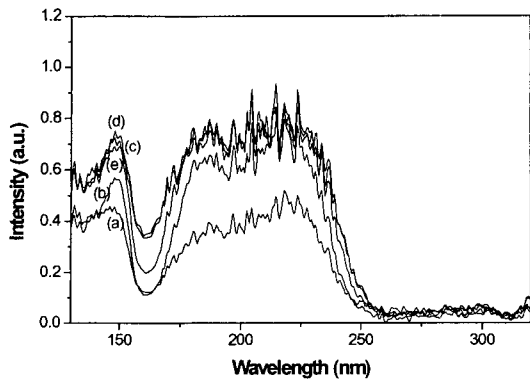


Fig. 6. Excitation spectra of $Y_{1-x}PO_4:Eu_x$ phosphors. (a) $x=0.06$, (b) 0.08, (c) 0.10, (d) 0.12 and (e) 0.14 ($\lambda_{em}=593nm$)

7F_2 의 전이에 의해 나타나며 697nm의 발광피크는 $^5D_0 \rightarrow ^7F_4$ 의 전이에 의해 나타난다.¹³⁻¹⁶⁾

상용 형광체인 $(Y,Gd)BO_3:Eu$ 의 발광스펙트럼과 비교해 볼 때 휘도 및 색좌표에 가장 영향을 많이 주는 주 피크의 위치는 593nm로 동일하나 697nm부근에서 상용스펙트럼에서는 나타나지 않는 비교적 강한 피크가 나타난다. 이는 Eu 이온이 이들 두 모체에서 서로 다른 대칭 자리에 위치하기 때문이다.^{14,16)}

Fig. 6은 $YPO_4:Eu$ 적색 형광체의 가장 발광세기가 강한 593nm 피크를 선택하여 120~300nm에서 여기하여 세기 변화를 관측한 여기 스펙트럼이다. 이 스펙트럼에서는 225 nm에 중심을 둔 $YPO_4:Eu$ 의 넓은 전하이동 띠 (charge transfer band)와 150 nm에 중심을 둔 비교적 좁은 PO_4^{3-} 에 기인한 모체 여기 띠 (host excitation band)를 관측할 수 있다. 이러한 결과는 Nakazawa 등에 의해 문헌에 보고된 결과와 일치하고 있다.⁴⁾ 또한 여기 스펙트럼에서 Eu 이온 농도가 12mol%인 형광체가 다른 조성들과 비교하여 147 nm에서 가장 강한 세기를 보이고 있으며, 이는 앞의 발광 스펙트럼의 결과와 잘 일치하고 있다. 150 nm의 모체 여기 띠의 발광세기는 Eu 이온에 대한 농도의존성을 보이는데 이는 PO_4^{3-} 가 Eu 이온에 효과적으로 에너지를 전이함을 제시하고 있다.¹⁷⁾

3.3 $YPO_4:Eu$ 에 Gd, V, Nb 및 Ta 이온의 치환에 의한 발광 특성 변화

3.3.1. Gd 이온의 영향

증감제의 영향을 알아보기 위해 $Y_{0.88}PO_4:Eu_{0.12}$ 형광체의 Y 이온을 다양한 조성의 Gd 이온으로 치환하여 $(Y_{1-x}, Gd_x)_{0.88}PO_4:Eu_{0.12}$ 형광체를 합성하였다.

Fig. 7은 고상 반응법과 공침법으로 각각 제조한 $(Y_{1-x}, Gd_x)_{0.88}PO_4:Eu_{0.12}$ 형광체에서 Gd 이온 치환량 ($x=0.05 \sim 0.20$)에 따른 147nm에서의 발광 세기 변화를 나타낸 것이다. 두 합성법으로 합성한 형광체 모두 증감제 Gd 이온의 치환량이 증가할수록 휘도가 증가하다가 15mole% 이후에서 발광 세기의 감소를 보이고 있다.

Gd 이온 치환에 따른 147nm에서의 휘도 증가는 Gd 이온에서 Eu 이온으로의 에너지 전이 (energy transfer)^{18,19)}에 기인한 것이며 15mole% 이상의 Gd 이온 치환에서는

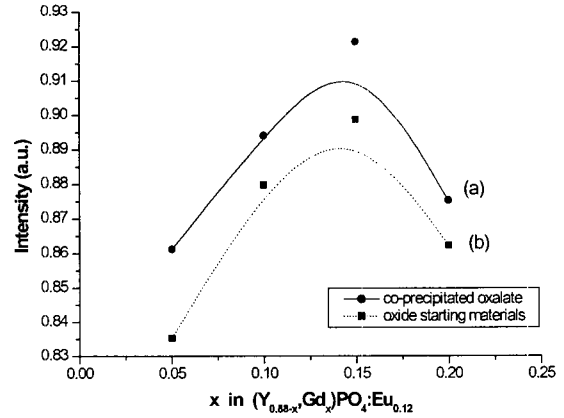


Fig. 7. Variation of emitting intensities of $(Y_{0.88-x}, Gd_x)PO_4:Eu_{0.12}$ phosphors prepared by (a) using co-precipitated oxalate and (b) using oxide starting materials as a function of Eu ion concentration under 147 nm excitation

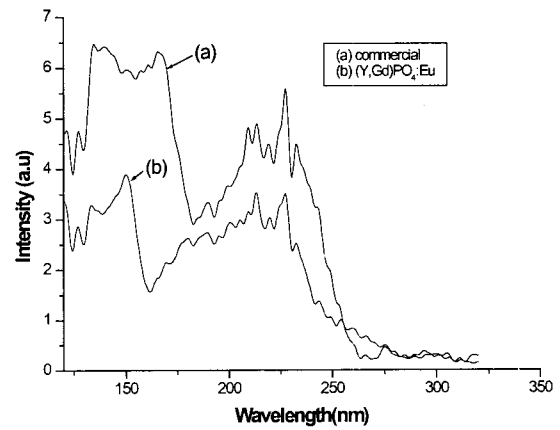


Fig. 8. Excitation spectra of $(Y_{0.75}, Gd_{0.15})PO_4:Eu_{0.12}$ ($\lambda_{em}=593nm$)

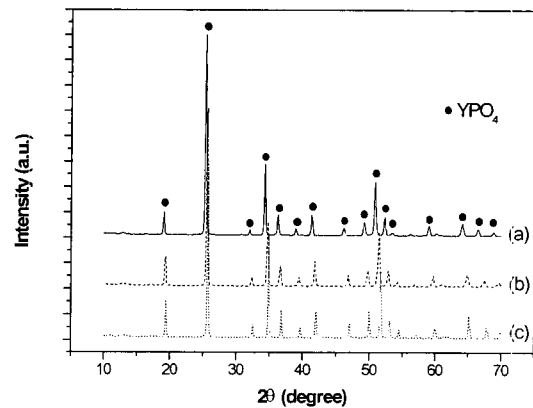


Fig. 9. XRD patterns of $Y_{0.88}(P_{1-x}, V_x)O_4:Eu_{0.12}$ phosphors. (a) $x=0.05$, (b) 0.1, (c) 0.15

휘도 감소를 보이는데 이는 Gd 이온이 너무 증가하게 되면 열이나 다른 에너지로 흡수되어 발광으로 나타나지 않음을 알 수 있다.

Fig. 8은 고상법으로 제조한 $(Y_{1-x}, Gd_x)_{0.88}PO_4:Eu_{0.12}$ ($x=0.15$) 형광체의 발광파장을 593nm($^5D_0 \rightarrow ^7F_1$)에 고정하여 측정한 여기 스펙트럼을 보여주고 있다. 앞의 $YPO_4:Eu$ 형광체의 여기 스펙트럼과 유사하게 140nm~170nm

에서 보이는 흡수는 모체 흡수의 여기 띠이며 200nm~250nm에서의 피크는 Eu-O의 전하 이동 띠(charge transfer band)이다. 그러나 광원(중소수램프)의 세기가 200nm이상의 UV 영역에서는 너무 약해 Gd 이온의 에너지 전이에 의한 피크는 관찰 할 수 없었다.

3.3.2 V, Nb 및 Ta 이온의 영향

모체 YPO₄의 P(Phosphorus)를 5B족의 원소인 V, Nb, 및 Ta 이온으로 5mole%~15mole%를 치환하여 Y(P_{1-x},X_x)O₄:Eu_{0.12} (X= V, Nb, Ta)를 합성한 후 광특성 변화를 분석하였다. Fig. 9는 고상 반응법으로 합성한 Y(P,V)O₄:Eu 형광체의 V 이온 조성별 X-선 회절 패턴으로 (a)는 V 이온을 5mol% 치환했을 때, (b)는 10mol% 그리고 (c)는 15mol%를 치환했을 때의 패턴이다. 이 형광체를 만들때도 (NH₄)₂HPO₄를 30mole% 과량 넣어 만들었다. 혹시 남아있을 수 있는 불순물을 제거하기 위해 암모니아수와 3차 중류수 등으로 세척하고 건조한 후 측정하였다. Fig. 9를 통해 알 수 있듯이 Y(P,V)O₄:Eu의 X-선 회절 패턴은 YPO₄:Eu와 거의 동일하였으며, Y(P,Nb)O₄:Eu, Y(P,Ta)O₄:Eu 형광체도 거의 동일했다. Gd 이온과 마찬가지로 V, Nb 및 Ta 이온도 연구된 농도범위 내에서 다른 결정 상을 만들지 않는 것으로 판단되었다. Fig. 10은 Y(P,

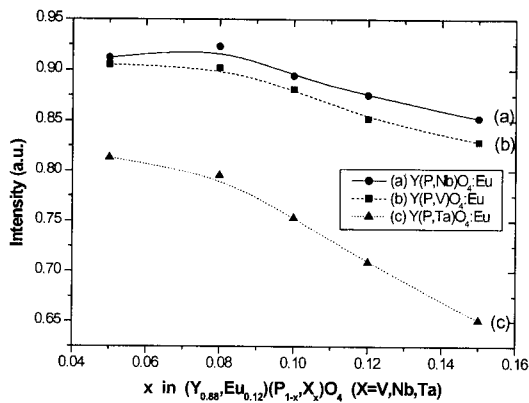


Fig. 10. Variation of emitting intensities of Y_{0.88}(P_{1-x}X_x)O₄:Eu_{0.12} phosphors as a function of X ion concentration under 147 nm excitation. (a) X=Nb, (b) V, (c) Ta

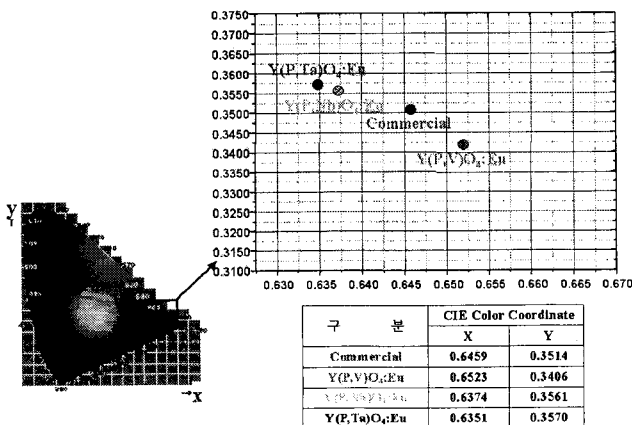


Fig. 11. CIE Color Coordinates of Y(P,X)O₄:Eu (X=V,Nb,Ta) phosphors

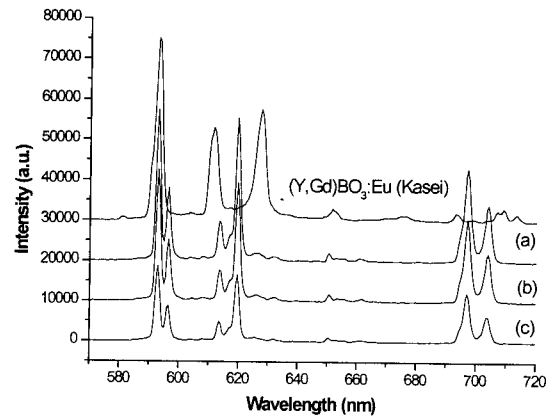


Fig. 12. Emission spectra of Y(P,X)O₄:Eu ((a) X= V, (b) Nb, (c) Ta) phosphors

X)O₄:Eu (X=V, Nb, Ta)의 첨가된 이온 조성별 발광세기의 변화를 보여주고 있다. Fig. 10으로부터 알 수 있듯이 P 이온을 Nb 이온으로 8mol% 치환하여 만든 형광체가 가장 좋은 발광 효율을 보였으며 상용형광체인 (Y,Gd)BO₃:Eu와 비교해 약 92% 정도의 발광 효율을 보였다. V, Nb 이온과 비교해 볼 때 Ta 이온의 경우는 치환하지 않았을 때 오히려 발광세기를 급격히 떨어뜨리는 효과를 나타냈다. 따라서 V, Nb만이 형광체 내에서 효율적으로 에너지를 전달하는 적절한 증감제임을 알 수 있었다.

Fig. 11에 Y(P,X)O₄:Eu (X= V, Nb, Ta) 형광체의 색좌표 값을 표시하였다. 색좌표 값은 V 이온으로 치환한 Y(P,V)O₄:Eu 형광체가 나머지 형광체뿐만 아니라 상용형광체 보다도 우수하였다. 한편 Y(P,Nb)O₄:Eu 형광체는 상용형광체 보다 좀 못한 값을 보였으며 Y(P,Ta)O₄:Eu 형광체는 휘도뿐 아니라 색좌표도 성능이 떨어졌다. Fig. 12는 Y(P,X)O₄:Eu (X= V, Nb, Ta) 형광체의 발광 스펙트럼을 동시에 도시하여 비교한 그림이다. 두 형광체 모두 593nm에서 가장 큰 피크가 나타나고 있으며 620nm, 697nm에서 비교적 큰 피크가 나타나고 있다. YPO₄:Eu와 비교해 거의 동일한 모습을 갖는 것을 알 수 있다.

4. 결 론

본 연구에서는 형광체 합성의 출발 물질을 달리하여 제조된 형광체의 발광 휘도 및 입자 특성을 비교하였으며 그 결과 옥살산 염을 전구체로 하는 합성법이 우수함을 확인할 수 있었다. 또한 현재 상용되는 PDP용 적색 형광체의 대체 물질 탐구결과 포스페이트(PO₄³⁻) 계열의 모체물질이 PDP용 형광체로서 적용 가능성이 매우 높은 물질임을 알 수 있었다. 본 연구에서 얻은 결과는 다음과 같이 요약 할 수 있다.

- 1) 출발 물질로 금속 산화물을 직접 이용한 경우와 금속 옥살산 염을 이용하여 합성한 YPO₄:Eu 형광체는 금속 옥살산 염을 이용한 경우가 발광세기가 우수할 뿐만 아니라 입자의 모양 및 크기에서도 1 μm의 구형 형광체를 형성하므로서 형광막 형성에 유리하리라 기대된다.

2) $YPO_4:Eu$ 형광체의 발광 스펙트럼은 상용 형광체인 $(Y,Gd)BO_3:Eu$ 형광체와 같이 $\lambda=593nm$ 에서 가장 강한 적색 발광 피크를 보여주며 이러한 주 피크는 $(Y,Gd)PO_4:Eu$ 뿐 아니라 $Y(P,X)O_4:Eu$ ($X=V, Nb, Ta$) 형광체에 서도 유사했다. 발광세기는 Eu 이온을 12mol% 정도 넣어 주었을 때 상용 형광체 대비 82%의 효율로 가장 좋게 나왔다.

3) $YPO_4:Eu$ 형광체의 발광세기는 Gd 이온 15mol% 및 Nb 이온 8mol%의 첨가에 의해 약 10% 정도증가 하여 이들 이온이 적절한 증감제 임을 알 수 있었으며 최대 발광 세기는 상용품 $(Y,Gd)BO_3:Eu$ 의 92% 수준에 이르렀다. 한편 색좌표 특성은 V 이온을 첨가했을 때 CIE 색좌표가 상용품 보다 짙은 적색으로 이동하여 $x=0.6523, y=0.3406$ 의 개선된 값을 보였다.

감사의 글

이 연구는 2000년도 단국대학교 대학 연구비의 지원으로 연구되었으며 이에 감사합니다.

참 고 문 헌

1. Y.-W. Lee, in Proceedings of the 18th International Display Research Conference (Seoul, Korea, Sept. 1998) p. 5.
2. S. Matsumoto, *Electronic Display Devices*, John Wiley & Sons, New York (1984).
3. F. Yoshimura and M. Yamakaya, in Proceedings of the Third International Display Workshops (Kobe, Japan, Nov. 1996) 2, p.77.
4. E. Nakazawa and F. Shiga, *J. Luminescence*, **15**, 255 (1997).
5. C.Kim, H. Bae, J. Byun and K.Hong, *J. Korean Chem Soc.*, **42**, 588 (1998).
6. D. Sordelet and M. Akinc, *J. Colloidal & Interface Sci.* **122**, 47 (1988).
7. S. Cho, S. Kwon, J. Yoo, C. Oh, J. Lee and K. Hoo, *J. Electrochem. Soc.*, **147**, 3143 (2000).
8. J. Lin, D.U. Sanger, M. Mennig and K. Barner, *Materials Science & Engineering*, **B64**, 73 (1999).
9. S.W. Lu, T. Copeland, B.I. Lee, W. Tong, B.K. Wagner, W. Park and F. Zhang, *J. Phys. & Chem. Solid*, **62**, 777 (2001).
10. D.L. Dexter, and J. H. Schulman, *J. Chem. Phys.*, **22**, 1063 (1954).
11. S. Oshio and K. Kitamura, *J. Electrochem. Soc.*, **146**, 392 (1999).
12. Y.C. Kang and S.B. Park, *J. Electrochem. Soc.*, **146**, 2744 (1999).
13. G. Blasse and A. Bril, *Philips Technical Review*, **31**, 304 (1970).
14. G. Blasse and B.C. Grabmaier, *Luminescent Materials* p. 41 Springer-Verlag, (1994)
15. S. Shionoya and W.M. Yen, *Phosphor Handbook CRC Press*, p.261 (1998).
16. U. Rambabu and S. Buddhuda, *Optical Materials*, **17**, 401 (2001).
17. T. Fukuzawa and S. Tanimizu, *J. Luminescence*, **16**, 447 (1978).
18. R.C. Ropp *J. Electrochem. Soc.*, **112**, 181 (1965).
19. Y. Shin, Y. Do and Y. Kim, *Bull. Kor. Chem. Soc.*, **18**, 1112 (1997).