

# 백색 LED용 $Y_3Al_5O_{12}:Ce^{3+}$ 형광체 크기 효과 및 광 시뮬레이션

이성훈\*·강태욱\*\*·김종수\*\*,\*†,\*\*\*†

\*부경대학교 형광소재은행연구소, \*\*부경대학교 LED공학협동과정  
\*\*\*† 부경대학교 융합디스플레이공학과

## The Size Effect and Its Optical Simulation of $Y_3Al_5O_{12}:Ce^{3+}$ Phosphors for White LED

Sung Hoon Lee\*, Tae Wook Kang\*\* and Jong Su Kim\*\*,\*\*\*†

\*The Phosphor Material Laboratory, Pukyong National University

\*\*Interdisciplinary Program of LED and Solid State Lighting Engineering, Pukyong National University

\*\*\*† Department of Display Engineering, Pukyong National University

### ABSTRACT

In this study, we synthesized two  $Y_3Al_5O_{12}:Ce^{3+}$  phosphors (7  $\mu m$ -sized and 2  $\mu m$ -sized YAG) with different sizes by controlling particles sizes of starting materials of the phosphors for white LED. In the smaller one (2  $\mu m$ -sized YAG), its photoluminescence intensity in the reflective mode was 63 % that of the bigger one (7  $\mu m$ -sized YAG); the quantum efficiencies were 93 % and 70 % for the smaller and the bigger ones. Two kinds of white LED packages with the same color coordinates were fabricated with a blue package (chip size 53 x 30) and two phosphors. The luminous flux of the white LED package with the smaller YAG phosphor was 92 % of that with the bigger one, indicating that the quantum efficiency of phosphor dispersed inside LED package was higher than that of the pure powder. It was consistently confirmed by the optical simulation (LightTools 6.3). It is notable according to the optical simulation that the white LED with the smaller phosphor showed 24 % higher luminous efficiency. If the smaller one had the same quantum efficiency as the bigger one (~ 93 %). Therefore, it can be suggested that the higher luminous efficiency of white LED can be possible by reducing the particle size of the phosphor along with maintaining its similar quantum efficiency.

**Key Words** : YAG:Ce, White LED Package, Quantum Yield, LightTools, Size Effect, Light Simulation

### 1. 서 론

최근 희토류 이온을 활성제로 사용한 산화물 형광체가 고체조명(Solid State Lighting) 인 WLED(White light-emitting diodes)에서 주목을 받고 있다 [1-2]. 고체조명으로 각광받고

있는 발광다이오드(Light emitting diode, LED)는 작은 크기, 환경친화성, 에너지 절약, 높은 휘도, 긴 수명 등으로 형광등이나 백열등을 능가할 수 있는 조명이다. 백색 LED 는 현재 청색 LED 칩 위에 황록색 형광체를 도포하여 소자를 제조함으로써 제조되고 있다. 이 방법은 1997년 일본의 니치아사가 GaN 박막으로 제조된 청색 LED 소자 위에  $Y_3Al_5O_{12}:Ce^{3+}$  (YAG:Ce) 형광체를 결합하여 개발하였다 [3].

†E-mail: jsukim@pknu.ac.kr

최근 LED의 선택적인 파장 기능 활용, 크기조절의 자유도, 유연한 특성 및 파장별 새로운 반응 효과가 수많은 연구논문을 통해 보고되고 있다 [4,5]. 이러한 장점을 활용하여 저전력 유연 디스플레이, 인체 내 삽입형 광유전학 치료, 체외부착 피부치료, 섬유일체형 의류, 반도체 장비, 자율주행센서 및 빅데이터 서비스용 광원 등과 같이 다양한 응용 제품에서 기존 대비 수배에서 수십배 작은 크기의 LED를 새롭게 적용하려는 시도가 진행되고 있다 [6-8].

일반적으로 10 ~ 100 $\mu$ m 수준으로 제작되는 LED를 마이크로 LED라 한다. 하지만, B, G, R 컬러를 각각 발광하는 LED를 사용시 각 컬러의 칩의 구동 방식이 다르며, 저전력화의 어려움이 있다. 따라서 현재 적용되고 있는 Phosphor-converted LED 방식을 이용하여 공정의 간략함과 더불어 단점을 보완하고자 하는 연구가 진행되고 있다 [9-11]. 하지만 마이크로 LED의 적용 가능한 형광체는 그 입자 크기의 제약이 있으며, 고온 고압에서 합성되는 무기 형광체의 경우 입도 조절을 위한 밀링 공정이 필요하며, 공정 중 발생하는 형광체의 표면 입자의 격자 결합 발생으로 인하여 발광 특성이 감소하고 효율이 낮아진다. 또한 최적의 형광체 분말의 크기를 실험적인 방법으로 확인해야 하며, 예측이 가능한 방법은 없는 실정이다 [12].

본 논문에서는  $Y_3Al_5O_{12}:Ce^{3+}$  형광체의 입자 크기를 제어하여 실제 LED 패키지내에서 흡수율과 광추출 효율의 메커니즘을 규명하며, 서로 다른 입자크기의  $Y_3Al_5O_{12}:Ce^{3+}$  형광체를 실제 LED 패키지를 제조하여 특성 평가를 하였으며, LED 패키지내의 광 효율 메커니즘을 규명하고자 LightTools시뮬레이션을 통하여 비교 분석 하였다.

## 2. 실험 과정

### 2.1 실험 방법

입자 크기가 다른 YAG:Ce 형광체를 얻기 위해 고상반응법 (Solid State Reaction Method)을 사용하였다. 서로 다른 입자의 형광체를 합성하기 위해 출발물질의 입자를 조절하여 합성하였다. 입자 크기에 따른 효과를 확인하기 위해 원료  $Y_2O_3$  (High Purity Chemical,  $D_{50}=5\mu$ m, 99.99%),  $Al_2O_3$  (High purity chemical,  $D_{50}=4\mu$ m, 99.99%) 그리고  $CeO_2$  (High purity chemical,  $D_{50}=2\mu$ m, 99.9%)를 사용하여 상대적으로 큰 입자 분포를 가지도록 형광체를 합성하였다. 그리고 작은 입자의 YAG형광체를 합성하기 위해 출발물질  $Y_2O_3$  (High Purity Chemical,  $D_{50}=0.4\mu$ m, 99.9%),  $Al_2O_3$  (High Purity Chemical,  $D_{50}=0.4\mu$ m, 99.9%) 그리고  $CeO_2$  (High Purity Chemical,  $D_{50}=2\mu$ m, 99.9%)를 사용하였다 [13].

각 출발원료를 당량비에 맞게 전자저울을  $10^4$ 의 오차범

위까지 정확하게 측량하고 건식 혼합을 행한다. 고온 전기를 사용하여 1400  $^{\circ}C$  (5  $^{\circ}C/min$ )까지 온도를 증가시켜 6시간 동안 환원 분위기(4%  $H_2$ )에서 진행한다.

고상 반응법을 통하여 합성된 YAG:Ce 형광체의 입도 분석을 위해 입도분석기 (Microtrac S-3500)를 이용하여 측정하였다. 입자 모양을 확인하기 위해 전자주사현미경 (COXEM Co. Ltd.)을 이용하여 형광체의 모양을 확인하였다. 광학적 특성을 분석하기 위해 형광 분광 광도계 (DALSA PRO-5200, Xe lamp)를 이용하여 광특성 (Photoluminescence)을 측정하고 분석하였다.

### 2.2 LED 패키지 및 효율 시뮬레이션 (LightTools Version 6.3) 분석

본 실험에서 진행된 입자 크기가 다른 YAG:Ce 형광체를 5630 패키지 (Forepi model: F1200KDZ-BL, chip size 5.6 x 3.0 x 0.9t mm, Wd 451 nm, 100 ea Set)하여 60 mA에서 구동하여 광 분석 하였다. 색좌표 (0.27, 0.22)을 고정으로 형광체의 함량비를 분석하였으며, 형광체의 분포도를 확인하기 위해 LED 패키지 외관을 확인하였다.

Fig. 1은 실제 LED 패키지와 입자크기에 따른 광효율 메커니즘을 비교하기 위해 LED 패키지 도면과 LightTools (Version 6.3)를 이용하여 시뮬레이션한 그림이다. 실제 도면을 통하여 서로 다른 입자 크기의 형광체를 LED 패키지 했을 경우 광 특성과 효율을 분석하였다.

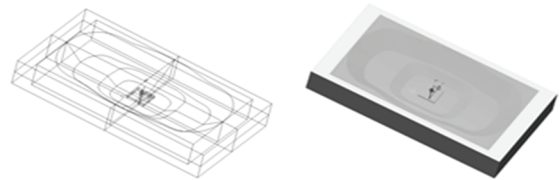


Fig. 1. LED Package design for Light simulation (Forepi model:F1200KDZ-BL, size 56 x 30).

## 3. 결과 및 논의

### 3.1 입자크기에 따른 형광체의 광특성

Fig 2는 출발원료의 입자들을 제어하여 합성한 형광체의 SEM 사진이다. 입도 분석기로 확인한 결과 Table 1과 같이 입자가 큰 원료를 사용하여 합성한 YAG는  $D_{50}$ 기준으로 약 7 $\mu$ m 크기이며, 나노 입자 크기의 원료로 합성한 YAG는 2.5 $\mu$ m임을 확인하였다. Fig. 3과 Table 2는 서로 크기가 다른 형광체의 광 특성이다. 입자 크기가 다른 형광체의 상대 휘도와 발광 특성을 비교한 결과 입자가 큰 7 $\mu$ m YAG 기준으로 2 $\mu$ m YAG는 동일 좌표 내에서 상대 휘도

64 %의 발광 특성을 가진다. 이는 입자크기에 따라 형광체의 결정성 및 결정의 차이 때문인 것으로 생각된다 [12]. 따라서, 합성 시 출발원료 입자들의 제어를 통해 형광체의 입도를 제어할 수 있다.

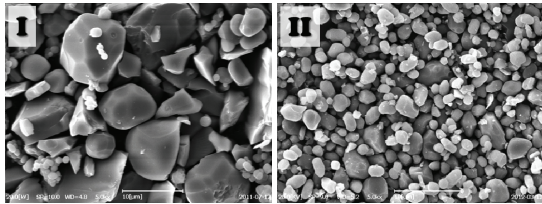


Fig. 2. A scanning electron microscope images of the phosphors: I. 7µm YAG, II. 2µm YAG (x 5K).

Table 1. Particle size Analysis by controlling the start material

구분	D <sub>10</sub> (µm)	D <sub>50</sub> (µm)	D <sub>90</sub> (µm)
7µm YAG	3.3	7.7	14.1
2µm YAG	1.3	2.5	15.9

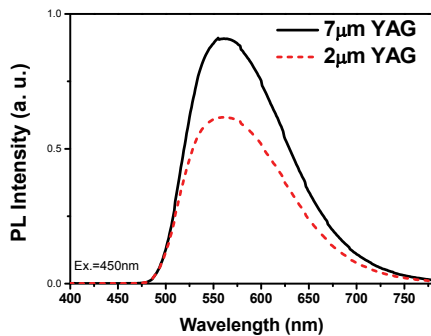


Fig. 3. Photoluminescence spectra depend on particle size.

Table 2. Particle size and relative luminance

	CIE x	CIE y	상대 휘도 (%)
7µm YAG	0.45	0.53	100
2µm YAG	0.45	0.53	64

### 3.1.1 입자 크기에 따른 LED 패키지

입자 크기를 조절한 형광체를 실제 LED 패키지를 통하여 효율을 비교 분석 하였다. Fig 4와 Table 3에 보여지듯이 x좌표를 0.27로 조절 시 7µm YAG을 기준으로 2µm YAG를 상대 휘도는 약 8 % 차이를 보여주고 있다. 형광체 분말에서 상대 휘도 차이는 약 36 %의 차이가 있었으나, 실

제 LED 패키지에서는 차이는 8 %로 줄어들었다. 이는 2µm YAG가 상대적으로 입자가 작아져 7µm YAG 보다 표면적의 증가로 인하여 LED의 여기 광을 효율적으로 흡수하여 효율이 증가하는 것으로 생각된다.

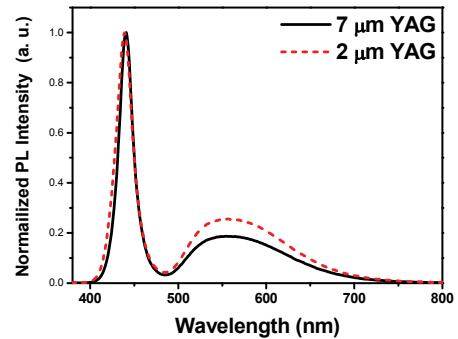


Fig. 4. Photoluminescence spectra with 7µm YAG and 2µm YAG in LED Package.

Table 3. The valuation of appearance and mixing ratio

Cx 조절	2µm YAG 상대 휘도 (%) (Ref. 7µm YAG 100% 기준)
0.260	100
0.265	96
<b>0.270</b>	<b>92</b>
0.275	89
0.280	86

Table 4. The valuation of appearance and mixing ratio

구분	사진	외관평가	배합비
7µm YAG		투명함	2.8 wt%
2µm YAG		탁함	3.0 wt%

Table 4는 LED 패키지의 외관 평가와 배합비를 나타내었다. 상대적으로 입자가 작은 2µm YAG의 LED 패키지는 입자가 큰 7µm YAG 에 비해 패키지 내부가 탁한 것을 알 수 있다. 이는 입자가 작은 형광체가 LED 패키지 내에서 표면적 증가하였음을 확인하였다. 따라서 LED Chip에서 발광하는 청색 광을 표면적이 증가한 형광체가 효율적으

로 흡수함에 따라 그 배합비는 3.0 wt%로 상대적으로 높아진 것을 확인할 수 있다.

3.1.2 입자 크기에 따른 광 시뮬레이션

본 실험에서 진행된  $Y_3Al_5O_{12}:Ce^{3+}$  형광체 특성을 기반으로 광 시뮬레이션을 진행하였다. 시뮬레이션의 조건을 입력하기 위해 각 형광체의 양자효율 값을 Table 5 (a)에 나타내었다.

입자 크기  $7\mu m$ 의 YAG형광체 분말의 경우 양자 효율 93 %이며, 반면 입자 크기가 작은  $2\mu m$ 의 YAG 양자 효율은 70 %로 나타났다. 이러한 실제 양자효율을 기본 조건으로 광 시뮬레이션 주요 조건 값으로 설정된다. 광 시뮬레이션을 위한 설정 값을 Table 5 (b)에 나타냈다.

**Table 5.** (a) The quantum yield values of  $7\mu m$ YAG and  $2\mu m$ YAG phosphor powder, (b) LightTools simulation set conditions

(a)	$7\mu m$ YAG	$2\mu m$ YAG
양자효율(%)	93	70
(b)	Material Type: Homogeneous Matrix Density = 1.2 mg/mm <sup>3</sup>	
Mie	Phosphor Density = 4.5 mg/mm <sup>3</sup>	
Control	Excitation Input = Quantum Yield (stokes shift calculated when tracing rays) *Based on Mie Theory	

광 시뮬레이션을 통하여 LED 패키지내 형광체의 분산도가 일정하며, 백색 색좌표 각각 ( $x=0.27, y=0.22$ )에 고정하여 가장 핵심 인자인 평균 자유 행로 (Mean Free Path; MFP) 값을 계산하였다. Table 6과 같이  $7\mu m$ 의 YAG 형광체는 LED 패키지 내에서 평균 자유 행로 0.26mm 값을 가지며,  $2\mu m$ 의 YAG 형광체는 LED 패키지 내에서 평균 자유 행로 0.08mm 값을 가진다. 입자 크기가 작을수록 광 경로(Ray Path)는 형광체 입자와 만날 확률이 높아지고 평균 자유 행로 값은 낮아진다. 평균 자유 행로 값이 입자의 크기가 작아질수록 광선을 만나는 확률이 많아짐으로써, 그에 따른 효율 변화를 예상 할 수 있다.

**Table 6.** The calculated mixing ratio and the calculated Mean Free Path value (fixed  $x,y=0.27,0.22$ )

색좌표 (x,y)	형광체	배합비 (wt%)	평균 자유행로 (MFP, mm)
(0.27,0.22)	$7\mu m$ YAG	4.4	0.26
	$2\mu m$ YAG	4.7	0.08

백색 좌표(0.27, 0.22)에 매칭하여 계산된 배합비는  $7\mu m$  YAG 는 4.4 wt%,  $2\mu m$  YAG 는 4.7 wt%이다. 이는 실제 LED 패키지 배합비와 같이 크기가 작은 경우의 형광체가 좀 더 높은 배합비로 계산되었다. 실제 LED 패키지와 비교하여 광 시뮬레이션으로 계산된 배합비는 형광체 분말이 이상적으로 분산되어 있는 것을 가정한 상태이다. 실제 LED 패키지의 경우 실리콘계 유기바인더 (DOW Coning, OE6631)의 경화 공정 중 시간이 지남에 따라 형광체가 침전되어 광 시뮬레이션상의 이상적인 상태와는 차이가 있는 것으로 생각된다.

Table 7은 측정된 형광체의 양자 효율을 설정하여 계산한 값과 형광체의 분말 크기에 따라 LED 패키지의 휘도 변화를 확인하기 위해 서로 크기가 다른 형광체의 양자 효율을 같은 값으로 설정하고 그 휘도를 비교하였다.  $2\mu m$  YAG 의 상대 휘도는 91 %로 계산되었다. 이는 실제 LED 패키지를 적용한 결과 92 %와 비슷한 수준으로 광 시뮬레이션 값이 어느 정도의 신뢰성을 갖고 있음을 알 수 있다. 또한,  $2\mu m$  YAG 와  $7\mu m$  YAG가 동일한 양자 효율이라 가정할 때 시뮬레이션 결과 상대 휘도 124 %로 큰 폭으로 휘도가 증가하였다. 따라서 본 실험에서의 중요한 변수인 입자 크기는 형광체 합성 시 다양한 공정을 거침으로써 발생하는 결점을 줄이고 결정성을 높여 양자 효율의 저하를 줄인다면, YAG형광체의 입자 크기에 따라 효율을 극대화 시킬 수 있다.

**Table 7.** The table of calculated relative luminance by simulation

형광체	배합비 (wt%)	양자 효율 (%)	상대 휘도(%)
$7\mu m$ YAG	4.4	93	100
$2\mu m$ YAG	4.7	70	91
$7\mu m$ YAG	4.4	93	100
$2\mu m$ YAG	4.7		124

4. 결 론

본 연구에서 백색 LED의 고효율을 위해 YAG형광체의 입자 크기에 따른 효율을 확인하기 위해 입자가 작은 출발원료를 활용하여 고상 반응 합성한다. 합성된 YAG 형광체의 입자 크기는  $D_{50}$ 기준  $7\mu m$ 와  $2\mu m$ 로 출발 원료의 조절로 YAG의 입자 크기를 제어할 수 있었다.

각각 다른 입자 크기를 지닌 YAG 분말의 휘도는  $7\mu m$  YAG 를 기준으로  $2\mu m$ YAG 의 상대 휘도는 64 %로 낮게 확인되었다.

이를 이용하여 각각 다른 입자크기의 형광체를 LED 패키지를 제작하였다. 그 결과 동일 색좌표 (0.27,0.22) 일 때, 7 $\mu$ m YAG로 제작한 LED 패키지와 2 $\mu$ m YAG로 제작한 LED 패키지의 휘도 차이는 8 %로 상대적으로 입자가 작은 형광체가 낮은 휘도 특성을 확인하였다. 분말 상태의 광 특성과 비교하면, LED 패키지 내에서 2 $\mu$ m YAG의 형광체가 표면적이 넓어짐에 따라 효율이 높아 짐을 알 수 있다.

형광체의 입자 크기가 LED패키지 효율에 미치는 영향을 확인하고자 LightTools시뮬레이션 하였다. 시뮬레이션 결과 실제 LED 패키지한 결과와 거의 동일한 결과로 2 $\mu$ m YAG를 적용한 LED 패키지의 상대 휘도는 91 %로 계산되었다. 입자 크기에 따른 휘도 변화를 확인하고자 크기가 다른 7 $\mu$ m YAG와 2 $\mu$ m YAG의 양자 효율 동일하다고 설정하였다. 시뮬레이션을 통해 계산된 상대 휘도는 124 %로 높게 나타났다. 이는 입자 크기가 작을수록 평균 자유행로 값이 낮아진다. 그러므로 작은 입자의 형광체가 조밀한 상태로 형성됨으로써, LED 패키지내의 광 추출 효율 및 휘도는 높아지는 것을 광 시뮬레이션을 통해 확인하였다.

## 감사의 글

이 논문은 부경대학교 자율창의학술연구비(2017년)에 의하여 연구되었음.

## 참고문헌

1. U. Zehnder, A. Weimar, U. Strauss, M. Fehrer, B. Hahn, H. J. Lugauer and V. Harle, "Industrial production of GaN and InGaN-light emitting diodes on SiC-substrates," *J. Cryst. Growth*, Vol. 230, pp. 497, 2001.
2. E. F. Schubert and J. K. Kim, "Solid-State Light Sources Getting Smart," *Science*, Vol. 308, pp. 1274, 2005.
3. W. M. Yen, S. Shionoya, H. Yamamoto, "Phosphor Handbook, 2nd ed.," CRC Press, Boca Raton, 2007.
4. Han H.V., Lin H.Y., Lin C.C., Chong W.C., Li J.R., Chen K.J., Yu P.C., Chen T.M., Chen H.M., Lau K.M., "Resonant-enhanced full-color emission of quantum-dot-based micro LED display technology," *Opt. Express*, Vol. 23, pp. 32504–32515, 2015.
5. 이성훈, 김종수, 강태욱, 류종호, 이상남, "고연색 LED용 적색 Sr<sub>2</sub>Si<sub>5</sub>N<sub>8</sub>:Eu<sup>2+</sup> 형광체의 합성 및 발광 특성연구," *반도체디스플레이기술학회지* 제16권 제4호, 2017.
6. L. T. Su, A. I. Y. Tok, Y. Zhao, N. Ng, F. Y. C. Boey, J. L. Woodhead, C. J. Summers, "Electron-Phonon Interactions in Ce<sup>3+</sup>-Doped Yttrium Aluminum Garnet Nanophosphors," *J. Phys. Chem. B*, Vol. 112, pp. 10830, 2008.
7. K. W. Park, S. G. Lim, G. Deressa, J. S. Kim, T. W. Kang, H. L. Choi, Y. M. Yu, Y. S. Kim, J. G. Ryu, S. H. Lee, and T. H. Kim, "High power and temperature luminescence of Y<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub>:Ce<sup>3+</sup> bulky and pulverized single crystal phosphors by a floating-zone method," *J. Lumin.* Vol. 168, pp. 334, 2015.
8. Philippe F. Smet, Anthony B. Parmentier and D. Poelman, "Selecting Conversion Phosphors for White Light-Emitting Diodes," *J. Electrochem. Soc.*, Vol. 158(6), pp. R37, 2011.
9. F. Olivier, S. Tirano, L. Dupré, B. Aventurier, C. Largeron, F. Templier, "Influence of size-reduction on the performances of GaN-based micro-LEDs for display application," *J. Lumin.* Vol. 191, pp. 112 2015.
10. H. X. Jiang, S. X. Jin, J. Li, J. Shakya, and J. Y. Lin, "III-nitride blue microdisplays," *Appl. Phys. Lett.* Vol. 78, pp. 1303, 2001.
11. H.W. Choi, C.W. Jeon, M.D. Dawson, P.R. Edwards, R.W. Martin, S. Tripathy, "Mechanism of enhanced light output efficiency in InGaN-based microlight emitting diodes," *J. Appl. Phys.*, Vol. 93 pp. 5978, 2003.
12. K. W. Park, T. W. Kang, D. H. Kim, J. H. Park, H. L. Choi, and J. S. Kim "Spectral variation of Y<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub>:Ce<sup>3+</sup> nanophosphors and their optical simulation," *J. Lumin.*, Vol. 191, pp. 40, 2017.
13. A. Ikesue, K. Yoshida, K. Kamata, "Transparent Cr<sup>4+</sup>-Doped YAG Ceramics for Tunable Lasers," *J. Am. Ceram. Soc.* Vol. 79, pp. 507, 1996.

접수일: 2019년 1월 22일, 심사일: 2019년 3월 7일,  
게재확정일: 2019년 3월 17일