

용제 및 고분자 첨가 용액으로부터 분무 열분해 공정에 의해 합성한 $Y_2O_3:Eu$ 형광체

이창희 · 정경열 · 최종길* · 강윤찬**†

한국화학연구원 화학소재부
305-600 대전시 유성구 장동 100
*연세대학교 화학과
120-749 서울시 서대문구 신촌동 134
**건국대학교 화학공학과
143-701 서울시 광진구 화양동 1
(2004년 7월 16일 접수, 2004년 10월 27일 채택)

$Y_2O_3:Eu$ Phosphor Particles Prepared by Spray Pyrolysis from Solution Containing Flux and Polymeric Precursor

Chang Hee Lee, Kyeong Youl Jung, Joong Gill Choi* and Yun Chan Kang**†

Advanced Materials Division, Korea Research Institute of Chemical Technology, 100, Jang-dong, Yuseong-gu, Daejeon 305-600, Korea

*Department of Chemistry, Yonsei University, 134, Sinchon-dong, Seodaemun-gu, Seoul 120-749, Korea

**Department of Chemical Engineering, Konkuk University, 1, Hwayang-dong, Gwangjin-gu, Seoul 143-701, Korea

(Received 16 July 2004; accepted 27 October 2004)

요 약

초음파 분무 열분해 공정에 의해 나노 크기의 $Y_2O_3:Eu$ 형광체 분말들을 합성하였다. 고분자 전구체와 용제로 사용된 리튬 탄산염이 나노 크기의 $Y_2O_3:Eu$ 형광체의 형태 및 발광 특성에 미치는 영향에 대해 조사하였다. 고분자 전구체와 용제를 동시에 사용했을 때 분무 열분해 공정에 의해 제조된 구형의 마이크로 크기의 분말들은 고온의 후열처리 과정에서 나노 크기의 분말로 전환되었다. $Y_2O_3:Eu$ 형광체의 평균 크기는 분무용액에 첨가되어지는 고분자 전구체와 용제인 리튬 탄산염의 첨가량 및 분무 열분해 공정의 반응기 온도에 많은 영향을 받았다. 고농도의 고분자 전구체를 함유한 분무용액으로부터 고온의 반응기에서 합성되고 1,000 °C 이상에서 후열처리한 나노 크기 $Y_2O_3:Eu$ 분말들은 진공자외선 하에서 좋은 발광 특성을 나타내었으며, 고상 공정에 의해 합성된 상용의 $Y_2O_3:Eu$ 형광체와 비슷한 발광 세기를 가졌다.

Abstract – Nano-sized $Y_2O_3:Eu$ phosphor particles were prepared by ultrasonic spray pyrolysis. The effect of polymeric precursor and lithium carbonate flux on the morphology and luminescence characteristics of nano-sized $Y_2O_3:Eu$ phosphor particles was investigated. When using the spray solution containing both the polymeric precursor and the flux, the $Y_2O_3:Eu$ particles with spherical shape and micron size were turned into nano-sized $Y_2O_3:Eu$ phosphor particles during the post-treatment at high temperature. The mean size of $Y_2O_3:Eu$ phosphor particles was affected by the contents of polymeric precursors and lithium carbonate flux, and preparation temperature. The as-prepared particles by spray pyrolysis at high temperature from solution containing high contents of polymeric precursors had good photoluminescence intensity under vacuum ultraviolet after post-treatment above 1,000 °C. The prepared nano-sized $Y_2O_3:Eu$ phosphor particles had comparable photoluminescence intensity under vacuum ultraviolet light with that of the commercial $Y_2O_3:Eu$ phosphor particles prepared by solid state reaction method.

Key words: Phosphor, Spray Pyrolysis, Nano Particles, Display

1. 서 론

형광체란 다양한 형태의 에너지를 흡수하여 그 자체 물질이 가지는 고유한 에너지 차이에 의해 가시광선의 에너지로 전환시키는 물

질을 일컫는다. 형광체의 응용범위는 램프, 디스플레이, 의료기기 등으로 다양하며, 각각의 응용처마다 서로 다른 여기 에너지원을 사용하기 때문에 요구되는 형광체의 특성도 서로 다르다. 디스플레이 부분에 있어서는 최근에 액정디스플레이(LCD), 플라즈마디스플레이(PDP), 유/무기 전계발광디스플레이(EL), 전계방출디스플레이(FED) 등의 다양한 제품들이 서로 경쟁하면서 각각의 디스플레이에

†To whom correspondence should be addressed.
E-mail: yckang@konkuk.ac.kr

대한 고화질화 경쟁이 심화되고 있다. 따라서 화질을 높이기 위해 각각의 디스플레이에 사용되어지는 형광체에 대한 성능 향상이 요구되어지고 있다[1-8]. 형광체 합성기술에 있어서는 디스플레이의 고화질화에 대응하기 위해 고발광 휘도 뿐만 아니라 형광체 분말의 크기 및 형태 등의 특성을 개선하기 위한 합성 기술의 개발에 초점이 맞추어져 있다. 그 예로서, 현재 시판중인 플라즈마 디스플레이에 일반적으로 사용되어지고 있는 형광체는 3에서 5 마이크로 크기를 가지며 비 구형의 형태를 가지지만, 고화질화 달성을 위해서는 형광체가 도포되는 셀의 구조가 기존 스트라이프 구조에서 더욱 복잡해지고 미세화되어지기 때문에 보다 균일한 구형 형상의 형광체 개발이 요구되어지고 있다. 형태 측면에서는 형광체 분말이 구형의 균일한 형상을 가져야 치밀한 형광막 등의 특성을 얻을 수 있어 디스플레이에 적용되었을 때 좋은 특성을 나타낸다.

형광체 분말의 형태와 더불어 크기 및 크기 분포도 형광체의 응용에 있어서 중요한 변수로 작용하고 있다. 디스플레이에 있어서 형광체 분말의 크기가 미세해지면 보다 얇고 치밀한 고효율의 형광막을 얻을 수 있어 디스플레이의 성능을 향상시키는데 기여할 수 있다. 양자효과에 의해 입자의 크기가 수 나노미터 크기를 가지면 형광체의 발광 특성이 우수해진다는 일부 논문도 발표되었지만, 일반적인 형광체 합성 공정하에서는 형광체의 크기가 마이크로에서 나노미터로 작아질수록 발광 특성이 저하된다고 많이 보고되어 있다. 따라서 실제 디스플레이에의 적용을 위해서 발광 휘도가 우수하면서 좋은 형광막 형성 특성을 가지는 수백 나노미터 크기의 미세 형광체의 개발에 대해 많은 관심을 가지고 있다. 수백 나노미터 크기의 형광체 합성에는 주로 액상 공정이 많이 연구되어지고 있다[5-10]. 일반적으로 액상 공정하에서는 합성 공정 제어에 의해 수십 나노미터에서 수백 나노미터 까지 크기 제어가 가능하기 때문에 미세한 형광체의 합성이 가능하다. 하지만, 액상 공정에 의해 얻어지는 전구체 분말들은 고 발광 휘도를 얻기 위해 고온에서 후열처리 공정을 거쳐야 한다. 이러한 고온의 후열처리 공정하에서는 미세한 전구체 분말들의 결정 성장이 일어나며 입자들 간의 응집이 많이 일어난다. 따라서 액상 공정에 의해 합성되는 대부분의 형광체 분말들은 미세한 크기를 가지지만 심한 응집된 형태를 가지기 때문에 실제 적용을 위해서는 밀링 공정을 거쳐야 한다. 비응집성의 형광체를 얻기 위한 밀링 공정하에서는 형광체의 표면 손상이 일어나기 때문에 밀링 에너지의 세기가 증가하거나 밀링 시간이 증가하게 되면 얻어지는 형광체의 발광휘도가 현저히 떨어지게 된다. 따라서 액상 공정에 의한 나노 형광체 합성에 있어서는 고온하에서의 열처리 단계에서 입자들 간의 응집을 최소화시키는 합성기술의 개발이 필요하다.

분무 열분해법에서는 액적의 크기 및 용액의 농도 조절을 통해 수십 나노미터 크기에서 수백 나노미터 크기를 가지는 초미세 형광체의 합성이 가능하다[11-14]. 즉, 액적의 크기가 수백 내지 수십 나노미터인 정전분무 장치와 같은 액적 발생 장치를 사용하거나, 분무 용액의 농도를 매우 낮춘다면 수십 나노미터 크기의 형광체 합성이 가능하다. 또한, 기상하에서 어느 정도 결정성을 얻을 수 있기 때문에 후 열처리 과정에서도 나노 형광체 입자들 간의 응집을 최소화할 수 있다. 반면에 이러한 방법에 의해서는 생산성에 문제가 있기 때문에 일반적으로는 액적 발생량이 많고 액적의 크기가 수 마이크로 크기를 가지는 초음파 분무열분해 공정이 많이 연구된다. 초음파 분무 열분해 공정에서는 0.5 mol/l 이상의 고 농도에서도 1

마이크론 크기의 형광체 합성이 가능하고, 얻어지는 형광체 분말들이 후 열처리 과정에서도 구형의 형상을 유지하고 응집이 발생하지 않는 장점을 가지고 있다. 하지만, 초음파 분무 열분해 공정에 의해 300 nm 이하의 초미세 형광체의 합성에는 어려움이 있다. 본 논문은 초음파 분무 열분해 공정에 고분자 전구체 용액과 용제를 결합한 분무 용액을 적용함으로써 수백 나노미터 크기의 고효율 $Y_2O_3:Eu$ 형광체의 대량 합성에 관한 것이다. 이전의 연구들에 의하면 고분자 전구체 용액은 분무 열분해 공정에서 형광체의 구형 형상을 향상시키는 목적으로 많이 연구되어졌다[13]. 반면에 일반적인 형광체 합성공정인 고상공정에서 반응 온도를 낮추고 발광휘도를 증대시키기 위해 사용되는 용제는 분무 열분해 공정에서 형광체의 발광 휘도를 증가시키기 위해 사용되었다[14]. 본 연구에서는 고분자 전구체와 용제를 동시에 첨가한 분무용액을 적용함으로써 수백 나노미터 크기의 $Y_2O_3:Eu$ 형광체들을 합성하였다. 고분자 전구체 및 용제의 첨가량, 분무 열분해 공정의 제조 온도, 후열처리 온도 등이 나노 크기의 $Y_2O_3:Eu$ 형광체의 발광 휘도, 형태 및 크기 변화 등에 미치는 영향에 대해 고찰하였다. 또한, 합성된 나노 크기의 $Y_2O_3:Eu$ 형광체와 고상 공정에 의해 합성된 마이크로 크기의 $Y_2O_3:Eu$ 형광체와 그 특성을 서로 비교하였다.

2. 실험

고분자 전구체 및 용제를 함유하는 분무용액으로부터 분무 열분해 공정에 의해 합성된 분말들은 낮은 결정성 및 미반응물들에 의해 발광세기가 매우 약하다. 따라서 고온의 후열처리 공정을 거쳐 형광체의 결정화도를 증가시켜 발광 세기를 증가시켰다. 이러한 고온의 후열처리 단계에서 입자들의 결정성장이 일어나고 입자들 간의 응집도 발생하기 때문에 볼밀링 공정을 거쳐 분말들의 응집성을 제어하였다. 출발물질로는 증류수에 쉽게 용해하는 이트륨 및 유로피움의 질산염들(Sigma-Aldrich, 99.9%)을 사용하였다. 얻어지는 형광체의 조성이 $Y_{1.88}O_3:Eu_{0.12}$ 이 되도록 이트륨과 유로피움의 전구체들을 증류수에 녹이고 여기에 고분자 전구체 물질로서 구연산(Kanto, 99.9%)과 에틸렌글리콜(Sigma-Aldrich, 98%)을 사용하고 용제로서 Li_2CO_3 (Kanto, 99.5%)을 첨가하여 분무 용액을 제조하였다. 구연산과 에틸렌글리콜의 농도는 각각 0.1 mol/l에서 0.3 mol/l 까지 조절하였고, 용제로 많이 사용되어 휘도 향상에 도움을 주는 Li_2CO_3 는 농도를 1 wt.%에서 7 wt.%로 변화시켜 실험하였다. 이트륨과 유로피움 금속 성분의 총 농도는 0.5 mol/l로 유지시켰다. 이렇게 제조된 용액을 1.7 MHz의 주파수를 가지는 진동자가 6개 연결된 초음파 분무장치를 통하여 액적을 발생시키고 분당 45리터의 운반기체를 불어넣어 400 °C에서 1,000 °C까지 변화시킨 반응기에서 건조와 열분해시켜 형광체 전구체 분말을 얻었다. 이렇게 하여 얻은 분말은 공기분위기의 800 °C, 900 °C, 1,000 °C, 1,050 °C 그리고 1,150 °C에서 각각 3시간씩 열처리하여 $Y_2O_3:Eu$ 형광체를 합성하였다.

형광체의 특성분석은 X선 회절분석기(X-ray diffractometer)를 이용해 입자의 결정구조와 상을 분석하였으며, 입자의 형태는 주로 주사전자현미경(SEM, scanning electron microscopy)을 이용해 분석하였다. 형광체 입자의 발광특성은 Kr 램프를 활용하여 147 nm의 진공자외선영역에서의 photoluminescence(PL)을 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

Fig. 1은 0.3 mol/l의 구연산과 에틸렌글리콜을 함유한 분무용액을 사용한 경우에 용제인 Li_2CO_3 의 첨가량에 따라 합성된 $\text{Y}_2\text{O}_3:\text{Eu}$ 형광체의 형태 특성 변화를 나타낸 것이다. 이때 분무 열분해 공정에 의해 800 °C에서 합성된 전구체 분말들을 공기 중에서 1,000 °C에서 3시간 동안 소성하여 형광체를 합성하였다. 용제를 첨가하지 않은 경우에 합성된 $\text{Y}_2\text{O}_3:\text{Eu}$ 형광체는 전구체 분말의 구형 형상을 유지하고 있으며 매우 다공성인 형태를 가지고 있다. 이러한 $\text{Y}_2\text{O}_3:\text{Eu}$ 형광체의 다공성 형태는 고분자 전구체의 영향 때문이다. 고분자 전구체를 첨가하지 않은 분무용액으로부터 합성된 $\text{Y}_2\text{O}_3:\text{Eu}$ 형광체는 속이 매우 빈 형태를 가지게 된다. 반면에 고분자 전구체를 첨가한 분무용액으로부터 합성된 $\text{Y}_2\text{O}_3:\text{Eu}$ 형광체는 Fig. 1(a)에 보이는 것과 같이 속이 찬 형태를 가지나 매우 다공성인 특성이 있다. 이처럼 다공성인 형태 특성이 있는 이유는 고분자 전구체들이 분해되면서 생기는 탄소 성분과 분말이 결정화되면서 생기는 현상 때문이다. 분무 열분해 공정에서 액적 및 분말의 반응기 내에서의 체류시간이 0.6초로 매우 짧기 때문에 유기물들의 완전한 분해가 일어나지 않는다. 따라서 분무 열분해 공정에 의해 얻어진 전구체 분말들은 많은 탄소 성분들을 함유하고 있기 때문에 흑색을 띄게 된다. 이러한 탄소 성분은 고온의 후열처리 단계에서 분해되어 제거되면서 다공성의 $\text{Y}_2\text{O}_3:\text{Eu}$ 형광체 분말들이 얻어진다. 또한, 분무 열분해 공정에 의해 합성된 분말은 낮은 결정화도를 갖기 때문에 고온에서 결정이 성장하면서 다공성인 분말들이 얻어진다. 반면에 용제의 첨가량이 증가할수록 $\text{Y}_2\text{O}_3:\text{Eu}$ 형광체의 구형 형태가 사라지고 분말의 미세화가 이루어진다. 용제의 첨가량에 무관하게 분무 열분해 공정에 의해 합성된 전구체 분말들은 모두 완벽한 구형의 형상을 하고 있다. 용제의 첨가량이 많아지는 경우에 분무 열분해 공정에 의해 얻어진 전구체 분말들이 고온에서의 후열처리 과정에서

구형 형상이 깨어지고 분말의 나노 크기화가 이루어졌다. 즉, 고분자 전구체를 사용한 경우에 발생하는 잔류 탄소 성분과 용제가 작용하여 후열처리 과정에서 균일한 미세 크기를 가지는 $\text{Y}_2\text{O}_3:\text{Eu}$ 형광체가 얻어졌다. Li_2CO_3 용제를 5 wt.% 이상 첨가했을 때 구형의 형상이 완전히 사라졌으며 미세하고 균일한 크기 분포를 가졌다. 용제의 첨가량이 8 wt.% 이상에서는 입자의 성장이 일어나기 시작하며 11 wt.% 이상에서는 입자가 과도하게 성장하였다.

Fig. 2는 고분자 전구체를 첨가하지 않고 용제만 분무용액에 첨가한 경우와 용제와 고분자 전구체로서 구연산과 에틸렌글리콜을 각각 0.1mol/l 씩 첨가한 경우에 합성된 $\text{Y}_2\text{O}_3:\text{Eu}$ 형광체들의 전자현미경 사진들이다. Li_2CO_3 용제의 첨가량은 5 wt.%였으며 분무 열분해 공정에 의해 합성된 분말들을 1,000 °C에서 후열처리 하였다. 용제의 첨가량과 고분자 전구체의 첨가량이 최적화된 분무용액으로부터 합성된 $\text{Y}_2\text{O}_3:\text{Eu}$ 형광체(Fig. 1(c))와 비교하여 용제만 첨가하여 제조한 형광체는 불규칙한 형태를 가지고 있다. 구형 형상도 완벽히 깨어지지 않았으며 결정성장도 불규칙하게 일어나 응집체를 이루는 일차 입자들의 크기 분포가 넓다. 반면에 고분자 전구체의 첨가량이 적은 경우에 합성된 분말들(Fig. 2(b))은 크기가 매우 미세한 특성이 있다.

Fig. 3은 분무용액 제조에 있어서 구연산과 에틸렌글리콜의 농도를 각각 0.3 mol/l로 동일하게 첨가하고 용제의 첨가량을 변화시키면서 합성된 $\text{Y}_2\text{O}_3:\text{Eu}$ 형광체들의 진공자외선 하에서의 상대적인 발광세기를 나타낸 것이다. 분무 열분해 공정에 의해 합성된 전구체 분말들을 1,000 °C에서 후열처리 하였다. 기준 시료로는 평균크기가 5 마이크로미터인 고상공정에 의해 합성된 상용의 $\text{Y}_2\text{O}_3:\text{Eu}$ 형광체를 사용하였으며, 상용 형광체의 발광 세기를 100으로 했을 때의 상대적인 발광세기를 Fig. 3에 나타내었다. 용제인 Li_2CO_3 의 첨가량이 증가함에 따라 발광세기는 증가했으며, 첨가량이 8 wt.%에서 최대값을 가졌다. 최대 발광 세기는 상용 형광체의 123%였다. 용제

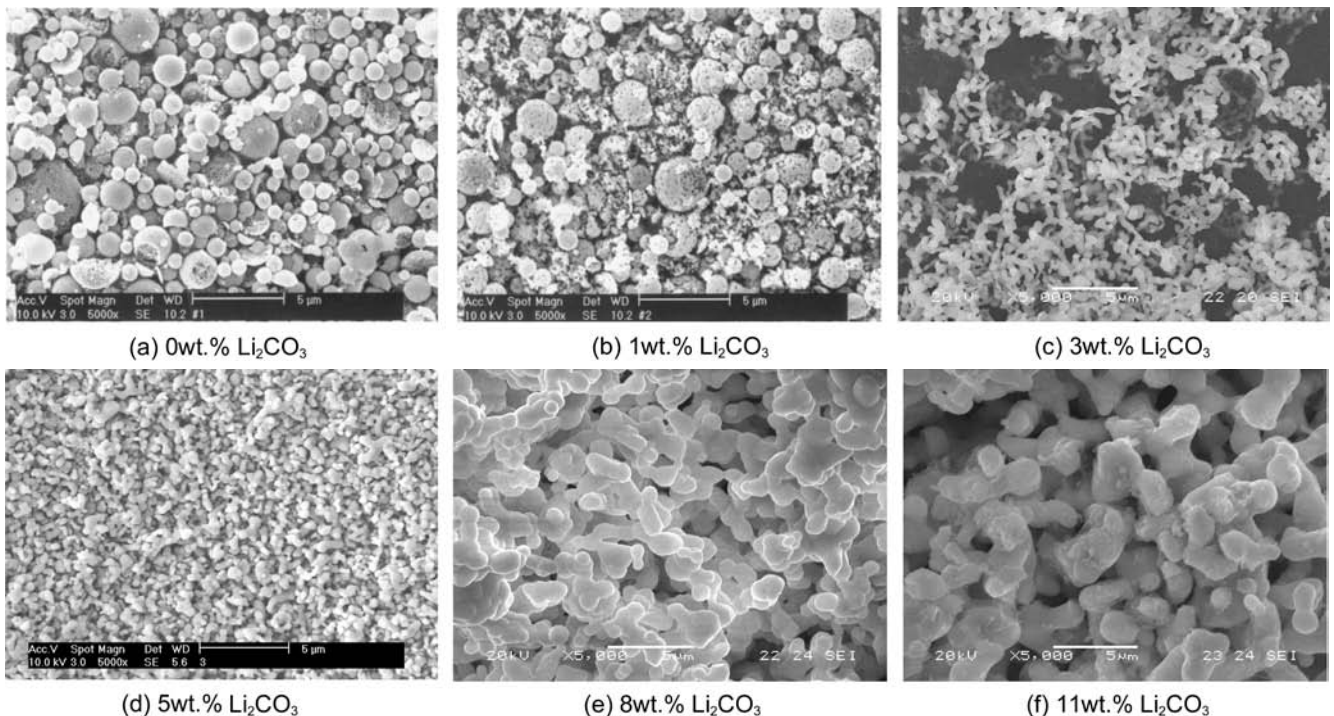
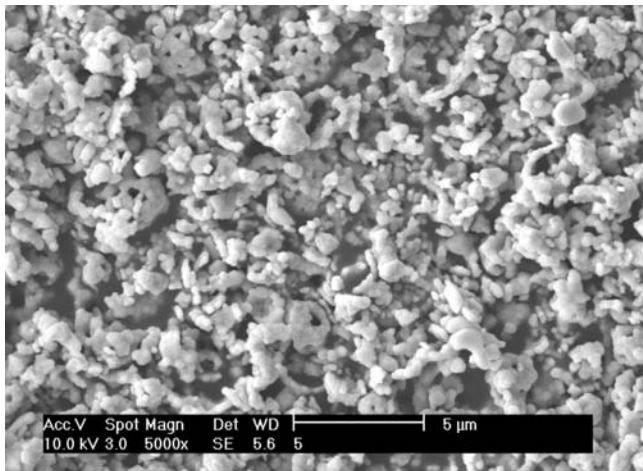
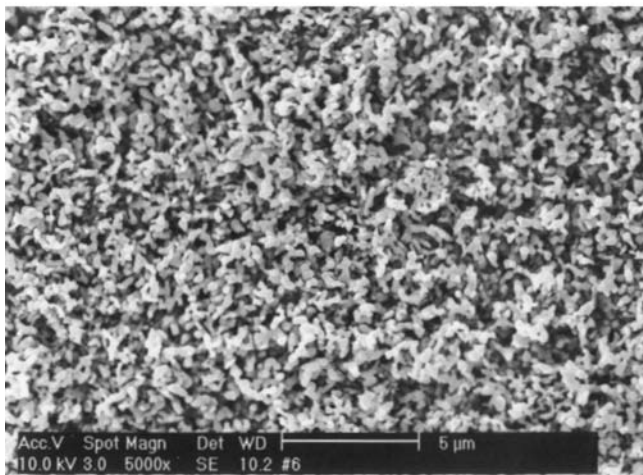


Fig. 1. SEM photographs of $\text{Y}_2\text{O}_3:\text{Eu}$ phosphor particles containing various amounts of Li_2CO_3 .



(a) 5wt.% Li_2CO_3 only



(b) 0.1MCA + 0.1MEG + flux

Fig. 2. SEM photographs of $Y_2O_3:Eu$ phosphor particles prepared from solutions containing various amounts of organic additives.

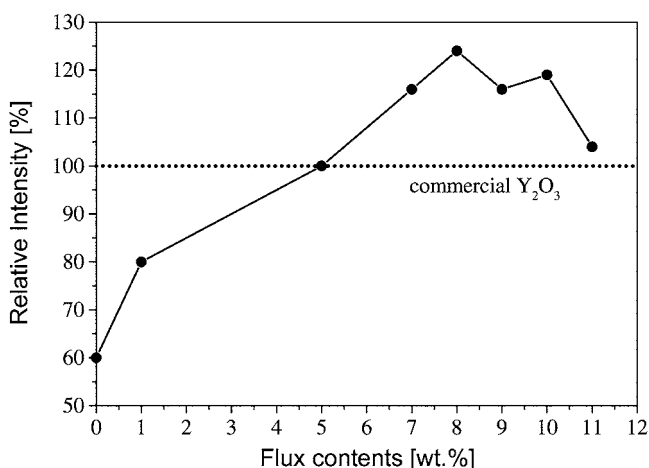


Fig. 3. Photoluminescence intensities of the particles prepared from solutions containing various Li_2CO_3 content and post-treated at $1,000^\circ C$.

의 첨가량에 따라 발광세기가 급격히 변하는 이유는 합성된 $Y_2O_3:Eu$ 형광체의 입자 크기가 변하기 때문이다. 용제의 첨가량에 따라 합성된 $Y_2O_3:Eu$ 형광체의 입자 크기는 급격하게 증가하였으며, 특히

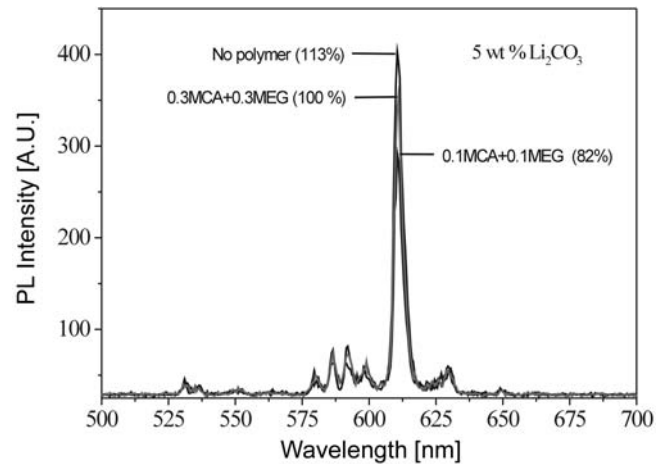


Fig. 4. Photoluminescence spectra of the particles prepared from solutions containing various amounts of organic additives.

용제의 첨가량이 5 wt.% 이상에서 급격히 증가하였다. 따라서 분무 열분해 공정에 의해 수백 나노미터 크기의 초미세 $Y_2O_3:Eu$ 형광체를 얻기 위해서는 용제의 첨가량이 5wt.% 이하이어야 한다. 후열처리 온도가 $1,000^\circ C$ 에서 용제의 첨가량이 5wt.%일 때 얻어진 형광체(Fig. 1(d))는 수백 나노미터의 크기를 가지면서 마이크로 크기의 상용 형광체와 유사한 발광 세기가 있다.

분무 열분해 공정에 의해 합성되어지는 $Y_2O_3:Eu$ 형광체의 형태 특성을 제어하기 위해 분무용액에 첨가되어지는 고분자 전구체의 농도가 형광체의 발광 특성에 미치는 영향을 Fig. 4에 나타내었다. 고분자 전구체를 첨가하지 않은 경우에 합성된 $Y_2O_3:Eu$ 형광체가 가장 높은 발광세기를 가지고 있다. 또한, 고분자 전구체로 사용되어진 구연산과 에틸렌글리콜의 농도가 각각 0.1 M인 경우에 합성된 형광체보다 0.3 mol/l로 고농도인 경우에 합성된 형광체의 발광세기가 좋았다. 분무용액의 종류에 따라 합성된 $Y_2O_3:Eu$ 형광체의 발광세기가 변화하는 이유는 각각의 경우에 합성되어지는 형광체의 크기가 서로 다르기 때문이다. 고분자 전구체를 첨가하지 않고 용제만을 함유한 분무용액으로부터 합성된 형광체는 고온의 후열처리 단계에서 용제 효과에 의해 입자 성장이 많이 일어나기 때문에 가장 높은 발광세기를 가진다. 반면에 고분자 전구체로 사용되어진 구연산과 에틸렌글리콜의 첨가량이 각각 0.1 mol/l로 낮은 경우에 합성된 형광체는 구연산과 에틸렌글리콜의 첨가량이 각각 0.3 mol/l 일 때 합성된 형광체보다 미세하기 때문에 보다 약한 발광 세기를 가진다. 구연산과 에틸렌글리콜의 농도가 각각 0.1 M로 낮은 경우에 분무 열분해 공정에 의해 합성된 전구체 분말들은 매우 속이 빈 형태를 가진다. 이러한 속이 빈 형태의 분말들을 고온에서 후열처리 과정을 거쳐 얻어지는 형광체 분말들은 매우 미세한 크기의 일차 입자들로 이루어지게 된다. 반면에 고농도의 구연산 및 에틸렌글리콜이 첨가된 분무용액으로부터 합성된 전구체 분말들은 속이 찬 형태를 가지기 때문에 고온의 열처리 후에 얻어지는 분말들의 일차 입자가 커지게 된다. 즉, 수 마이크로 크기의 상용 $Y_2O_3:Eu$ 형광체와 유사한 발광 세기를 가지면서 수백 나노미터 크기의 초미세 크기의 형광체를 합성하기 위해서는 용제인 Li_2CO_3 의 첨가량이 5 wt.%이고, 고분자 전구체인 구연산과 에틸렌글리콜의 첨가량이 모두 0.3 M일 때가 적절하였다.

Fig. 5는 분무 열분해 공정의 제조 온도가 합성된 $Y_2O_3:Eu$ 형광

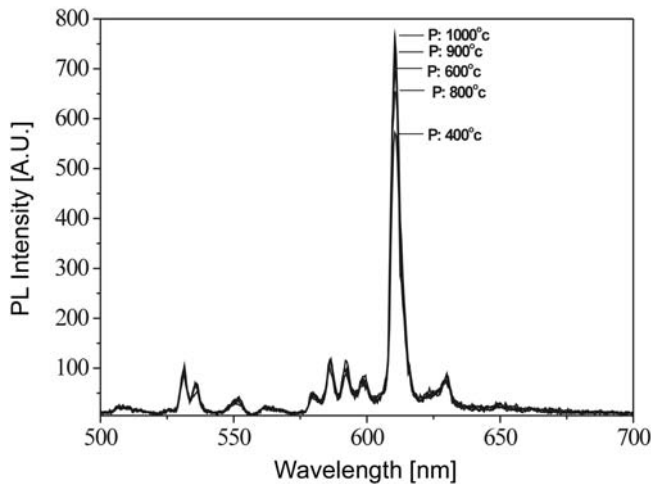


Fig. 5. Photoluminescence spectra of $Y_2O_3:Eu$ phosphor particles prepared at various temperatures and post-treated at 1,150 °C for 3 h.

체의 발광 특성에 미치는 영향을 나타낸다. 분무용액에서 구연산과 에틸렌글리콜의 농도는 각각 0.3 M이었으며, 용체의 첨가량은 5 wt.%이었다. 각각의 반응기 온도에서 분무 열분해 공정에 의해 합성된 전구체 분말들을 1,000 °C에서 3시간씩 후열처리 하여 진공차외선 하에서의 발광특성을 비교하였다. 분무 열분해 공정의 반응기 온도가 600 °C에서 1,000 °C로 증가할 때 얻어진 $Y_2O_3:Eu$ 형광체의 발광 세기도 증가하였다. $Y_2O_3:Eu$ 형광체의 발광 세기가 분무 열분해 공정의 반응기 온도가 증가함에 따라 증가하는 이유는 형광체 입자의 성장 때문이다. 저온의 분무 열분해 공정에 의해 합성된 전구체 분말들은 분말 내부에 미 반응의 탄소 성분들을 많이 함유하게 된다. 이러한 탄소 성분들이 고온의 열처리 과정에서 $Y_2O_3:Eu$ 형광체의 결정 성장을 방해하게 된다. 반면에 고온의 분무 열분해 공정에 의해 합성된 분말들은 미반응의 탄소 성분들을 비교적 적게 함유하고 있기 때문에 고온의 열처리 과정에서 결정 성장이 일어나 형광체의 발광 세기가 증가하게 된다.

4. 결 론

비 응집성의 나노 $Y_2O_3:Eu$ 형광체 합성을 위해 분무 열분해 공정에 활용되어지는 분무용액에 고분자 전구체와 용체를 동시에 적용하였다. 고분자 전구체와 용체를 모두 함유하는 분무용액으로부터 분무 열분해 공정에 의해 합성되어지는 전구체 분말들은 구형의 형상을 가지면서 마이크로 크기를 갖는다. 반면에 분무 열분해 공정의 짧은 체류시간으로 인해 얻어지는 전구체 분말들 내부에 많은 양의 탄소 성분들이 잔류하게 된다. 이러한 탄소 성분들은 고온의 후열처리 과정에서 분해되면서 다공성의 분말들을 초래하게 된다. 이러한 잔류 탄소 성분과 용체가 동시에 작용하여 분무 열분해 공정에 의해 합성된 전구체 분말들이 고온의 후열처리 과정에서 분해가 일어나 나노 분말화를 촉진하였다. 분무 열분해 공정에 의해 합성되어지는 나노 $Y_2O_3:Eu$ 형광체는 고온의 후열처리 과정에서 분말의 나노 크기화가 이루어지기 때문에 고휘도를 가지면서도 나노 분말들 간의 응집이 약하게 이루어져 있다. 이러한 나노 응집체는 불밀링 공정에 의해 쉽게 분쇄가 이루어졌으며, 표면 손상에 의한 발광 휘도 감소가 많이 일어나지 않았다. 따라서 고분자 전구체와

용체를 동시에 함유하는 분무용액으로부터 분무 열분해 공정에 의해 고휘도의 나노 형광체를 합성하는 공정은 다양한 나노 형광체의 합성에 활용될 것이다.

참고문헌

1. Yamamoto, H., "CRT Phosphors and Application to FED Phosphors," *J. SID.*, **4**(3), 165(1996).
2. Sievers, R. E., Milewski, P. D., Xu, C. Y. and Watkins, B. A., "High-Intensity Cathodoluminescence from Sub-Micron Spherical Particles Synthesized by CO_2 -Assisted Aerosolization," *Ext. Abst. 3rd Int 1 Conf. Sci. & Tech. Display Phosphors*, pp. 303, Huntington Beach, CA(1997).
3. Jiang, Y. D., Wang, Z. L., Zhang, F., Paris, H. P. and Summers, C. J., "The Effect of Particle Size on the Luminescence Properties of $Y_2O_3:Eu$," *Ext. Abst. 3rd Int 1 Conf. Sci. & Tech. Display Phosphors*, pp. 261, Huntington Beach, CA(1997).
4. Park, J. C., Moon, H. K., Kim, D. K., Byeon, S. H., Kim, B. C. and Suh, K. S., "Morphology and Cathodoluminescence of Li-doped $Gd_2O_3:Eu^{3+}$, A Red Phosphor Operating at Low Voltages," *Appl. Phys. Lett.*, **77**, 2162-2164(2000).
5. Rao, R. P., "Preparation and Characterization of Fine-Grain Yttrium-Based Phosphors by Sol-Gel Process," *J. Electrochem. Soc.*, **143**, 189-196(1996).
6. Pan, Y., Su, Q., Xu, H., Chen, T., Ge, W., Yang, C. and Wu, M., "Synthesis and Red Luminescence of Pr^{3+} -doped $CaTiO_3$ Nanophosphor from Polymer Precursor," *J. Solid State Chem.*, **174**(1), 69-73(2003).
7. Oing, S., Barthou, C., Denis, J. P., Pelle, F. and Blanzat, B., "Luminescence and Energy Transfer in Y_2O_3 CO-doped with Bi^{3+} and Eu^{3+} ," *J. Lumin.*, **28**(1), 1-11(1983).
8. Villalobos, G., Leclercq, O., Paris, H. and Summers, C. J., "Controlling the Size and Shape of Co-Precipitated $Y_2O_3:Eu$ Phosphors," *Ext. Abst. 3rd Int 1 Conf. Sci. & Tech. Display Phosphors*, pp. 253, Huntington Beach, CA(1997).
9. Bihari, B., Eilers, H. and Tissue, B. M., "Spectra and Dynamics of Monoclinic Eu_2O_3 and $Eu^{3+}:Y_2O_3$ Nanocrystals," *J. Lumin.*, **75**(1), 1-10(1997).
10. Xu, C., Wakens, B. A., Sievers, R. E., Jing, X., Trowga, P., Gibbons, C. S. and Vecht, A., "Spectra and Dynamics of Monoclinic Eu_2O_3 and $Eu^{3+}:Y_2O_3$ Nanocrystals," *Appl. Phys. Lett.*, **71**, 1643-1645(1997).
11. Roh, H. S., Kim, E. J., Kang, H. S., Kang, Y. C., Park, H. D. and Park, S. B., "Vacuum Ultraviolet Characteristics of Nano-sized $Gd_2O_3:Eu$ Phosphor Particles," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **42**(5A), 2741-2745(2003).
12. Kang, Y. C., Roh, H. S. and Park, S. B., "Preparation of $Y_2O_3:Eu$ Phosphor Particles of Filled Morphology at High Precursor Concentrations by Spray Pyrolysis," *Adv. Mat.*, **12**(6), 451-453(2000).
13. Kim, E. J., Kang, Y. C., Park, H. D. and Ryu, S. K., "UV and VUV Characteristics of $(Y,Gd)_2O_3:Eu$ Phosphor Particles Prepared by Spray Pyrolysis from Polymeric Precursors," *Mater. Res. Bull.*, **38**, 515-524(2003).
14. Kang, Y. C., Roh, H. S. and Park, S. B., "Use of LiCl Flux in the Preparation of $Y_2O_3:Eu$ Phosphor Particles by Spray Pyrolysis," *J. Eur. Ceram. Soc.*, **22**, 1661-1665(2002).