

솔-젤 및 소성공정에 의한 이트륨-유로퓸계 적색형광체 제조

윤호성[†] · 김철주 · 장희동

한국지질자원연구원 자원활용소재연구부
305-350 대전시 유성구 과학로 92
(2008년 1월 28일 접수, 2008년 2월 14일 채택)

Preparation of Y₂O₃:Eu Red Phosphor by Sol-Gel and Calcination Process

Ho-Sung Yoon[†], Chul-Joo Kim and Hee Dong Jang

Mineral & Materials Processing Division, Korea Institute of Geoscience & Mineral Resources, 92 Gwahangno, Yuseonggu, Daejeon 305-350, Korea
(Received 28 January 2008; accepted 14 February 2008)

요 약

본 연구에서는 이트륨과 유로퓸 질산수용액으로부터 솔-젤 및 연소공정에 의한 적색 형광체를 제조함에 있어, 솔-젤 반응의 고찰을 통한 반응메커니즘을 해석하고, 제조된 적색형광체의 특성을 알아보고자 하였다. 무정형 구연산염 솔-젤 반응은 반응 초기에 킬레이트화 반응과 가수분해 반응이 완료되었으며, 가수분해의 진행에 따라 축합중합반응은 유기산 형성 축합중합 보다는 물 형성 축합중합반응이 더 우세하였다. 솔-젤 반응의 진행을 위해서는 이트륨(유로퓸 포함)과 젤화 작용제인 구연산 물 비는 1 : 2 이상이 필요하였다. 솔-젤과 건조과정을 거쳐 얻은 젤 분말의 열분석 결과 형광체를 얻기 위한 소성온도는 700 °C 이상이 되어야 하며, 젤 분말의 소성 시 소성온도가 증가함에 따라 생성되는 형광체의 결정도가 향상되었으며, 결정립 크기가 증가하였다. 제조된 형광체의 발광특성 분석 결과, 출발용액 내 금속 이온(이트륨 및 유로퓸)의 농도, 그리고 소성온도가 증가할수록 발광세기가 증가하였다.

Abstract – In this study sol-gel and combustion process was surveyed for the preparation of the red Y₂O₃: Eu phosphor, and the properties of phosphor was considered. Chelation and hydrolysis in amorphous citrate sol-gel process were completed in initial reaction stage, and water-forming condensation was superior to organic acid-forming condensation. The mole ratio of citric acid to metal ion had to be above to for the progress of sol-gel process. The dried gel powders are mostly amorphous, and crystallize completely at 700 °C, and the crystallinity increases with increasing calcining temperature. The luminescence property of the phosphor was analyzed by measuring the emission spectra. The luminescence intensity increases when the calcination temperature and concentration of metal ions in solution increase.

Key words: Sol-Gel Process, Red Phosphor, Yttrium, Europium, Citric Acid

1. 서 론

최근 전자산업, 정보통신산업이 발전함에 따라 희토류 원료소재의 응용이 다양화 되고 있으며, 특히 LCD, PDP 등 디스플레이 산업의 발달은 고기능성 형광체의 개발을 요구하고 있다. 형광체는 IT, 전자산업(CRT, LCD, PDP, EL, LED, VFD, 형광램프)에 많이 이용되고 있으며 표시장치, 광고, 조명, 농업, 의료분야로의 활용이 확대되고 있다[1]. 신소재 제조에 대한 신기술 개발을 통해 기존의 발광제품에 비해 가볍고, 부피가 작으며, 에너지 소모가 적고 색상이 다양하여, 가공성이 좋은 우수한 성능의 형광체 개발이 경쟁적으로 이루어지고 있다[2].

현재 디스플레이의 고화질화에 대응하기 위해 고발광 휘도뿐만 아니라 형광체 분말의 크기 및 형태 등의 특성을 개선하기 위한 합성기술의 개발에 초점이 맞추어져 있다. 시판중인 플라즈마 디스플레이에 일반적으로 사용되어지고 있는 형광체는 3~5 마이크로 크기를 가지며 비구형의 형태를 가지고 있지만, 고화질화 달성을 위해서는 형광체가 도포되는 셀의 구조가 기존 스트라이프 구조에서 더욱 복잡해지고 미세화 되어지기 때문에 보다 미세하고 균일한 크기를 갖는 구형 형광체 개발이 요구되어지고 있다[2]. 형태 측면에서는 형광체 분말이 구형의 균일한 형상을 가져야 치밀한 형광막을 얻을 수 있기 때문에 디스플레이에 적용되어졌을 때 좋은 특성을 나타낸다.

솔-젤 공정은 미세 입자, 특히 형광물질 합성에 있어서 전통적인 고상 합성법을 능가하는 많은 장점을 제공하는데, 출발물질을 용액 내에서 분자 수준으로 혼합하기 때문에 아주 높은 균질성을 제

[†]To whom correspondence should be addressed.

E-mail: hsyoon@kigam.re.kr

[‡]이 논문은 서강대학교 최정송 교수님의 정년을 기념하여 투고되었습니다.

공하며[3], 또한 적절하게 건조된 젤 내 기공은 아주 극미세하기 때문에 제조된 입자들의 표면적은 매우 높으며, 형광체의 결정화 온도를 낮출 수 있는 장점이 있다. 술-젤 공정은 출발물질의 반복적 가수분해와 축합중합반응을 통하여 저온의 용액 내에서 미세고체 입자의 콜로이드 현탁액 상태인 술을 형성시키며, 연속적인 축합중합반응을 거쳐 젤을 형성시키는 공정이므로 저온공정의 특성에 기인하여 고순도의 산화물, 산화물 제조에 따른 낮은 소성온도 그리고 각 성분의 균일한 분포 등 많은 장점을 가지고 있다.

그러므로 본 연구에서는 이트륨과 유로퓸 질산수용액으로부터 술-젤 및 연소공정에 의한 적색 형광체를 제조함에 있어, 술-젤 반응의 고찰을 통한 반응메카니즘을 해석하고, 제조된 적색형광체의 특성을 알아보고자 하였다.

2. 실험

2-1. 시약 및 방법

본 연구에서 사용한 시료는 산화이트륨(99.99%)과 산화유로퓸(99.99%) 그리고 젤화 보조제(gelation agent)로서 시약급의 구연산(citric acid)을 사용하였다. 먼저 질산이트륨 및 질산유로퓸 수용액을 제조하기 위하여 적정량의 산화이트륨과 산화유로퓸을 질산에 용해시킨 후, 물을 첨가하여 적정 농도의 이트륨-유로퓸 질산수용액을 제조하였다. 이트륨-유로퓸 함유 질산수용액에 적정량의 구연산을 첨가하여 75~95 °C로 교반하면서 가열을 진행시켰다. 4~7 시간 정도의 교반 가열 후, 노란색의 젤 용액을 얻을 수 있다. 본 연구에서 적용한 무정형 구연산염 술-젤 공정은 반응 초기 반응물과 구연산의 킬레이트 반응에 의하여 구연산염을 형성한 후, 연속하여 가수분해와 축합중합을 거쳐 $A_2Y_2O_{A_2}$ 형태로 술이 형성된다. 이 때 일정 온도로 반응용액을 가열함에 따라 물의 증발에 의하여 젤화가 일어난다. 반응시간에 따른 반응물의 점도는 토크(torque) 센서가 장착된 회전 모터를 이용하여 측정하였다. 노란색의 젤 용액이 형성 후, 젤 내에 용매를 완전 증발시키기 위하여 130~150 °C에서 1.5시간 건조 가열시켰다. 용매가 완전히 증발한 후, 노란색의 분말을 얻을 수 있었으며, 이 분말을 700~1,200 °C에서 소성하여 형광체 분말을 얻을 수 있었다.

본 연구에서는 출발물질의 농도, 이트륨 : 유로퓸 몰비, 젤화작용제인 구연산 첨가량, 젤 분말의 소성온도를 실험변수로 하여 XRD 그리고 TG-DT 등의 분석을 통하여 형광체 제조에 미치는 영향을 고찰하였으며, 실험변수가 제조된 형광체의 형광특성에 미치는 영향을 알아보았다.

2-2. 형광 분말의 발광특성 분석

형광체의 형광특성 평가에 사용한 시스템은 기본적으로 여기광원 및 단색화 장치로 구성된 광원부와 분광기의 핵심인 본체와 유연한 광파이버 번들로 되어 있는 광 감지부로 구성되어 있다. 광원부는 태양광과 유사한 백색광을 방출하는 150W Xe lamp가 장착되어 있고, 램프로부터 나온 빛은 지름 40 mm의 zoom 렌즈로 excitation monochromator의 입사 슬릿에 초점을 맞추고 파장별로 맞추어 사용할 수 있도록 되어 있다. 광원 쪽에 사용한 단색화 장치는 1200 grooves/mm grating을 사용하여 파장범위 200~1,100 nm 까지 사용할 수 있다. 광 감지부의 광 검지센서는 100×128의 CCD Area Sensor와 1024 Line Sensor의 두 종류를 선택적으로 이용하

고 있어 극히 미약한 광으로부터 광 강도가 큰 시료까지 측정이 가능하며, 센서의 온도가 전원을 켜는 순간부터 -10 °C로 일정하게 냉각되어 주위 환경변화에 따른 데이터의 변화가 거의 없는 고안정 센서를 이용하고 있다. 신호변환부는 16 bit A/D converter를 사용하고 있어 광신호 레벨은 65000 counts까지 변환이 가능하며, 데이터 처리부는 자체 소프트웨어에 의해 처리한다.

시료의 여기 및 발광 스펙트럼의 측정은 위의 장치를 이용하였으며 여기 스펙트럼의 측정은 200 nm에서 400 nm까지 주사하여 얻었고, 이때 발광 모니터 파장은 613 nm에서 측정하였다. 한편 발광스펙트럼은 254 nm에서 여기시켰으며, 이때의 발광 파장은 380 nm에서 780 nm를 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

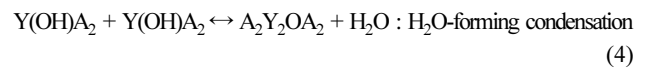
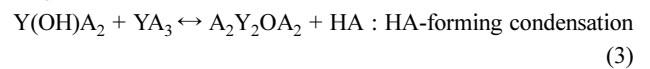
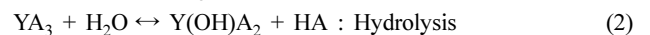
3-1. 술-젤 반응 메카니즘 고찰

본 연구에서 적용한 술-젤 공정은 무정형 구연산(citric acid)을 이용한 Pechini 공정으로서, 구연산은 일반적으로 금속 양이온들을 킬레이트(chelate)시키는 작용제로서 사용된다[4].

젤화(gelation)는 술 상태의 단분자가 반응을 거쳐 강한 또는 약한 젤 상태로 변함에 따라 유변학적 성질이 급격히 변하는 현상을 나타낸다. 일반적으로 술의 형성과 술-젤 변형은 반응시스템의 유변학적 특성의 큰 변화에 의하여 수행된다. 점도의 변화는 물리적으로 서로 다른 두 공정에 기인한다. 반응 초기에 점도의 증가는 핵생성과 술 입자들의 성장에 기인하며, 반응 중반에는 술 입자들의 응집에 의한 응집체 구성 그리고 반응 후반에는 젤 망상구조가 반응시스템의 유변학적 거동에 영향을 미친다[3].

본 술-젤 반응 메카니즘 고찰에서는, 이트륨 성분이 대부분이며, 이트륨 및 유로퓸 모두 3가 양이온이기 때문에 반응메카니즘 양상이 같으며, 생성되는 젤의 조성을 균질하다고 가정하여, 용액 내 존재하는 모든 금속이온은 이트륨이라 가정하였다.

본 공정에서는 다음과 같은 반응들에 의하여 젤화가 진행된다[5]:



여기서 HA는 유기산을 의미한다.

따라서 젤화는 술 상태의 단분자가 반응을 거쳐 젤 상태로 변함에 따라 유변학적 성질이 급격히 변하는 현상을 나타내며, 유동성이 있는 젤화 초기에는 많은 시간이 소요되고 젤 포인트(gel point) 근처에서 급격한 유변학적 변화가 일어난다. 이러한 젤 포인트에 도달하는 시간을 젤화 시간(t_{gel} , gelation time)이라 하는데, 지금까지 연구된 t_{gel} 은 초기 모노머의 농도, 초기 가수분해 몰 비 그리고 온도의 함수로 표현된다고 알려져 있다[6]. 그러므로 반응시간에 따른 반응물의 점도 변화는 교반 모터의 torque를 측정함으로써 젤화 시간(t_{gel}) 측정이 가능하였다.

Fig. 1은 이트륨(유로퓸 포함) 이온 1 mole에 대하여 구연산 첨가량을 1~3 mole로 변화시키면서 반응시간에 대한 용액의 점도변화를 나타내고 있다. 이 결과에 의하면 출발용액 내 이트륨 이온

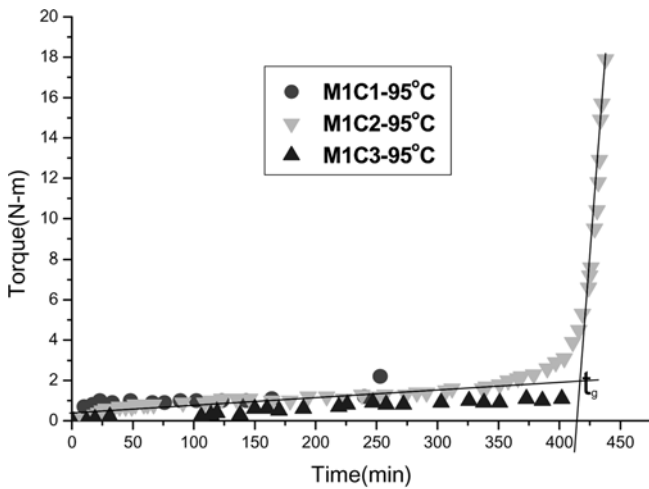


Fig. 1. Time dependence of viscosity for the gel prepared with citric acid.

1 mole에 대하여 구연산 첨가량이 2 mole인 조건에서 gel이 형성되었다. 1 mole에서는 반응시간 250 분 후에 흰색의 입자(질산이트륨 결정)가 형성되었으며, 3 mole에서는 400분 이상의 반응시간에서 용액 내 점도는 서서히 증가하나 젤이 형성되지 않았다.

킬레이트 반응이 진행되기 위해서는 이트륨 이온 1 몰에 대하여 구연산 3 몰이 필요한데, M1C3(metal : citric acid mole ratio 1:3)의 경우에는 주어진 반응시간 내에 젤화가 일어나지 않았으며, 이러한 이유는 Le Chatelier 원리에 의하여 용액 내 구연산 양의 증가로 킬레이트 반응이 더욱 잘 진행되나, 반응식 (2)와 (3)의 역반응에 따라 구연산이 형성되는 가수분해와 구연산 형성 축합중합 반응의 진행을 억제하게 된다. 그러므로 가수분해 반응의 억제는 축합중합 반응의 진행을 억제하여 젤화가 늦어지는 것이라 사료된다.

M1C2(metal: citric acid mole ratio 1:2)의 경우에는 반응시간에

따라 용액의 점도는 300분까지 서서히 증가하다, 400분 이상에서는 급격히 증가하며, 이러한 결과로부터 본 연구조건에서의 t_{gel} 은 415분인 것을 알 수 있었다. 그리고 초기 구연산의 첨가량이 2 몰로서 화학양론적으로 킬레이트 반응에 필요한 3 몰 보다 적은 양인데도 불구하고 최종 젤을 얻을 수 있었으며, 따라서 가수분해 반응으로부터 생성되는 구연산이 킬레이트 반응에 참여함으로써 반응초기 부족한 구연산 양을 충당되며, 이러한 결과로부터 킬레이트와 가수분해 반응이 동시에 일어나는 것으로 사료된다.

M1C1(metal : citric acid mole ratio 1:1)의 조건에서는 반응시간 250분까지 용액의 점도변화가 크지 않으며, 이후에는 흰색의 분말이 형성되었다. Fig. 2는 흰색 분말의 XRD 양상을 나타내고 있는데, 이 분말은 질산이트륨염[Y(NO₃)₃·5H₂O, YO(NO₃)] 결정인 것을 알 수 있으며, 따라서 M1C2와는 달리 M1C1의 조건에서는 킬레이트에 필요한 구연산의 양이 가수분해에 의하여 형성되는 구연산의 양으로도 부족하고, 젤화가 일어나기 전에 용매의 증발로 질산이트륨염 결정이 생성되는 것을 알 수 있었다.

이러한 결과로부터 위의 킬레이트, 가수분해 그리고 축합중합 반응에 대하여 다음과 같은 결론을 내릴 수 있었다. 일반적으로 솔-젤 공정은 젤화가 일어나는 산성조건에서 가수분해가 축합중합 반응보다 매우 빠르게 진행되므로 축합중합 반응이 반응속도결정단계이다[3]. 또한 위의 실험결과로부터 킬레이트 반응은 가수분해 반응과 동시에 진행되며, 따라서 M1C3 조건과 같이 용액 내 구연산의 함량 증가에 따른 젤화의 억제는 구연산 형성 축합중합의 역반응 보다는 가수분해 역반응에 더욱 큰 영향을 받는 것으로 사료된다.

이러한 결과로부터 본 연구에서 적용하고자 하는 솔-젤 공정은 반응 초기에 킬레이트와 가수분해 반응이 완료된다고 사료되며, 또한 가수분해 반응의 진행에 따라 축합중합은 구연산 형성 축합중합 보다는 물 형성 축합중합 반응이 더 우세하게 일어남을 알 수 있다.

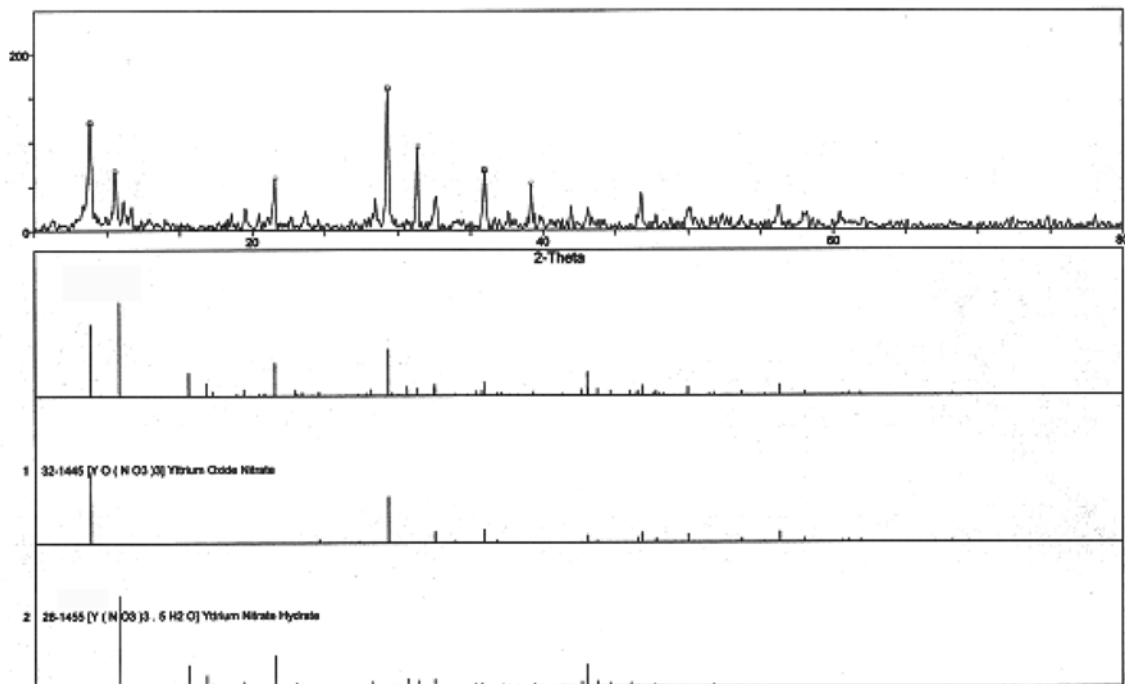


Fig. 2. XRD patterns of white powder with M:C=1:1.

3-2. 젤 분말의 열적거동 및 소성온도에 따른 XRD 고찰

Fig. 3은 이트륨과 유로프 금속이온농도가 1 몰//, 이트륨 : 유로프 몰비=0.95 : 0.05, 구연산 첨가량 2 몰로 하여 85 °C로 솔-젤 반응을 거쳐 제조된 젤을 150 °C로 1.5 시간 건조 가열시켜 얻은 젤 분말의 열분석 거동을 나타내고 있다. DTA 결과에 의하면, 300~350 °C에서 첫 번째 발열피크가 나타나는데 이러한 원인은 젤 분말 내에 수산기가 방출되는데 기인하며, 따라서 젤화 후에는 축합중합 반응의 완전 진행에 따라 수산기가 젤 분말에 존재하지 않아야 되는데, 이러한 결과로부터 젤 분말 내부 또는 표면에 수산기가 존재하는 것을 알 수 있다. 350~500 °C 부근에서의 두 번째 발열피크가 나타나는데, 이것은 유기물의 분해에 기인한다. 즉 앞에서 언급한 축합중합반응 후 반응물은 A₂Y₂O₄ 형태의 구조를 가지고 있는데, citrate(A₂)가 이 온도범위에서 분해되는 것을 알 수 있으며, 이것은 Fig. 4를 통하여 확인할 수 있다[7]. Fig. 4는 무수의 구연산의 열분해 거동을 나타내고 있는데, 160~300 °C에서 몇 단계로 분해되며, 순수한 citric acid의 경우에 505 °C에서 시작되는 발열 피크는 남은 구연산 또는 이것의 파생물 연소를 나타낸다.

세 번째 발열피크는 500~600 °C 범위에서 나타나는데, 이러한 원인은 이트륨화합물이 산화물로 변화되어 결정화되기 시작하기 때문이다. 따라서 이러한 결과로부터 젤 분말의 소성은 600 °C 이상에서 수행되어야 하는 것을 알 수 있다.

Fig. 5는 젤 분말과 소성온도에 따른 형광체의 XRD 분석결과를 나타내고 있는데, 젤 분말은 무정형의 구조를 가지고 있으며, 소성온도가 증가할수록 결정구조가 증가하는 것을 알 수 있다. Fig. 6

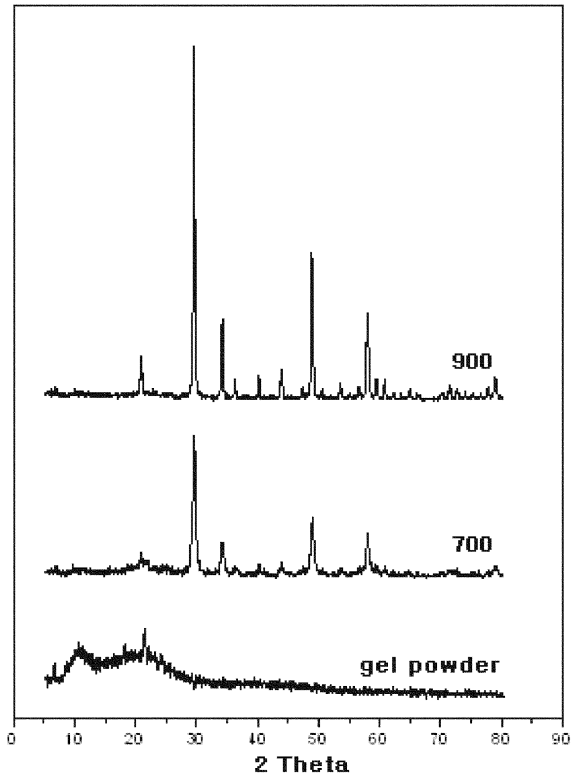


Fig. 5. XRD patterns of gel powder and phosphor calcined at 700 °C and 900 °C.

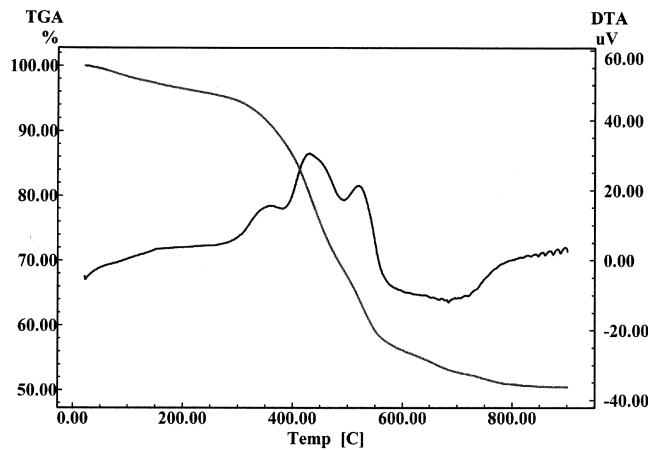


Fig. 3. TG-DTA curves of gel powder.

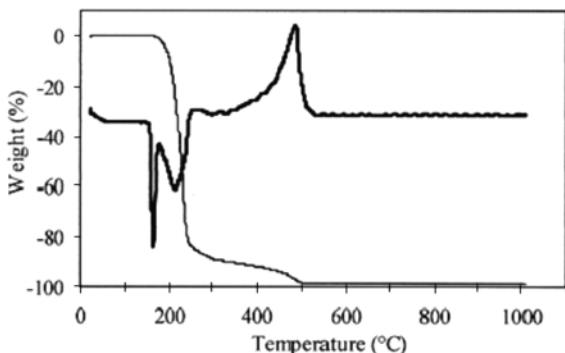


Fig. 4. TG-DTA curves for pure citric acid at 5 °C/min in air[7].

은 900 °C에서 소성된 형광체 분말의 XRD 분석결과를 나타내고 있는데, 주 물질이 이트륨으로서, 산화이트륨의 결정구조를 갖고 있음을 알 수 있다.

결정성 시료에 단색 X선을 조사시키면 그 물질의 결정격자면 간격 d와 X선의 일정한 파장 λ에 대해서 Bragg식 $n\lambda=2d \sin\theta$ ($n=1,2,3 \dots$)를 만족시키는 θ각에서만 회절이 일어난다. 이 식에서 $d=n\lambda/2\sin\theta$ 이므로 파장과 회절각만 알면 결정격자면의 간격을 알아낼 수 있다. 또한 Scherrer식 $D=0.9\lambda/B \cos\theta$ 에 의해 반측폭 B(FWHM : Full Width of Half Maximum, 회절곡선 최고강도 1/2지점의 2θ 폭)를 측정하여 결정의 크기를 계산할 수 있다. Y₂O₃:Eu 적색형광미분체의 소성온도 상승에 따른 결정립의 크기 변화를 X선 회절 분석을 통하여 측정하였다. Y 0.95 M, Eu 0.05 M, 구연산 2 M의 농도로 제조한 gel powder를 800 °C~1,200 °C로 온도를 변화시키면서 소성하였을 때의 X선 회절분석 결과를 Fig. 7에 나타내었다. Fig. 7에서 보듯이 800 °C에서 1,200 °C로 소성온도가 증가함에 따라 회절곡선의 폭이 좁아지고 최고강도(intensity)가 증가하는 것을 확인할 수 있다. 최고강도를 나타내는 2θ 29°에서의 회절곡선 반측폭 B(FWHM)을 측정하여 Scherrer식 $D=0.9\lambda/B\cos\theta$ 에 의해 결정립의 크기 D를 계산하였다. 이 식에서 λ는 CuKα radiation에 대한 X선 파장으로 1.541 Å이고, θ는 회절각이며 B는 2θ에서의 반측폭 B(FWHM)이다. 계산 결과 800 °C에서 소성한 Y₂O₃:Eu 적색형광미분체 결정립의 크기는 3.6179 Å, 900 °C 3.8095 Å, 1,000 °C 4.9920 Å, 1,200 °C 5.9195 Å으로 소성온도가 상승할수록 결정립의 크기가 증가한다. 이로부터 비정질의 gel powder를 열처리하여 결정질의 Y₂O₃:Eu 형광체를 제조할 때 소성온도가 증가할수록 결정의 크기가 커진 결정립이 생성됨을 알 수 있다.

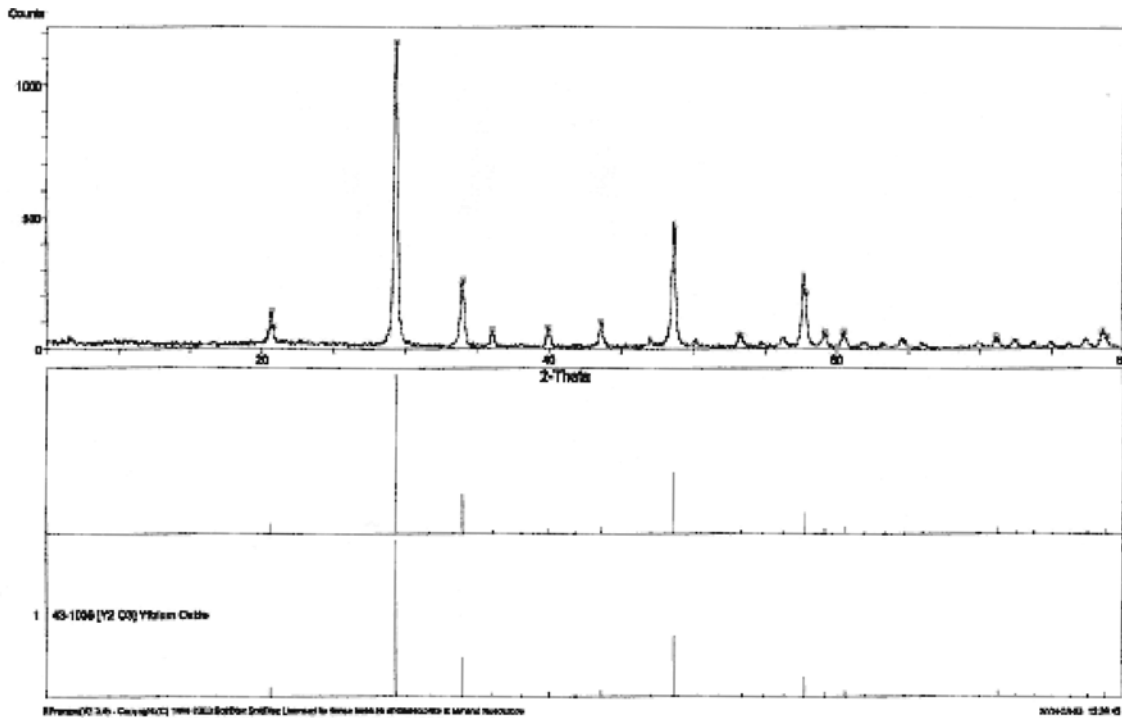


Fig. 6. XRD patterns of phosphor calcined at 900 °C.

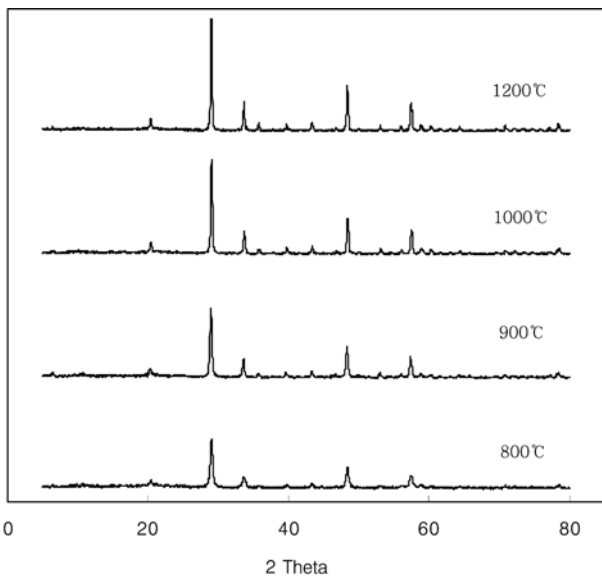


Fig. 7. XRD patterns of $Y_2O_3:Eu$ red phosphor calcined at 800-1,200 °C.

3-3. 제조조건에 따른 $Y_2O_3:Eu$ 형광체의 발광특성

모체의 구조가 $Y_2O_3:Eu^{3+}$ 형광체의 여기스펙트럼과 발광 스펙트럼을 Fig. 8에 나타내었다. Fig. 8의 여기스펙트럼을 보면, $Y_2O_3:Eu$ 는 그림과 같이 260 nm부근에 최대 흡수피크를 갖는 강한 흡수대를 갖고 있다. 발광스펙트럼을 보면, 613 nm에 최대 발광피크를 갖고 있으며, 이는 ${}^5D^0-{}^7F^2$ 전이에 근거한 좁은 발광피크이므로 전형적인 적색 형광체의 발광특성을 보이고 있다.

금속이온(이트륨 0.95 : 유로퓸 0.05) : 구연산 몰비 0.5에서 출발용액 내 금속이온의 농도를 0.75, 1.0, 1.25 mol/l로 변화시키면서 제조된 젤 분말을 700 °C와 900 °C에서 각각 소성하여 제조된

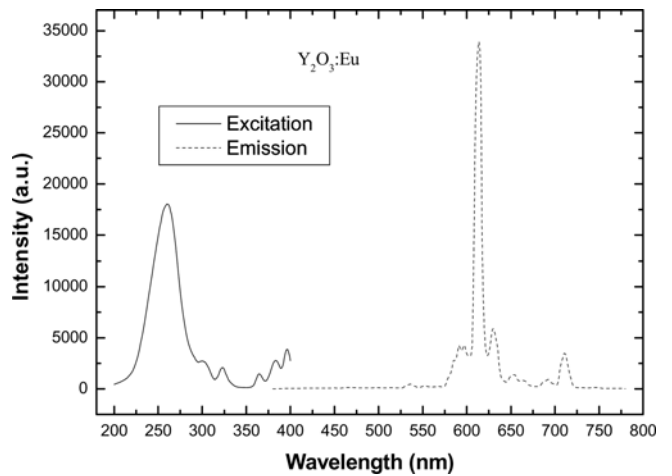


Fig. 8. Emission and excitation spectra of $Y_2O_3:Eu^{3+}$.

형광체의 발광특성을 알아보았으며, Fig. 9는 소성온도와 금속이온의 농도변화에 따라 613 nm 파장에서의 최대 발광세기 변화를 나타내고 있다. 이 결과에 의하면, 소성온도가 증가할수록 발광세기가 증가하며 이것은 앞에서 언급한 바와 같이 소성온도 증가에 따라 결정립 크기 증가에 따른 결과로 사료된다. 소성온도 900 °C에서는 금속이온 농도변화에 따라 발광세기 변화가 크지 않으나, 소성온도가 낮을수록 금속이온 농도 변화에 따른 발광세기가 큰 영향을 받는다. 금속이온 : 구연산 몰비 0.5에서 출발용액 내 금속이온의 농도를 1.0 mol/l로 하여 유로퓸의 함량을 변화시키면서 제조된 젤 분말을 1,200 °C에서 소성하여 제조된 형광체의 발광특성을 알아보았다. Fig. 10은 유로퓸 함량 변화에 따라 최대 발광세기의 변화를 나타내고 있는데, 유로퓸의 함량 6%에서 발광세기가 최대치를 보이고 있다. 따라서 본 연구조건에서는 유로퓸 함량이 이트

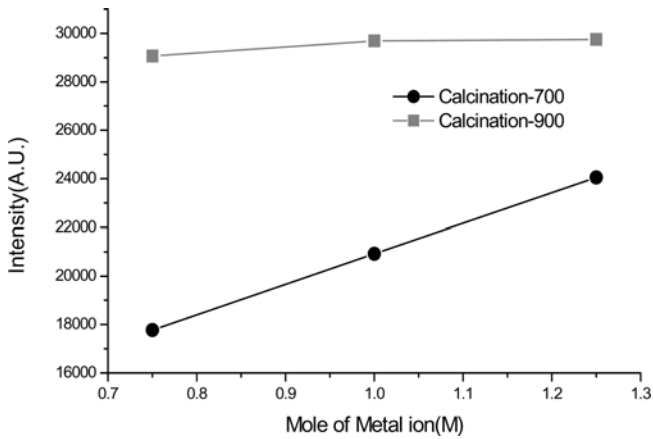


Fig. 9. Effect of metal ions concentration on the maximum intensity at 613 nm.

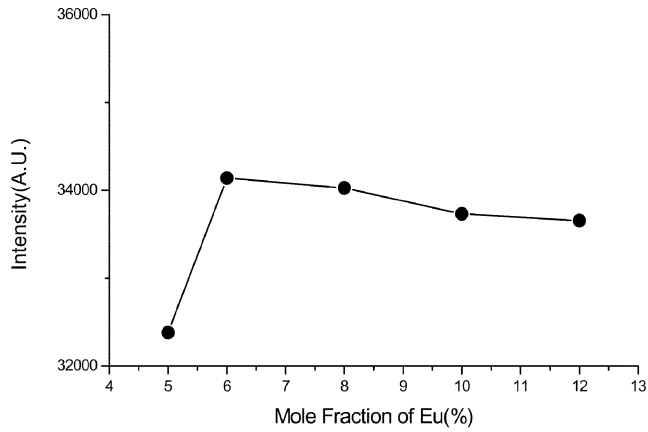


Fig. 10. Effect of europium content on the maximum intensity at 613 nm.

를 대비 6% 이상 되어야 형광체 결정립에 유로퓸이 균질하게 분포되어 발광세기가 증가하는 것을 알 수 있으며, 그 이상에서는 발광세기 변화가 미약함을 알 수 있었다.

4. 결 론

본 연구에서는 이트륨과 유로퓸 질산수용액으로부터 솔-젤 및 소성공정에 의한 적색 형광체를 제조함에 있어, 솔-젤 반응의 고찰을 통한 반응메카니즘을 해석하고, 제조된 적색형광체의 특성 고찰을 통하여 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다. 아울러 초기 설비 투자비가 저렴하고 미세입자 제조에 유리한 솔-젤 법을 이용하여 첨단 기능성 희토류계 원료분말을 합성할 수 있는 가능성을 확인할

수 있었다.

(1) 무정형 구연산염 솔-젤 반응은 반응 초기에 킬레이트화 반응과 가수분해 반응이 완료되었으며, 가수분해의 진행에 따라 축합중합반응은 유기산 형성 축합중합 보다는 물 형성 축합중합반응이 더 우세하게 일어나며, 축합중합반응이 속도결정단계이었다.

(2) 솔-젤 반응의 진행을 위해서는 이트륨(유로퓸 포함)과 젤화작용제인 구연산 몰 비는 1:2 이상이 필요하였다.

(3) 솔-젤과 건조과정을 거쳐 얻은 젤 분말의 열분석 결과 형광체를 얻기 위한 소성온도는 700 °C 이상이 되어야 하며, 젤 분말의 소성 시 소성온도가 증가함에 따라 생성되는 형광체의 결정도가 향상되었으며, 결정립 크기가 증가하였다.

(4) 제조된 형광체의 발광특성 분석 결과, 출발용액 내 금속이온(이트륨 및 유로퓸)의 농도, 그리고 소성온도가 증가할수록 발광세기가 증가하였다.

감 사

본 연구는 한국지질자원연구원의 일반연구사업인 「광물자원으로부터 나노소재의 원료물질 제조기술 개발」에 관한 일련의 연구로 수행되었으며, 이에 감사드립니다. 또한, 존경하는 최청송 교수님의 명예로운 정년퇴임을 진심으로 축하드립니다.

참고문헌

1. Park, H. D., Kang, Y. C., "Research Trend of Phosphors," CHEMWORLD, 5(2002).
2. Han, S. D. et al., "Study on Synthesis and Application of Nano Phosphors Doped with Rare Earth Ions," KIER Technical Report (2005).
3. Brinker, C. J., et al., "Sol-Gel Science," Academic Press(1990).
4. Pechini, M. P., "Method of Preparing Lead and Alkaline Earth Titanates and Niobates and Coating Method Using The Same to Form A Capacitor," United States Patent Office 3,330,697(1967).
5. Yang, et al., "Synthesis of Nd₂O₃ Nano Powders by Sol-Gel Auto-Combustion and their Catalytic Esterification Activity," Materials Chemistry and Physics, 84, Issue 1, pp. 52-57(2004).
6. Griesmar, P., et al., "Kinetic Study of Silicon Alkoxides Gelation by Acoustic and Rheology Investigation," *J. of Non-crystallization Solids*, **319**, 57-64(2003).
7. Ch. L. Robert et al., "Powder Synthesis of Nanocrystalline ZrO₂-8% Y₂O₃ Via a Polymerization Route," *Materials Research Bulletin* **36**, 2083-2101(2001).