

분무열분해법에 의해 합성된 장파장 자외선용 할로포스페이트계 형광체의 특성

손종락^{1,2} · 강운찬^{1†} · 박희동¹ · 윤순길²

¹한국화학연구원 화학소재부

²충남대학교 재료공학과

Characteristics of Halophosphate Phosphor for Long-wavelength UV Prepared by Spray Pyrolysis

Jong Rak Sohn^{1,2}, Yun Chan Kang^{1†}, Hee Dong Park¹ and Soon Gil Yoon²

¹Advanced Materials Division, Korea Research Institute of Chemical Technology,

P. O. Box 107, Yusong, Daejeon 305-600

²Department of Materials Engineering, Chungnam National University, Yusong, Daejeon 305-764

(2002년 3월 30일 받음, 2002년 7월 10일 최종수정본 받음)

Abstract Blue-emitting $\text{Sr}_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ and $(\text{Sr,Mg})_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ phosphor particles for application of long-wavelength UV LED were prepared by ultrasonic spray pyrolysis. The luminescence characteristics under long-wavelength ultraviolet of the $\text{Sr}_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ and $(\text{Sr,Mg})_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ phosphor particles prepared by the spray pyrolysis were compared with that of the commercial product. The PL intensity of the $\text{Sr}_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ particles prepared by the spray pyrolysis was lower than that of the commercial $\text{Sr}_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ particles because prepared $\text{Sr}_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ phosphor particles had porous structure and hollow morphology. However, the PL intensity of the $(\text{Sr,Mg})_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ phosphor particles prepared by the spray pyrolysis was 8% higher than that of the commercial one. The high brightness of $(\text{Sr,Mg})_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ phosphor particles prepared by spray pyrolysis is due to the dense structure and high crystallinity of particles. The $(\text{Sr,Mg})_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ phosphor particles had main emission peak at 448 nm under long-wavelength ultraviolet.

Key words: optical materials, chemical synthesis, functional ceramics

1. 서 론

LED (Light Emitting Diode)는 간단한 숫자, 문자, 레벨표시를 포함하여 각종 정보 안내판 또는 도로 안내판, 자동차용 램프 등으로써 다양한 분야에 폭 넓게 사용되고 있다. 풀컬러 표시의 경우 GaN계 청색 LED의 획기적인 고 휘도화로 그 용도가 크게 확대되어 다양한 분야에까지 LED 디스플레이의 급속한 용도 개발이 진행 중이며, 이에 대한 다양한 연구가 시행되고 있다.¹⁾ LED는 현재 서로 다른 조성 혹은 미량 원소의 도핑에 의한 방법으로 제조되어진 세라믹 박막을 활용하여 적색, 녹색 및 청색 등의 다양한 색상을 내고 있다. 최근에 응용의 폭이 넓어지고 있는 백색 LED는 청색발광을 하는 GaN LED에 황록색을 내는 YAG:Ce 형광체를 도포하여 제조하고 있다. YAG:Ce 형광체를 활용한 백색 LED는 완전한 백색 표현에 어려움이 있기 때문에 조명 등의 응용에 문제점을 가지고 있다. 따라서 자외선 발광의 LED와 형광체를 결합하여 백색을 포함하는 다양한 발광의 LED를 개발하고자 하는 연구가

활발하다. 가시광 영역에서 우수한 발광 특성을 내는 YAG:Ce를 제외하면 일반적으로 알려진 형광체는 380nm 이상의 장파장 자외선 하에서 낮은 발광 세기를 가진다. 따라서 장파장 자외선 LED와 형광체를 결합시켜 새로운 형태의 LED를 개발하기 위해서는 고발광의 자외선 LED 개발과 더불어 적절한 형광체의 개발이 매우 중요하다.

할로포스페이트 계열의 형광체는 자외선 영역을 이용하여 발광하는 청색 형광체 중 장파장 영역에서 가장 유력한 형광체이다. 할로포스페이트 계열 형광체는 진공영역의 자외선부터 장파장 자외선 영역까지 상당히 넓은 부분의 여기원을 이용할 수 있는 형광체이다. 또한 광범위한 영역의 여기원을 이용할 경우 발광강도가 우수하여 삼파장 램프 및 여러 조명 시설에 다양하게 응용되고 있고, 이에 대한 연구도 활발히 진행 중에 있다.^{2~9)} 할로포스페이트 계열 형광체에 대한 제조는 주로 고상법 및 습식법으로 연구되어지고 있는데, 이들 방법으로 제조되어진 형광체 입자의 경우 그 크기가 크고, 넓은 입도 분포를 가졌다.

본 연구에서는 최근에 산화물계 형광체 제조 방법으로 각

† E-mail: yckang@kriect.re.kr

광을 받고 있는 분무열분해공정을 도입하여, 할로포스페이트 계열 중 청색 발광을 하는 $Sr_{10}(PO_4)_6Cl_2:Eu^{2+}$ 형광체 분말 및 $(Sr,Mg)_{10}(PO_4)_6Cl_2:Eu^{2+}$ 형광체 분말을 제조하였다. 분무열분해공정을 이용하여 제조되어진 형광체는 그 크기가 미세하고, 구형이며 입자간 응집이 없다는 장점을 가지고 있다.¹⁰⁾ 하지만, 이렇게 하여 제조되어진 분말은 분무열분해공정의 특성상 중공성이며 다공성인 형태를 가지고 있다. 형광체 입자의 경우 형태가 치밀한 구조를 가지지 못할 경우, 발광강도에 상당한 영향을 미쳐 그 특성이 저하된다. 이를 개선하기 위해 용제의 사용¹¹⁾, 콜로이드 핵의 이용¹²⁾ 및 분무열분해공정에 사용되는 용액 제조에서 전구체를 변화하는 등 다양한 방법이 시도되었으나, $Sr_{10}(PO_4)_6Cl_2:Eu^{2+}$ 형광체의 경우 분무열분해공정으로 제조한 결과 중공성과 다공성인 입자가 제조되어 발광강도의 향상은 기대하기 어려웠다. 이에 본 연구에서는 스트론튬에 II족 원소들을 증감제로 포함하여 입자 제어 및 발광강도의 향상을 기대하였다. 바륨, 칼슘, 마그네슘 등 II족 원소들 중 분무열분해공정에서는 마그네슘이 증감제로 포함된 경우 마그네슘 특유의 소결촉진제 영향으로 인하여 분말 특성 및 발광강도가 $Sr_{10}(PO_4)_6Cl_2:Eu^{2+}$ 형광체 분말보다 향상되었다.

2. 실험 방법

$Sr_{10}(PO_4)_6Cl_2:Eu^{2+}$ 형광체 분말과 $(Sr,Mg)_{10}(PO_4)_6Cl_2:Eu^{2+}$ 를 제조하기 위하여 Fig. 1과 같이 도시한 전기로를 이용한 분무열분해공정을 적용하였다. 분무열분해공정은 크게 액적 발생부분, 열분해가 일어나는 고온의 전기로, 그리고 발생된 분말을 회수하는 포집장치로 되어있다. 본 실험에서는 실제 제조 공정과 유사한 조건에서의 특성을 알아보기 위해 액적발생을 위한 초음파 진동자를 6개 사용하였고, 45L/min의 압축공기를 운반기체로 사용하여 대량 발생된 액적이 원활하게 고온의 전기로를 흐르도록 석영관의 길이는 1200 mm, 내경은 55 mm가 되도록 하였다. 전기로의 온도는 생성된 액적의 건조와 열분해가 충분히 일어날 수 있도록 900°C로 고정하였다. 이렇게 하여 생성된 분말은 테프론 필터를 사용하여 포집하였다.

할로포스페이트 형광체를 제조하기 위하여 분무열분해공정에 이용된 용액은 $Sr(NO_3)_2$, $Mg(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$, $NH_4H_2PO_4$ 및 Eu_2O_3 를 당량비대로 증류수에 녹여 제조하였고, 염소 성분을 얻기 위하여 각각 $SrCl_2 \cdot 6H_2O$ 및 $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ 를 당량비대로 포함시켰다. 이렇게 제조된 용액의 총 농도는 1M 이었다. $(Sr,Mg)_{10}(PO_4)_6Cl_2:Eu^{2+}$ 형광체 제조에 있어서는 최적발광 특성을 나타내는 조성을 찾기 위하여 Sr과 Mg의 비를 조절하였다. 분무열분해공정으로 얻어진 스트론튬 할로포스페이트 전구체 분말들은 900~1200°C에서 3시간동안 5~25% H_2/N_2 가스로 환원분위기를 조성하여 열처리하였다.

이렇게 하여 제조되어진 $Sr_{10}(PO_4)_6Cl_2:Eu^{2+}$ 와 $(Sr,Mg)_{10}(PO_4)_6Cl_2:Eu^{2+}$ 형광체 분말들의 특성을 비교하기 위하여 다음과 같은 분석을 시행하였다. 열처리한 분말들의 결정상을 확인하기 위하여 RIGAKU사의 DMAX-33 X-선 회

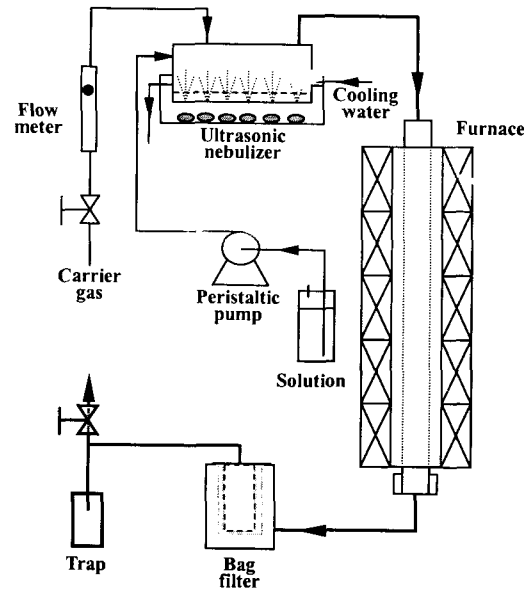


Fig. 1. Schematic diagram of ultrasonic spray pyrolysis.

절분석기를 이용하였다. 분말의 입자형상 및 입자크기를 확인하기 위하여 PHILIPS사의 XL 30S FEG 주사전자현미경 (Scanning Electron Microscopy) 을 사용하여 분말을 관찰하였다. 형광체의 발광 특성은 Flash Xenon Lamp를 이용한 Perkin-Elmer사의 제품을 이용하여 측정하였다. 장파장 자외선 영역에 대한 발광강도를 관찰하기 위하여 380 nm 이상의 장파장을 이용하여 발광강도를 측정하였다. 또한 현재 상용으로 사용되고 있는 $Sr_{10}(PO_4)_6Cl_2:Eu^{2+}$ 의 장파장 자외선 영역에 대한 발광 강도와 비교 분석하였다.

3. 결과 및 고찰

일반적인 할로포스페이트 계열의 형광체들은 진공영역의 자외선부터 장파장용 자외선까지 광범위한 영역에 걸친 부분을 여기원으로 사용하여 청색계통의 발광을 하는 형광체이다. Fig. 2에 도시한 바와 같이 분무열분해공정으로 제조되어진 $Sr_{10}(PO_4)_6Cl_2:Eu^{2+}$ 형광체도 주 메인발광 피크인 448 nm을 중심으로 여기원을 측정할 결과 단파장영역에서부터 장파장 자외선 영역까지 광범위한 부분에서 여기를 하였다. 그러나 분무열분해공정상 제조되어진 $Sr_{10}(PO_4)_6Cl_2:Eu^{2+}$ 형광체는 그 입자가 중공성 및 다공성인 특징을 가지고 있어서, 그 발광강도가 상용의 $Sr_{10}(PO_4)_6Cl_2:Eu^{2+}$ 혹은 BAM:Eu 형광체보다 상당히 낮았다. 이를 개선하기 위하여 증감제로 II족 원소들 (Ba, Ca, Mg 등)을 첨가한 결과 분무열분해공정에 의하여 제조된 $(Sr,Mg)_{10}(PO_4)_6Cl_2:Eu^{2+}$ 형광체는 Fig. 2에 도시한 바와 같이 그 발광 강도가 같은 조건하에서 제조된 $Sr_{10}(PO_4)_6Cl_2:Eu^{2+}$ 형광체보다 월등히 높은 것으로 나타났다. 또한 $Sr_{10}(PO_4)_6Cl_2:Eu^{2+}$ 형광체의 여기원은 360 nm 이상에서 계속 낮아지는데 반하여, $(Sr,Mg)_{10}(PO_4)_6Cl_2:Eu^{2+}$ 형광체는 장파장 자외선 영역인 380 nm 이상에서도 강한 여기원을 나타내었다. 일반적으로 고상법으로 제조되어진 $Sr_{10}(PO_4)_6Cl_2:Eu^{2+}$ 형광체 분말과 $(Sr,Mg)_{10}(PO_4)_6Cl_2:Eu^{2+}$ 형광체 분말은 비슷한 발광 강

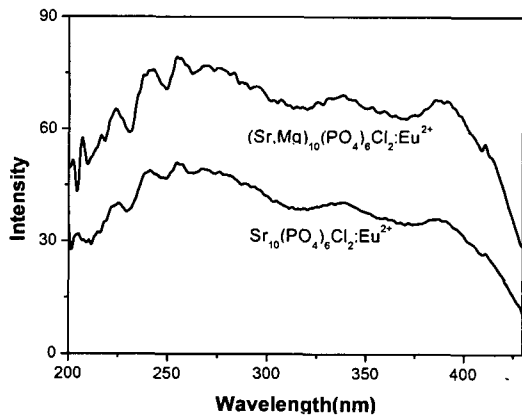
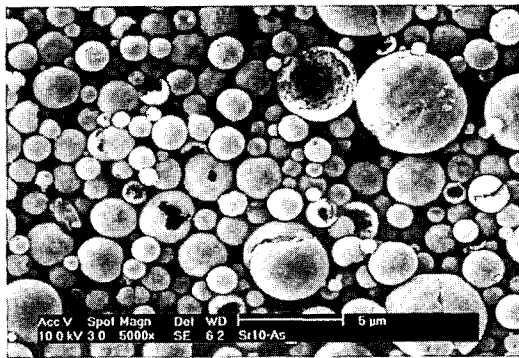
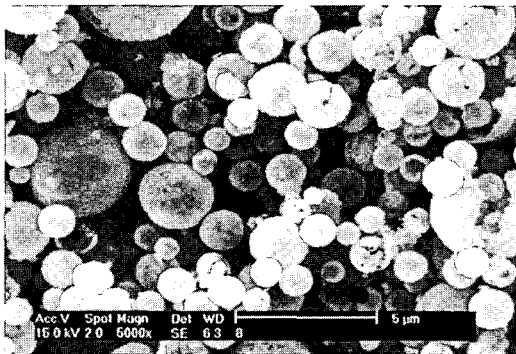


Fig. 2. Excitation spectra of $\text{Sr}_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ and $(\text{Sr},\text{Mg})_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ phosphor particles prepared by spray pyrolysis.



(a) Before heat treatment



(b) After heat treatment

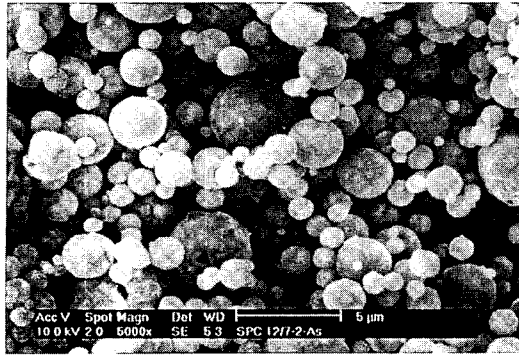
Fig. 3. SEM photographs of $\text{Sr}_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ phosphor particles. (a) before heat treatment (b) after heat treatment

도를 나타내는데 반해 분무열분해공정으로 제조하였을 경우, 이렇게 차이가 나는 이유는 제조된 형광체의 발광 특성이 입자 특성과 증감제로 들어간 마그네슘의 영향에 기인하기 때문이다.

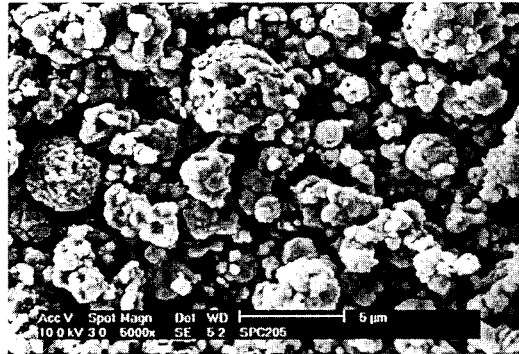
Fig. 3은 분무열분해공정으로 제조되어진 $\text{Sr}_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ 형광체의 주사전자현미경 사진이다. Fig. 3(a)에서와 같이 분무열분해공정 특유의 구형이면서 균일한 입도분포를 가지는 형광체 입자가 제조되었다. 하지만 분무열분해공정상 초음파 분무기에 의해 생성된 액적이 900℃의 고온의 전기로를 지날 때, 액적의 내부와 외부의 건조속도 차이에 의해 포집된 입자는 그림과 같이 중공성이면서 다공성인

형태를 가지게 된다. 일반적인 실험실 규모의 분무열분해공정에서 구형이면서 치밀한 구조의 입자가 제조되어지는 것과는 다른 모습을 나타내는데, 이는 초음파 진동자에 의해 제조되어진 액적이 고온의 반응기에서 체류하는 시간이 0.6초로 상당히 짧기 때문에, 액적의 건조 속도가 빨라 액적의 건조단계에서 액적 내부에 농도 구배가 발생하게 되고 액적 외부에서 먼저 용질들의 석출이 일어나기 때문이다. 이렇게 하여 제조되어진 다공성의 $\text{Sr}_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ 형광체의 경우 결정상 생성과 도핑제의 활성화를 유도하기 위하여 1000℃에서 3시간동안 5% H_2/N_2 가스로 환원분위기를 조성하여 후열처리하였다. Fig. 3(b)는 후열처리과정을 거친 $\text{Sr}_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ 형광체 입자의 주사전자현미경 사진이다. 그림에서 보는 바와 같이 후열처리 과정을 거치기 전 분말의 주사전자현미경 사진과 같이 구형이긴 하지만, 중공성이면서 다공성인 모습을 보여주는데, 이는 분무열분해공정에 의해 제조되어진 형광체 분말들의 형태가 후열처리 과정에서 입자 형성에 크게 영향을 주기 때문이다. 1000℃보다 높은 온도에서 후열처리 하는 경우, 형광체 분말들은 서로 응집되어 불규칙한 모습을 가지거나, 그보다 낮은 온도에서 후열처리 하는 경우, 결정상 생성이 제대로 되지 않아 발광 강도가 상대적으로 낮다. 따라서 분무열분해공정을 이용하여 최적 조건으로 제조된 $\text{Sr}_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ 형광체의 경우, 구형의 형상을 가지지만 중공성이면서 다공성인 입자 특성에 기인하여 상용형광체에 비해 상대적으로 발광 강도가 낮았다.

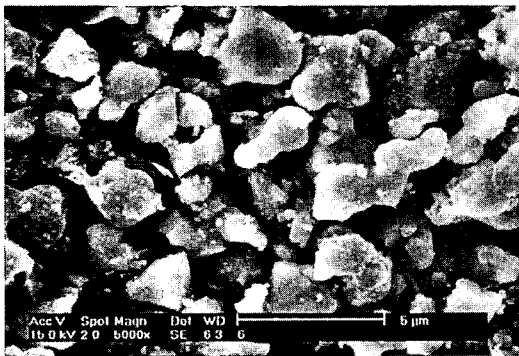
분무열분해공정으로 제조되어진 $\text{Sr}_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ 형광체의 발광특성을 개선하기 위하여 바륨, 칼슘, 마그네슘 등 II족 원소들을 증감제로 첨가한 결과 $(\text{Sr},\text{Mg})_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ 형광체의 경우 분무열분해공정에서 제조된 다른 할로포스페이트 계열보다 발광강도 및 입자특성이 우수하였다. Fig. 4(a)는 분무열분해공정으로부터 제조되고 후열처리 과정을 거치지 않은 $(\text{Sr},\text{Mg})_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ 형광체 분말의 주사전자현미경 사진이다. 구형의 형상을 가지는 $\text{Sr}_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ 형광체 분말과 같은 조건으로 제조되어진 $(\text{Sr},\text{Mg})_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ 형광체 분말들은 Sr과 Mg의 비에 무관하게 완벽한 구형의 형상을 가지고 있으나, 짧은 체류시간으로 인해 결정성이 낮았다. 하지만 결정성 증가를 위한 후열처리 과정을 거치면서 스트론튬과 마그네슘의 조성에 따라 그 형태가 달라짐을 알 수 있었다. $(\text{Sr},\text{Mg})_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ 형광체 분말도 $\text{Sr}_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ 형광체 분말의 후열처리 과정과 같이 1000℃에서 3시간동안 5% H_2/N_2 가스로 환원분위기를 조성하여 후열처리하였다. Fig. 4(b)는 스트론튬과 마그네슘의 비가 9.5대 0.5일 때의 주사전자현미경 사진이다. 그림에서 보는 바와 같이 $\text{Sr}_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ 형광체 분말이 후열처리 후에도 형태의 변화가 크게 없는 것에 반하여, $(\text{Sr},\text{Mg})_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ 형광체 분말은 마그네슘의 영향에 따라 비교적 구형이긴 하지만 나노크기의 입자들이 서로 응집된 형상을 나타내었다. 또한 마그네슘의 양이 증가함에 따라 Fig. 4(c)에서와 같이 구형의 형상이 완전히 사라지고 불규칙적인 모습을 나타



(a) Before heat treatment



(b) After heat treatment (Sr:Mg=9.5:0.5)



(c) After heat treatment (Sr:Mg=9:1)

Fig. 4. SEM photographs of $(\text{Sr,Mg})_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ phosphor particles. (a) Before heat treatment (b) After heat treatment (Sr:Mg=9.5:0.5) (c) After heat treatment (Sr:Mg=9:1)

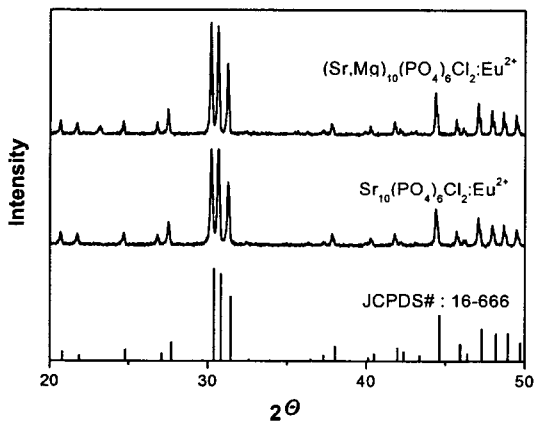


Fig. 5. XRD patterns of $\text{Sr}_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ and $(\text{Sr,Mg})_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ phosphor particles prepared by spray pyrolysis.

내지만, 비교적 미세한 마이크로 크기를 가지는 형광체 분말들이 제조되었다. 이는 마그네슘이 일반적인 고상반응에

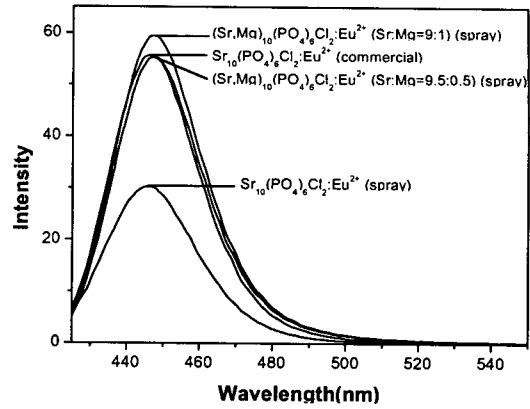


Fig. 6. Emission spectra of $\text{Sr}_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ and $(\text{Sr,Mg})_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ phosphor particles prepared by spray pyrolysis.

서 소결촉진제 혹은 용제로써 작용하여 입자간 형성에 중요한 역할을 담당하는 것과 같은 원리이다. 분무열분해공정에서 액적이 고온의 전기로에서 체류하는 시간이 상당히 짧기 때문에, 마그네슘이 포함된 효과를 볼 수 없었으나, 장시간의 후열처리 과정에서 마그네슘의 특성으로 인하여 치밀한 구조의 분말을 제조할 수 있었다. 하지만, 보통 고상반응에서 마그네슘 첨가에 따라 입자가 커지고 불규칙한 형상을 가지는 것과는 달리 입자가 마이크로 크기의 비교적 균일한 형태를 가지고 있는데, 이는 분무열분해공정에서 제조된 분말이 미세하고 균일한 형태를 가지기 때문이다. 또한 일반 고상반응보다 분무열분해공정을 이용함으로써 인하여 후열처리 전 입자가 보다 균일한 조성을 가짐으로 인하여, 낮은 후열처리 온도에서도 충분히 스트론튬 할로포스페이트에 마그네슘이 증감제로써 작용할 수 있기 때문이다.

분무열분해공정을 이용하여 합성한 $\text{Sr}_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ 형광체 분말과 $(\text{Sr,Mg})_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ 형광체 분말들을 환원분위기에서 후열처리 한 후 이들 분말의 결정상을 X-선 회절분석기를 이용하여 비교하였을 때, 두 형광체 분말은 Fig. 5와 같이 같은 유형을 보여주고 있다. 두 형광체 분말간의 결정자 크기는 Scherrer 방정식을 이용하여 미소결정 크기를 구하였다. 3개의 주 피크로 결정자 크기를 구한 결과 $\text{Sr}_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ 형광체 분말의 경우 (211) 면은 39.40 nm, (112) 면은 39.26 nm, (300) 면은 40.47 nm의 크기를 가졌다. $(\text{Sr,Mg})_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ 형광체 분말의 경우 (211) 면은 42.89 nm, (112) 면은 43.62 nm, (300) 면은 42.56 nm의 크기를 가졌다. Scherrer 방정식에 의해 계산된 미소결정 크기에서 보듯이 분무열분해공정에서 제조된 $(\text{Sr,Mg})_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ 형광체 분말은 같은 조건에서 제조된 $\text{Sr}_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ 형광체 분말에 비해 미소결정의 크기가 증가하였음을 알 수 있다. 이는 제조된 형광체 분말들의 주사전자현미경 사진에서 보듯이 치밀한 구조를 가지고 있는 형광체 분말의 미소결정 크기가 중공성인 형광체 분말 보다 큼을 알 수 있다.

분무열분해공정으로 제조되어진 $\text{Sr}_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ 형광체 분말과 $(\text{Sr,Mg})_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ 형광체 분말 및 현재 상용으로 사용되고 있는 제품에 대해 장과장 자외선을

여기원으로 이용하여 비교 분석한 발광특성을 Fig. 6에 도시하였다. 위에서 설명한 바와 같이, 분무열분해공정으로 제조되어진 $\text{Sr}_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ 형광체 분말은 입자가 중공성 및 다공성인 특징으로 인하여, 발광강도가 상용제품에 비하여 상당히 낮았다. 이에 반하여, $(\text{Sr,Mg})_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ 형광체 분말은 입자가 치밀하고, 매끈한 표면 특성을 가짐으로 인하여 장파장 자외선 영역의 여기원을 사용할 경우 상용제품과 비슷하거나 더 높은 발광 강도를 나타내었다. 스트론튬과 마그네슘의 비가 9.5:0.5일 경우 발광 강도는 상용의 약 99% 이었으며, 스트론튬과 마그네슘의 비가 9:1 일 경우 발광 강도는 상용보다 8% 증가하였다. 또한 $(\text{Sr,Mg})_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ 형광체 분말은 254nm를 여기원으로 사용하는 상용의 BAM:Eu 형광체와 비교하여 90% 이상의 발광강도를 나타내었다. 분무열분해공정으로 제조된 $(\text{Sr,Mg})_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ 형광체 분말은 같은 조건으로 제조된 $\text{Sr}_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ 형광체 분말이나 상용제품에 비하여 발광 파장이 1 nm 장파장쪽으로 이동하였는데, 이는 증감제로 들어간 마그네슘의 영향으로 주 피크가 이동하였음을 알 수 있다.

4. 결 론

분무열분해공정을 이용하여 $\text{Sr}_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ 형광체 분말 및 $(\text{Sr,Mg})_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ 형광체 분말들을 제조하였다. 장파장 자외선을 방출하는 LED 칩등에 응용하기 위하여 장파장 자외선 영역을 여기원으로 하여 제조된 형광체 분말의 발광강도를 측정하였다. $\text{Sr}_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ 형광체 분말은 구형의 형상을 가지기는 하였지만, 다공성이면서 중공성인 입자 특성으로 인하여, 그 발광강도가 상대적으로 낮았다. 하지만 분무열분해공정으로 제조된 $(\text{Sr,Mg})_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ 형광체 분말은 구형의 형상은 사라졌지만, 마그네슘이 소결촉진제로 작용하여 치밀한 구조를 가지며, 매끈한 표면 특성으로 인하여 스트론튬과 마그네슘의 비가 9.

5:0.5 일 때 발광강도가 상용으로 사용되는 $\text{Sr}_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ 와 비슷하였고, 스트론튬과 마그네슘의 비가 9:1 일 때 상용의 $\text{Sr}_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ 보다 8% 향상된 발광강도를 보였다. 따라서 분무열분해법에 의해 합성되어지는 미세크기의 $(\text{Sr,Mg})_{10}(\text{PO}_4)_6\text{Cl}_2:\text{Eu}^{2+}$ 형광체는 장파장 자외선 LED용 청색 형광체로 적용이 가능하다.

참 고 문 헌

1. P. Schlotter, J. Baur, Ch. Hielscher, M. Kunzer, H. Obloh, R. Schmidt, and J. Schneider, *Mater. Sci. Eng.*, **B59**, 390 (1999).
2. Y. Zhou, R. Shu, X. Zhang, J. Shi, and Z. Han, *Mater. Sci. Eng.*, **B68**, 48 (1999).
3. J.M. Flaherty, *J. Electrochem. Soc.*, **128**[1], 131 (1981).
4. R. Dafinova and V. Pelova, *J. Mater. Sci. Lett.*, **15**[15], 1367 (1996).
5. M. Sato, T. Tanaka, and M. Ohta, *J. Electrochem. Soc.*, **141** [7], 1851 (1994).
6. J.H. Lee, Y.C. Kang, S.B. Park, and H.D. Park, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **40**, 3222 (2001).
7. V.X. Quang, N.M. Son, P.T. Yen, T.H. Mai, B. Huttel, U. Troppenz, and R. H. Mauch, *Phys. Stat. Sol. (A)*, **156**, 209 (1996).
8. R. Dafinova, K. Papazova, and A. Bojinova, *J. Mater. Sci. Lett.*, **16**[24], 2047 (1997).
9. S.J. Dhoble, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **33**, 158 (2000).
10. Y.C. Kang, H.S. Roh, and S.B. Park, *Adv. Mater.*, **12**, 451 (2000).
11. Y.C. Kang, H.D. Park, and S.B. Park, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **39**, L1305 (2000).
12. Y.C. Kang and S.B. Park, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **38**, L1541 (1999).