

Synthesis of Cerium Doped Yttrium Aluminum Garnet Hollow Phosphor Based on Kirkendall Effect

김민정, Suphasis Roy, 공달성, 정현석*

성균관대학교

중공 발광 나노 물질은 특유의 구조적 특성(낮은 밀도, 높은 비표면적, 다공성 물질, 낮은 열팽창계수 등)과 광학적 성질을 이용하여 디스플레이 패널, 광결정, 약물전달체, 바이오 이미징 라벨 등의 다양한 적용이 가능하다. 이러한 적용에 있어 균일한 크기와 형태의 중공 입자는 필수 조건으로 여겨진다. 지금까지 합성된 중공 발광 입자에는 $\text{BaMgAl}_{10}\text{O}_{17} : \text{Eu}^{2+}\text{-Nd}^{3+}$, $\text{Gd}_2\text{O}_3 : \text{Eu}^{3+}$, $\text{EuPO}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$ 과 같은 것들이 있으나 크기 조절이 어렵고, 그 균일성이 확보되지 못하였다. 균일한 크기의 중공 발광 입자를 만들기 위해 SiO_2 나 emulsion을 템플릿으로 이용하여 황화카드뮴, 카드뮴 셀레나이드 중공 입자를 합성한 예가 있으나, 양자점의 독성으로 인하여 바이오분야 응용에는 적합하지 않다.

YAG는 모체로서 형광체에서 가장 많이 이용되는 물질로, 화학적 안정성과 낮은 독성, 높은 양자 효율 등 많은 장점을 갖고 있다. 특히 세륨이 도핑된 YAG형광체의 경우 WLED, 신타레이터, 바이오산업에 적용이 가능하다. 그러나 지금까지 중공 YAG: Ce^{3+} 형광체를 합성한 예가 없었다.

본 연구에서는 단분산 수화 알루미늄 ($\text{Al}(\text{OH})_3$) 입자 위에 세륨이 도핑된 이트륨 베이직 카보네이트 ($\text{Y}(\text{OH})\text{CO}_3$)를 균일하게 코팅한 후 열처리를 하여 균일한 크기의 $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}^{3+}$ (YAG) 중공 입자를 합성하였다. 열처리 온도에 따른 고분해능 투과 전자 현미경(HRTEM), X-선 회절(XRD), 고분해능 에너지 분광법(HREDX) 분석결과, 중공 YAG: Ce^{3+} 입자는 Kirkendall 효과에 의해 형성됨을 확인하였다. 전계방사형 주사 전자 현미경(FE-SEM) 측정을 통해, 열처리 후에도 입자의 크기와 형태가 균일함을 확인하였으며, 공초점 현미경 관찰을 통해 중공 형태를 명확히 확인 할 수 있었다. Photoluminescence (PL) 분광법과 형광 수명 이미징 현미경 (FLIM)을 이용한 광 특성 분석결과, 합성된 입자는 400-500 nm에서 흡수 파장 (456 nm에서 최대 강도)과 500-700 nm 범위의 발광 파장(544 nm에서 최대 강도)을 나타냈고, 상용 YAG: Ce^{3+} (70 ns)에 준하는 74 ns의 잔광 시간(decay time)이 측정되었다. 단분산 수화 알루미늄 입자의 크기를 조절하여 최종 합성된 YAG: Ce^{3+} 의 크기를 조절할 수 있었다. 지름 약 600 nm의 $\text{Al}(\text{OH})_3$ 를 사용한 경우, $1,300^\circ\text{C}$ 에서 열처리를 한 후 평균 지름 590 nm의 중공입자를 합성하였고, 약 170 nm의 $\text{Al}(\text{OH})_3$ 를 이용하여, 더 낮은 온도인 $1,100^\circ\text{C}$ 에서의 열처리를 통해 평균 지름 140 nm의 중공 YAG: Ce^{3+} 입자를 합성하였다. 본 연구를 통하여 합성된 균일한 크기의 YAG 중공입자는 LED와 같은 광전변환 소자 및 다기능성 바이오 이미징 등의 나노바이오 소자 분야에 활용될 수 있음이 기대된다.

Keywords: phosphor, YAG, Kirkendall