

## 산화법에 의한 YAG:Ce 형광체의 발광 특성

최형욱, 이승규, 차재혁, 박용서  
경원대학교

### Luminescence characteristics of YAG:Ce phosphor by combustion method

Hyung-Wook Choi, Seung-Kyu Lee, Jae-Hyeck Cha, Yong-Seo Park  
Kyungwon University

**Abstract** : The nano-sized Ce-doped YAG(Yttrium Aluminum Garnet,  $Y_3Al_5O_{12}$ ) phosphor powders were prepared by combustion method from a mixed aqueous solution of metal nitrates, using citric acid as a fuel. 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 at all of the  $Ce^{3+}$  concentration. However, when  $Ce^{3+}$  concentration is over 2.0mol%, XRD patterns show  $CeO_2$  peak between (321) peak and (400) peak. The pure crystalline YAG:Ce with uniform size of 30nm was obtained at 0.6mol% of the  $Ce^{3+}$  concentration. The crystalline YAG:Ce powders showed broad emission peaks in the range 475–630nm and had maximum intensity at 526nm.

**Key Words** : YAG(Yttrium Aluminum Garnet), Combustion Method, PL(Photoluminescence), Phosphor

#### 1. 서론

비 자체 발광형 표시 장치의 종류에는 BLU(Back Light Unit)를 필요로 하는 LCD 방식의 TV, Monitor, 핸드폰 단말기, 디지털 카메라 및 캠코더 등이 있으며, 이러한 비 자체 발광형 표시 장치에서 가장 중요한 요소는 백색 광원인데 이는 색상과 휘도에 있어 형광체의 발광특성이 매우 중요한 인자로 작용하기 때문에 우수한 특성을 나타내는 형광체의 개발에 관심이 집중되고 있다. 백색 광원으로는 백색 LED(Light Emitting Diode)가 주목을 받고 있다. 이유는 LED가 가지고 있는 높은 색재현성과 전력 효율 그리고 낮은 적용 전압과 긴 수명 등의 장점 때문이며, 현재 차세대 백색 광원용 LED에 대한 연구는 활발히 진행되고 있다.[1] 한편 백색 광원용 청색흡수, 황색발광의 형광체에는 희토류 원소인 세륨(Ce)이 첨가된 YAG 형광체가 사용되고 있고 고상반응법으로 제조되고 있다.[2-3] 따라서 본 연구에서는 다성분계의 경우 성분 간의 균질한 혼합 및 분포가 가능하며 저온공정으로 입자의 제조가 가능한 산화법을 이용하여 YAG:Ce 형광체 전구체를 합성하였고,  $Ce^{3+}$ 농도에 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 반응물로 citric acid를 사용하였다. 산화반응을 위한  $Y(NO_3)_3$ ,  $Al(NO_3)_3$  그리고  $Ce(NO_3)_3$  용액은 증류수를 이용하여 용해시켰으며,  $(Y_{1-x}Ce_x)_3Al_5O_{12}$ 의 몰비로 혼합하였다. 이후 혼합된 용액에 citric acid를 첨가하였고, hot plate와 magnetic bar를 이용하여 반응에 적합한 온도와 시간으로 stirring하였으며, 최종적으로 황색을 띤 전구체를 획득하였다. 획득

한 전구체는 상승온도 5°C/min로 소결온도 1000°C까지 승온한 후 2시간 동안 유지하고 furnace에서 냉각하는 조건으로 소결하여 YAG:Ce 형광체를 제작하였다.

#### 3. 결과 및 고찰

각각 다른  $Ce^{3+}$  농도로 제작된 YAG:Ce 형광체의 XRD 패턴을 그림 1에 나타내었다. 모든  $Ce^{3+}$  농도에서 JCPDS file 33-0040에서 보고된 (420) 주피크를 갖는 YAG 상을 나타내었다. 그러나 미약하기는 하나 2.0mol%에서부터  $Ce^{3+}$ 의 과다 첨가로 인한  $CeO_2$  피크가 나타나기 시작하였고, 농도가 증가할수록 그 피크의 강도가 증가하는 경향을 나타내었다. 이는 첨가된  $Ce^{3+}$ 이 모체 안으로 들어가지 못하고 그 자체가 상을 형성하였기 때문으로 사료된다.

그림 2는 YAG:Ce 형광체의  $Ce^{3+}$  농도에 따른 SEM 사진을 나타낸 것이다. XRD 결과 값에서 강도가 가장 높았던 0.6mol%에서 가장 고른 분포를 나타내는 입자 형상을 나타내었고, 그 크기는 약 30nm 정도였다. 또한  $CeO_2$  피크가 나타나기 시작한 2.0mol%에서부터는 입자의 형상이 불규칙한 분포를 나타내었고, 10mol%의 경우에는  $Ce^{3+}$ 의 과다 첨가로 인해 YAG 상에 첨가되지 못하여 그 입자의 형상은 눈에 띄게 약화되었으며, 이는 XRD 패턴의 결과와 일치한다고 할 수 있다.

그림 3은  $Ce^{3+}$  농도 변화에 따른 YAG:Ce 형광체의 방출 스펙트럼을 나타낸다. 모든  $Ce^{3+}$  농도의 경우 460nm 대역에서 최대의 흡수 밴드를 나타내었고, 0.2-0.8mol%까지는 비슷한 강도를 보였으며, 0.6mol%에서 최대의 강도를 나타내었다. 한편 2.0mol%에서부터 방출 스펙트럼의 강도는 현저하게 감소하였고, 6.0mol%, 10mol%에서는 그 강도가 매우 미약하였다. 이는 앞의 XRD 패턴과 SEM 결과 값과 일치하는 결과로서  $Ce^{3+}$ 의 과도한 첨가로 인한

이 도 소광 현상을 보여주는 결과이다.

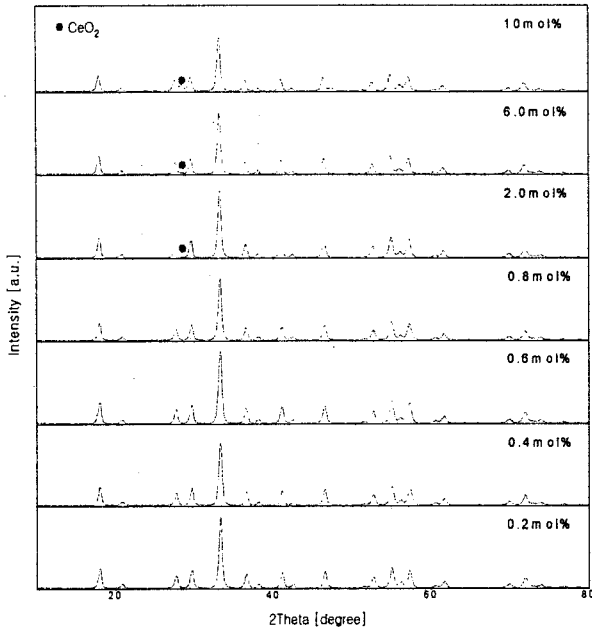


그림 1.  $Ce^{3+}$  농도에 따른 YAG:Ce 형광체의 XRD 패턴

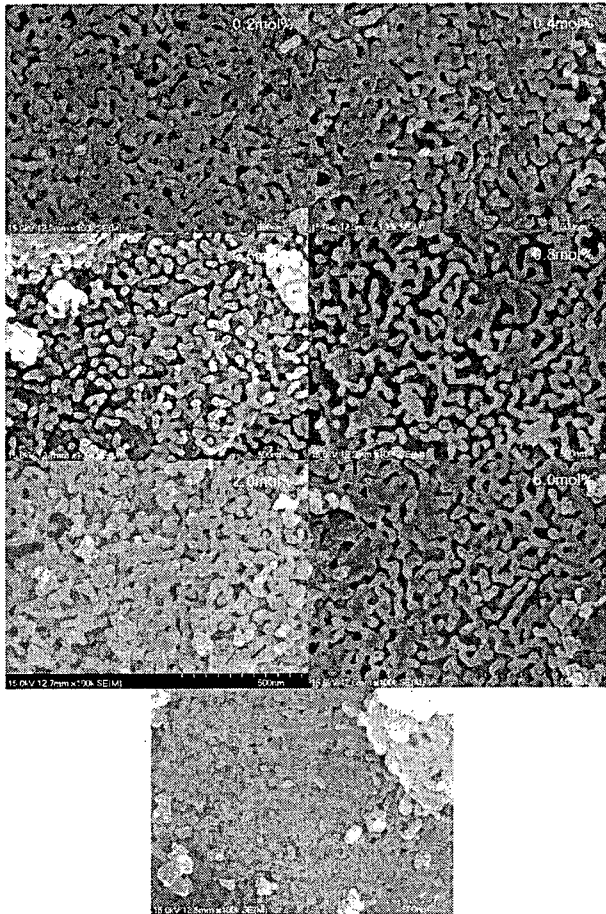


그림 2.  $Ce^{3+}$  농도에 따른 YAG:Ce 형광체의 SEM 사진

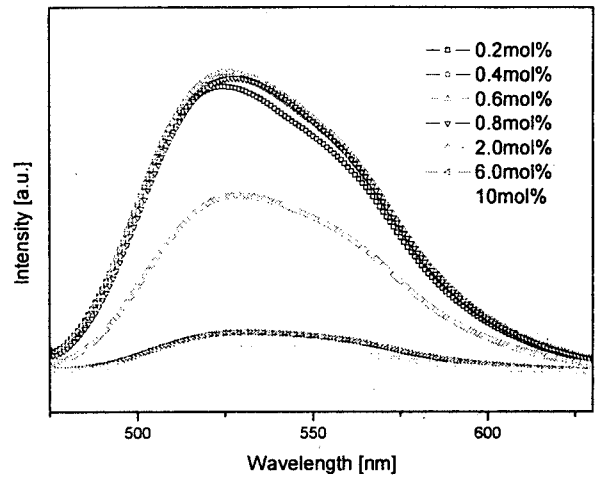


그림 3.  $Ce^{3+}$  농도에 따른 YAG:Ce 형광체의 방출 스펙트럼

#### 4. 결 론

산화법을 이용하여 YAG:Ce 형광체를 제작하였고,  $Ce^{3+}$  농도의 변화에 따른 YAG:Ce의 특성 변화에 대해 고찰하였으며 다음과 같은 결론을 도출하였다.

- 1)  $Ce^{3+}$  농도가 서로 다른 YAG:Ce 형광체는 모두 소결 온도 1000℃에서 JCPDS file 33-0040에 보고된 바와 같은 (420) 주피크를 갖는 XRD 피크를 나타내었다.
- 2) XRD 패턴과 SEM 사진을 통하여 0.6mol% 농도에서 가장 좋은 결정성을 나타냄을 알 수 있었고, 과도한 활성제의 첨가는 모체의 결정 특성 외에 그 자신의 결정성을 형성하여 불순물로서 작용함을 나타내었다.
- 3) 모든  $Ce^{3+}$  농도에서 460nm의 흡수 밴드를 나타내었고, 방출 스펙트럼은 526nm의 중심을 갖으며, 475~630nm의 매우 넓은 대역을 나타내었다. 또한 과도한 활성제의 첨가는 발광 강도에 지대한 영향을 미침을 나타내었다.

#### 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.
- [3] J. Zhou, F. Zhao, X. Wang, Z. Li, Y. Zhang, and L. Yang, "Template synthesis and luminescent properties of nano-sized YAG:Tb phosphors", Journal of Luminescence, Vol. 119-120, p. 237, 2006.