



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2012-0061343
(43) 공개일자 2012년06월13일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C09K 11/08 (2006.01) H01L 33/00 (2010.01)
(21) 출원번호 10-2010-0122623
(22) 출원일자 2010년12월03일
심사청구일자 없음

(71) 출원인
삼성엘이디 주식회사
경기도 용인시 기흥구 삼성2로 95(농서동)
(72) 발명자
박윤곤
경기도 수원시 영통구 영통로200번길 156, 1001동 904호 (망포동, 방죽마을영통뜨란채)
윤철수
경기도 수원시 영통구 봉영로1517번길 76, 신나무실6단지 신명아파트 632동 101호 (영통동)
(뒷면에 계속)
(74) 대리인
특허법인씨엔에스

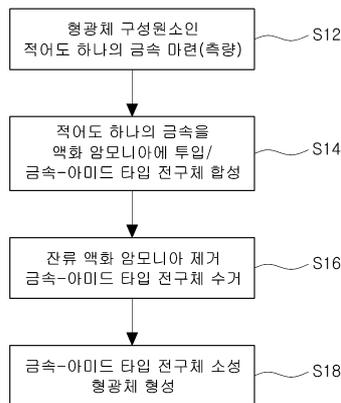
전체 청구항 수 : 총 17 항

(54) 발명의 명칭 **형광체 제조방법 및 발광 장치**

(57) 요약

본 발명은, 형광체 원료가 되는 적어도 하나의 금속을 액화 암모니아에 용해시켜 금속-아미드 타입의 전구체를 형성하는 단계와, 상기 금속-아미드 타입의 전구체를 수거하는 단계와, 상기 전구체로부터 형광체가 형성되도록 상기 전구체를 소성하는 단계를 포함하는 형광체 제조방법을 제공한다.

대표도 - 도1



(72) 발명자

송원영

서울특별시 서초구 사평대로28길 31, 서래아파트
2동 403호 (반포동)

김상현

서울특별시 구로구 구로중앙로18길 68, 3동 102호
(구로동, 현대아파트)

원형식

경기도 수원시 영통구 삼성로268번길 8, 원천삼성
아파트 2동 1301호 (원천동)

특허청구의 범위

청구항 1

원하는 형광체의 원료가 되는 적어도 하나의 금속을 액화 암모니아에 용해시켜 금속-아미드 타입의 전구체를 형성하는 단계;

상기 금속-아미드 타입의 전구체를 수거하는 단계; 및

상기 전구체로부터 상기 형광체가 형성되도록 상기 전구체를 소성하는 단계를 포함하는 형광체 제조방법.

청구항 2

제1항에 있어서,

상기 적어도 하나의 금속은 복수의 금속인 것을 특징으로 하는 형광체 제조방법.

청구항 3

제2항에 있어서,

상기 금속-아미드 타입의 전구체를 형성하는 단계는, 상기 액화 암모니아에 상기 복수의 금속을 투입하여 용해시키는 단계를 포함하는 것을 특징으로 하는 형광체 제조방법.

청구항 4

제2항에 있어서,

상기 금속-아미드 타입의 전구체를 형성하는 단계는, 상기 복수의 금속을 하나 또는 2종의 금속 그룹으로 구분하는 단계와, 상기 구분된 금속그룹을 서로 다른 조에 마련된 액화 암모니아에 용해시키는 단계를 포함하며,

상기 소성하는 단계 전에, 서로 다른 조에 마련된 액화 암모니아의 전구체를 혼합하는 단계를 더 포함하는 것을 특징으로 하는 형광체 제조방법.

청구항 5

제4항에 있어서,

상기 전구체를 혼합하는 단계는, 상기 액화 암모니아를 기화시킨 후에 수행되는 것을 특징으로 하는 형광체 제조방법.

청구항 6

제2항에 있어서,

상기 복수의 금속은, IV족 원소 중 적어도 하나의 원소와, I족 내지 III족 원소 중 적어도 하나의 원소를 포함하는 것을 특징으로 하는 형광체 제조방법.

청구항 7

제6항에 있어서,

상기 복수의 금속은 적어도 1종의 희토류 원소를 포함하며, 상기 희토류 원소는, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm 및 Yb으로 구성된 그룹으로부터 선택된 것을 특징으로 하는 형광체 제조방법.

청구항 8

제1항에 있어서,

상기 금속-아미드 타입의 전구체를 수거하는 단계는,

상기 전구체가 잔류하도록 상기 액화 암모니아를 기화시키는 단계인 것을 특징으로 하는 형광체 제조방법.

청구항 9

제8항에 있어서,

상기 액화 암모니아를 기화시키는 단계는, 상기 액화 암모니아를 단계적으로 승온시킴으로써 수행되는 것을 특징으로 하는 형광체 제조방법.

청구항 10

제8항 또는 제9항에 있어서,

상기 액화 암모니아를 기화시키는 단계 후에 얻어진 전구체는 분말상태인 것을 특징으로 하는 형광체 제조방법.

청구항 11

제10항에 있어서,

상기 전구체 분말은 약 $1\mu\text{m}$ 이하의 평균입도를 갖는 것을 특징으로 하는 형광체 제조방법.

청구항 12

제8항에 있어서,

상기 전구체를 형성하는 단계와 상기 액화 암모니아를 기화시키는 단계 사이에, 상기 액화 암모니아 내에서 상기 전구체를 에이징함으로써 상기 전구체의 입도를 조절하는 단계를 포함하는 것을 특징으로 하는 형광체 제조방법.

청구항 13

제1항에 있어서,

상기 전구체를 소성하는 단계는, 150°C ? 1500°C 범위에서 수행되는 것을 특징으로 하는 형광체 제조방법.

청구항 14

제1항에 있어서,

상기 전구체를 소성하는 단계는, 대기, 질소(N_2), 산소(O_2) 및 NH_3 로부터 선택된 적어도 하나의 가스 분위기에

서 수행되는 것을 특징으로 하는 형광체 제조방법.

청구항 15

제1항에 있어서,

상기 형광체는 질화물 형광체 또는 산질화물 형광체인 것을 특징으로 하는 형광체 제조방법.

청구항 16

제1항 내지 제14항 중 어느 한 항에 의해서 제조된 형광체.

청구항 17

200nm~500nm 범위에 피크 파장을 갖는 여기광을 방출하는 LED 칩; 및

상기 LED 칩 주위에 배치되어 상기 여기광의 적어도 일부를 파장변환하며, 제1항 내지 제15항 중 어느 한 항에 따라 제조된 형광체를 포함하는 백색 발광장치.

명세서

기술분야

[0001] 본 발명은 형광체 제조방법에 관한 것으로서, 특히 높은 발광특성과 우수한 열적, 화학적 안정성을 가지는 형광체 제조방법과 함께 이를 이용한 발광 장치에 관한 것이다.

배경기술

[0002] 일반적으로, 형광체는 다양한 광원의 특정 파장광을 원하는 파장광으로 변환시키는 물질로 사용되고 있다. 특히, 다양한 광원 중 발광다이오드는 저전력 구동 및 우수한 광효율로 인해 LCD 백라이트와 자동차 조명 및 가정용 조명장치로서 유익하게 적용될 수 있으므로, 최근에 형광체 물질은 백색광 LED를 제조하기 위한 핵심 기술로 각광받고 있다.

[0003] 최근에는 CIE 색좌표에서 정의된 자연광에 가까운 백색광을 구현하는 기술이 진행되고 있으며, 이러한 백색광을 방출하기 위한 백색 발광다이오드 소자에 대한 연구가 활발히 진행되고 있다.

[0004] 상기 백색 발광다이오드 소자는 청색 또는 자외선 광원을 가지는 LED 칩에 청색, 녹색, 황색, 적색 등의 발광 스펙트럼을 가지는 형광체를 적용하여 제조된다. 여기에 사용되는 다양한 형광체와 각 형광체들의 발광효율은 상기 백색 발광다이오드 소자의 특성 및 효율을 결정하는데 중요한 역할을 한다.

[0005] 종래의 형광체 제조방법에서는, 형광체 제조를 위한 금속화합물을 측량하고 그 혼합물을 형성한 후에, 상기 혼합물을 고온의 소성을 이용하여 형광체를 제조한다.

[0006] 하지만, 이러한 고온의 소성에 의해 얻어진 형광체는 균일한 조성분포를 보장하는데 어려움이 있을 뿐만 아니라, 소결된 형광체는 분말이 응집되어 상대적으로 큰 입도를 가지므로, 균일하고 미세한 입도를 얻기 위해서는 별도의 분쇄공정으로 분쇄할 필요가 있다.

[0007] 또한, 질화물계 형광체인 경우에, 소결 자체가 어려우므로, 고온의 소성 공정과 함께 고압의 조건이 요구되는 공정상 번거로운 문제가 있다.

발명의 내용

해결하려는 과제

[0008] 본 발명은 상기한 종래 기술의 문제점을 해결하기 위한 것으로서, 그 목적 중 하나는 균일한 조성을 가지며 상대적으로 저온의 공정에 의해 실행될 수 있는 형광체 제조방법을 제공하는데 있다.

[0009] 본 발명의 다른 목적은, 상기한 제조방법으로 얻어진 형광체를 이용하는 발광 장치를 제공하는데 있다.

과제의 해결 수단

[0010] 상기한 기술적 과제를 실현하기 위한 것으로서, 본 발명의 일 측면은,

[0011] 원하는 형광체의 원료가 되는 적어도 하나의 금속을 액화 암모니아에 용해시켜 금속-아미드 타입의 전구체를 형성하는 단계와, 상기 금속-아미드 타입의 전구체를 수거하는 단계와, 상기 전구체로부터 상기 형광체가 형성되도록 상기 전구체를 소성하는 단계를 포함하는 형광체 제조방법을 포함한다.

[0012] 상기 적어도 하나의 금속은 복수의 금속일 수 있다. 이 경우에, 상기 금속-아미드 타입의 전구체를 형성하는 단계는, 상기 액화 암모니아에 상기 복수의 금속을 투입하여 용해시키는 단계를 포함할 수 있다.

[0013] 상기 적어도 하나의 금속은 복수의 금속인 경우에, 상기 금속-아미드 타입의 전구체를 형성하는 단계는, 상기 복수의 금속을 2개 이상으로 구분하는 단계와, 상기 구분된 2개 이상의 금속을 서로 다른 조에 마련된 액화 암모니아에 용해시키는 단계를 포함하며, 상기 소성하는 단계 전에, 서로 다른 조에 마련된 액화 암모니아의 전구체를 혼합하는 단계를 더 포함할 수 있다.

[0014] 특정 예에서, 상기 전구체를 혼합하는 단계는, 상기 액화 암모니아를 기화시킨 후에 수행될 수 있다.

[0015] 상기 복수의 금속은, IV족 원소 중 적어도 하나의 원소와, I 족 내지 III족 원소 중 적어도 하나의 원소를 포함할 수 있다.

[0016] 이 경우에, 상기 복수의 금속은 적어도 1종의 희토류 원소를 포함하며, 상기 희토류 원소는, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm 및 Yb으로 구성된 그룹으로부터 선택될 수 있다.

[0017] 상기 금속-아미드 타입의 전구체를 수거하는 단계는, 상기 전구체가 잔류하도록 상기 액화 암모니아를 기화시키는 단계에 의해 수행될 수 있다.

[0018] 상기 액화 암모니아를 기화시키는 단계는, 상기 액화 암모니아를 단계적으로 승온시킴으로써 수행될 수 있다.

[0019] 상기 액화 암모니아를 기화시키는 단계 후에 얻어진 전구체는 분말상태일 수 있다. 이 경우에, 상기 전구체 분말은 약 1 μ m 이하의 평균입도를 갖는 미세 분말일 수 있다.

[0020] 특정 예에서, 상기 전구체를 형성하는 단계와 상기 액화 암모니아를 기화시키는 단계 사이에, 상기 액화 암모니아 내에서 상기 전구체를 에이징함으로써 상기 전구체의 입도를 조절하는 단계를 포함할 수 있다.

[0021] 상기 전구체를 소성하는 단계는, 150 $^{\circ}$ C?1500 $^{\circ}$ C범위에서 수행될 수 있다.

[0022] 또한, 상기 전구체를 소성하는 단계는, 대기, 질소(N₂), 산소(O₂) 및 NH₃로부터 선택된 적어도 하나의 가스 분위기에서 수행될 수 있다.

[0023] 본 제조방법에 따라 얻어지는 상기 형광체는 질화물 형광체 또는 산질화물 형광체일 수 있다.

[0024] 본 발명의 다른 측면은, 200nm~500nm 범위에 피크 파장을 갖는 여기광을 방출하는 LED 칩과, 상기 LED 칩 주위에 배치되어 상기 여기광의 적어도 일부를 파장변환하며, 상술된 제조방법에 따라 얻어진 형광체를 포함하는 백색 발광장치를 제공한다.

발명의 효과

[0025] 본 발명에서는, 액화 암모니아에 측량된 금속을 용융시켜 얻어진 전구체로부터 형광체를 제조하므로, 균일한 조성 분포를 갖는 형광체를 얻을 수 있다. 또한 반응성이 높은 전구체 상태에서 소성공정이 실행되므로, 상대적으로 낮은 소성 온도에서 형광체를 제조할 수 있다. 전구체 합성 단계 또는 소성공정을 조절함으로써 별도의 분쇄공정 없이도 나노 수준의 미세한 분말형태로 얻어질 수 있다.

[0026]

도면의 간단한 설명

[0027] 도1은 본 발명에 따른 형광체 제조방법의 일 예를 설명하기 위한 공정 순서도이다.
 도2a 및 도2b는 각각 본 발명의 다른 예로서, 복합 금속 형광체 제조방법을 설명하기 위한 공정 순서도이다.
 도3a 및 도3b는 본 발명의 실시예에서 얻어진 금속-아미드 타입 전구체(Eu(NH₂)₂)의 SEM 사진이다.
 도4는 본 발명의 실시예에서 얻어진 금속-아미드 타입 전구체(Eu(NH₂)₂)의 XRD 패턴이다.
 도5a 및 도5b는 본 발명의 실시예에 따라 제조된 형광체(EuN)의 SEM 사진이다.
 도6은 본 발명의 실시예에 따라 제조된 형광체(EuN)의 XRD 패턴이다.
 도7a 및 도7b는 본 발명에 따라 제조된 형광체가 적용될 수 있는 반도체 발광장치의 예를 나타낸다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0028] 이하, 첨부된 도면을 참조하여 본 발명을 상세히 설명하기로 한다.

[0029] 도1은 본 발명에 따른 형광체 제조방법의 일 예를 설명하기 위한 공정 순서도이다.

[0030] 도1을 참조하면, 본 예에 따른 형광체 제조방법은, 적어도 하나의 금속을 마련하는 단계(S12)로부터 시작될 수 있다.

[0031] 본 단계에서 마련되는 금속은 형광체 원료를 구성하는 원소로서, 하나의 금속일 수 있으나, 2종 이상의 금속을 포함하는 복합 금속 화합물인 형광체일 경우에, 그 2 종 이상의 금속일 수 있다.

[0032] 복수의 금속일 경우에, IV족 원소 중 적어도 하나의 원소와, I 족 내지 III족 원소 중 적어도 하나의 원소를 포함할 수 있다. 예를 들어, β-SiAlON을 제조하고자 할 경우에, 본 단계는 실리콘(Si)과 알루미늄(Al)을 원하는 비율로 측량하여 마련하는 단계로 실행될 수 있다.

[0033] 추가적으로, 상기 복수의 금속은 적어도 1종의 희토류 원소를 포함할 수 있다. 상기 희토류 원소는, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm 및 Yb으로 구성된 그룹으로부터 선택될 수 있다.

[0034] 다음으로, 단계(14)에서, 형광체 원료가 되는 적어도 하나의 금속을 액화 암모니아에 용해시켜 금속-아미드 타입(metal amide type)의 전구체를 형성한다.

[0035] 본 단계에서는, 금속을 용해시킬 용매로서 암모니아(NH₃)를 액화시킨 액화 암모니아를 채용한다. 암모니아 가

스는 영하 40℃ 이하 정도에서 액화될 수 있다. 따라서, 액화 암모니아는 비교적 간단한 액상 질소조(liquid nitride bath) 또는 초저 냉각순환기(ultra-low refrigerated circulator)를 이용하여 용이하게 마련될 수 있다. 이러한 액화과정은 드라이 질소 분위기 또는 Ar과 같은 불활성 가스 분위기에서 실행될 수 있다.

- [0036] 이러한 액화 암모니아를 얻기 위해서는 다량의 암모니아 가스가 필요하므로, 암모니아 가스의 높은 점도(viscosity)와 낮은 이동도(mobility)를 제어할 필요가 있다. 이러한 점을 고려하여 암모니아 가스를 공급하는 관과 같은 구조는 적어도 40℃로 유지하는 것이 바람직하다.
- [0037] 액화 암모니아에 투입된 금속은 용해되어 비교적 균질한 금속 암모니아 용액이 형성될 수 있다. 이러한 과정에서 액화 암모니아와 금속이 반응하여 금속 아미드타입의 전구체가 형성될 수 있다. 예를 들어, Eu 금속인 경우에 NH₃에 용해되어 Eu(NH₂)₂를 형성하고, Al 금속인 경우에 Al(NH₂)₂를 형성할 수 있다.
- [0038] 이어, 단계(S16)에서는 합성 반응 후에 잔류하는 액화 암모니아를 제거하여 상기 금속 아미드 타입 전구체를 수거한다.
- [0039] 본 단계는 액화 암모니아를 기화시키는 과정으로 용이하게 실행될 수 있다. 즉, 합성 반응 후에 액화 암모니아를 암모니아의 액화점보다 높은 온도로 승온시켜 암모니아 가스로 기화시킴으로써 원하는 금속 아미드 타입의 전구체를 침전시켜 용이하게 수거할 수 있다. 예를 들어, 전구체 수거를 위한 기화온도조건은 냉각 조건을 해제한 상온일 수 있다.
- [0040] 상기 액화 암모니아를 기화시키는 공정은, 단계적인 승온과정을 통해서 실행될 수 있다. 상기 액화 암모니아를 기화시키는 단계 후에 얻어진 전구체는 분말상태일 수 있다. 이 경우에, 상기 전구체 분말은 약 1μm 이하의 평균입도를 갖는 미세 분말일 수 있다. 이러한 단계적인 승온 조건을 통해서 전구체의 입도를 제어할 수 있다.
- [0041] 필요에 따라, 상기 전구체를 수거하는 단계(S16) 전에 상기 액화 암모니아 내에서 상기 전구체를 에이징(aging)함으로써 전구체의 입도를 보다 효과적으로 조절할 수 있다. 이와 같이, 본 발명은 전구체 레벨에서 미세 분말형태로 형성할 수 있을 뿐만 아니라, 그 입도도 제어할 수 있는 장점을 제공할 수 있다.
- [0042] 끝으로, 단계(S18)에서, 상기 금속-아미드 타입 전구체를 소성하여 상기 전구체로부터 원하는 형광체를 형성한다.
- [0043] 금속 아미드 전구체는 종래의 금속화합물에 의해 반응성이 높으므로, 통상의 소성온도(예, 1600℃ 이상)보다 비교적 낮은 소성온도에서 소결될 수 있다. 예를 들어, 본 전구체 소성 단계는, 150℃?1500℃범위에서 수행될 수 있다. 바람직하게 1000℃이하, 보다 바람직하게는 550℃ 이하에서 소성공정이 실행될 수 있다.
- [0044] 이러한 소성공정은, 대기, 질소(N₂), 산소(O₂) 및 NH₃로부터 선택된 적어도 하나의 가스 분위기에서 수행될 수 있다. 이러한 소성공정을 통해서 금속-아미드 타입의 전구체로부터 원하는 세라믹 소결체 형태의 형광체를 형성할 수 있다.
- [0045] 본 과정으로부터 얻어진 형광체는 질소성분을 함유한 아미드 타입에서 얻어지므로, 질화물(nitride)계 형광체를 취할 수 있으나, 최종 소성 분위기에서 산소성분을 포함함으로써 산질화물(oxynitride)계 형광체를 형성할 수도 있다.
- [0046] 이러한 형광체는 액화 암모니아에서 비교적 균질한 혼합을 통해서 얻어진 전구체를 이용하므로, 원료간의 혼합을 보다 균일하게 보장할 수 있을 뿐만 아니라, 전구체에서 미세 분말형태로 얻어지며 이러한 입도를 제어할 수 있으므로 최적화된 형광체를 제조하는데 매우 유리하다. 또한, 상기 형광체는 반응성이 좋은 전구체를 이용하므로, 낮은 소성온도에서 형광체를 얻을 수 있는 장점도 제공할 수 있다.
- [0047] 상기 적어도 하나의 금속은 복수의 금속일 수 있다. 이 경우에, 상기 금속-아미드 타입의 전구체를 형성하는 단계는, 상기 액화 암모니아에 상기 복수의 금속을 투입하여 용해시키는 단계를 포함할 수 있다.

- [0048] 본 발명에 따른 형광체 제조방법은 복수의 금속을 함유한 복합 금속 형광체에도 유익하게 적용될 수 있다. 도 2a 및 도2b는 복합 금속 형광체 제조방법의 다양한 예를 설명하기 위한 공정 순서도이다.
- [0049] 우선, 도2a를 참조하면, 복합 금속 제조방법의 제1 예는 복합 금속 형광체의 구성원소에 해당하는 복수 종의 금속을 마련하는 단계(S22)로부터 시작된다. 각 금속은 최종 형광체에서 요구되는 비율을 고려하여 측정될 수 있다.
- [0050] 이어, 단계(S24)에서는 측정된 복수 종의 금속을 액화 암모니아에 함께 투입하여 복합 금속 아미드 타입 전구체를 형성한다.
- [0051] 예를 들어, β -SiAlON을 얻기 위해서, 적절한 비율로 측정된 금속 실리콘과 금속 알루미늄을 하나의 액상 질소조에 마련된 액화 암모니아에 함께 또는 순차적으로 투입하여 실리콘과 알루미늄이 함유된 아미드 타입의 전구체를 형성할 수 있다.
- [0052] 다음으로, 단계(S26)에서, 여분의 액화 암모니아를 제거하고 복합 금속 아미드 타입의 전구체를 수거한다.
- [0053] 본 단계에서, 도1에 도시된 공정의 단계(S16)에서 설명된 바와 같이, 본 공정은 액화 암모니아가 기화될 수 있는 온도로 승온시킴으로써 용이하게 실행될 수 있다. 또한, 기화 단계 전에 적절한 에이징 공정을 도입하거나 승온과정을 조절함으로써 전구체의 입도를 제어할 수 있다. 이는 최종적인 형광체 분말의 입도에 반영될 수 있다.
- [0054] 끝으로, 단계(S28)에서 복합 금속 아미드 타입의 전구체를 소성하여 원하는 복합 금속 형광체를 형성할 수 있다.
- [0055] 복합 금속 아미드 타입의 전구체는 반응성이 높으므로, 비교적 낮은 온도의 소성공정을 통해서 원하는 세라믹 소결체의 복합 금속 형광체를 마련할 수 있다.
- [0056] 본 발명에 따른 복합 금속 형광체 제조방법은 도2a에서 설명된 공정과 달리 도2b에 따라 실행될 수도 있다.
- [0057] 도2a를 참조하면, 복합 금속 제조방법의 제2 예는 앞선 제1 예와 유사하게, 복합 금속 형광체의 구성원소에 해당하는 복수 종의 금속을 마련하는 단계(S32)로부터 시작된다. 각 금속은 최종 복합 금속 형광체에서 요구되는 금속 함량 비율을 고려하여 측정될 수 있다.
- [0058] 이어, 단계(S34)에서는 측정된 복수 종의 금속을 각각 개별적으로 마련된 액화 암모니아에 투입하여 복수의 금속 아미드 타입 전구체를 형성한다.
- [0059] 예를 들어, β -SiAlON을 얻기 위해서, 적절한 비율로 측정된 금속 실리콘과 금속 알루미늄을 2개의 액상 질소조에 마련된 액화 암모니아에 개별적으로 투입하여 실리콘 아미드와 알루미늄 아미드를 각각 형성한다.
- [0060] 물론, 3개 이상의 금속을 사용할 경우에 3개 조를 사용할 수 있으나, 2개의 조를 사용하여 2개의 금속을 하나의 조에 투입하여 복합 금속 아미드를 마련할 수 있다. 이와 같이, 복수의 금속을 2개 이상으로 구분하고, 상기 구분된 2개 이상의 금속을 서로 다른 조에 마련된 액화 암모니아에 용해시킬 수 있다.
- [0061] 다음으로, 단계(S36)에서, 서로 다른 조에 마련된 여분의 액화 암모니아를 제거하고 금속 아미드 타입의 전구체를 각각 수거한다.
- [0062] 본 단계에서도 도1에 도시된 공정의 단계(S16)에서 설명된 바와 같이, 본 공정은 액화 암모니아가 기화될 수 있는 온도로 승온시킴으로써 용이하게 실행될 수 있다. 또한, 기화 단계 전에 적절한 에이징 공정을 도입하게

나 승온과정을 조절함으로써 전구체의 입도를 제어할 수 있다.

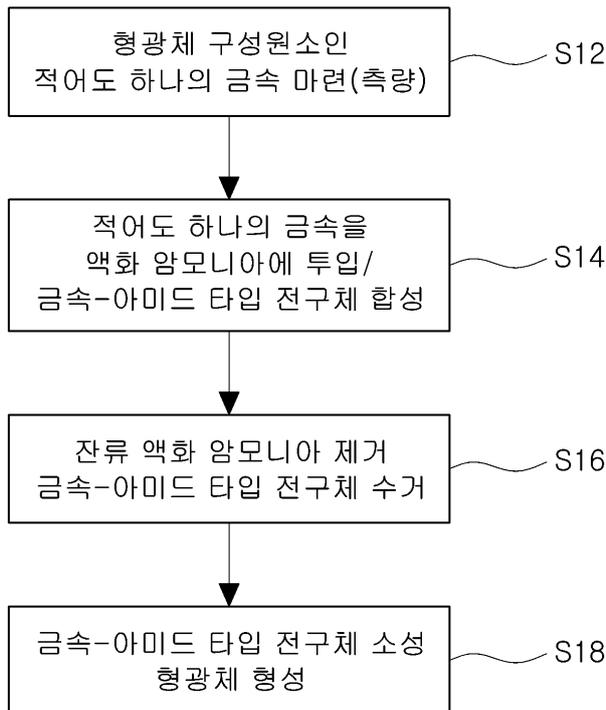
- [0063] 끝으로, 단계(S38)에서 각각의 수거된 금속 아미드 타입의 전구체를 혼합하여 그 혼합된 전구체를 소성함으로써 원하는 복합 금속 형광체를 형성할 수 있다.
- [0064] 상술된 복합 금속 형광체 제조방법에서 적용될 수 있는 복합 금속 형광체로는 질화물 형광체 뿐만 아니라, 다양한 형태의 산질화물 형광체를 제공할 수 있다. 예를 들어, 적색 형광체로는 $MA_1SiN_x:Re(1 \leq x \leq 5)$ 인 질화물계 형광체이며, 녹색 형광체로는, $M_xA_yO_xN_{(4/3)y}$ 산질화물 형광체, $M_aA_bO_cN_{((2/3)a+(4/3)b-(2/3)c)}$ 산질화물 형광체 및 β -SiAlON 형광체 중 적어도 하나일 수 있으며, 상기 황등색 형광체로는 α -SiAlON:Re계일 수 있다.
- [0065] 여기서, M는 Be, Ba, Sr, Ca, Mg 중 선택된 적어도 1종의 원소이고, A는 C, Si, Ge, Sn, Ti, Zr, Hf으로 구성된 그룹에서 선택되는 적어도 1종의 IV족 원소이며, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm 및 Yb 중 선택된 적어도 하나일 수 있다.
- [0066] 이하, 본 발명의 구체적인 실시예를 통해서 본 발명의 다양한 작용과 효과를 보다 상세히 설명하기로 한다.
- [0067] <실시예>
- [0068] 본 실시예를 위해서 0.5g의 Eu 금속(99.9%; Santoku Co. 제품)을 마련하였다. 암모니아(NH_3) 가스(Iwantani Ind Ltd. 제품)를 정제한 후에 드라이 N_2 분위기 하에서 50cm³의 스테인레스 스틸 반응기에 약 1350 cm³의 정도 투입하여 드라이 아이스로 냉각하여 액화시켰다. 그 액화 암모니아가 마련된 반응기에 미리 측량된 Eu 금속을 투입하여 용해시켰다.
- [0069] 이 과정에서 균질한 Eu 아미드($(Eu(NH_2)_2)$) 전구체가 합성되었고, 여분의 액화 암모니아를 273K로 상승시켜 기화시킨 후에, 침전물형태로 잔류한 $(Eu(NH_2)_2)$ 를 수거하였다. 본 공정을 통해서 얻어진 $(Eu(NH_2)_2)$ 는 도3a 및 도3b에 나타난 바와 같이, 이미 전구체 레벨에서 미세한 분말형태로 형성되었다. 도4의 XRD 패턴을 통해서 본 단계에서 수거된 전구체가 $Eu(NH_2)_2$ 인 것을 확인할 수 있다.
- [0070] 이어, 수거된 $Eu(NH_2)_2$ 전구체를 약 573K(약 300℃)에서 1시간동안 소성하였다. 그 결과 도6의 XRD 패턴에서 확인할 수 있는 바와 같이 EuN 인 질화물 소결체를 얻을 수 있다. 도5a 및 도5b의 EuN 에 대한 SEM 사진에 나타난 바와 같이, 최종 형광체가 수십 내지 수백nm의 입도를 갖는 나노 크리스탈의 미세한 분말임을 알 수 있다.
- [0071] 이와 같이, 반응성이 우수한 금속 아미드 전구체를 이용함으로써 낮은 소성 온도에서도 형광체를 얻을 수 있으며, 전구체 레벨에서 미세한 분말이 얻어질 수 있으므로, 그 제어를 통해서 미세한 나노수준의 형광체 분말을 제조할 수 있다.
- [0072] 이와 같이, 상술된 형광체는 다양한 패키지 형태로 적용되어 백색광을 제공하는 발광장치에 적용될 수 있다. 도7a 및 도7b는 본 발명에 따른 형광체가 채용될 수 있는 다양한 발광장치의 예를 나타내는 측면면도이다.
- [0073] 도7a에 도시된 백색 발광장치(50)는, 2개의 리드프레임(52a, 52b)이 형성된 기판(51)을 포함한다.
- [0074] 상기 기판(51) 상에 근자외선 또는 청색 발광다이오드(55)가 배치되며, 상기 근자외선 또는 청색 발광다이오드(55)의 두 전극(미도시)은 각각 와이어를 통해 상기 리드프레임(52a, 52b)에 연결될 수 있다.
- [0075] 또한, 본 발명에 따른 형광체를 포함한 백색 발광용 형광체 또는 다른 형광체와의 혼합물을 이용하여 상기 발광다이오드(55)를 둘러싸도록 형광체(59)를 함유한 수지포장부(58)가 형성된다. 상기 수지포장부(58)는 상기한 형광체 또는 혼합 혼합물(59)을 에폭시 수지, 실리콘 수지 또는 실리콘과 에폭시의 혼합수지와 같은 경화

성 투명 수지에 적절하게 혼합하여 구성할 수 있다.

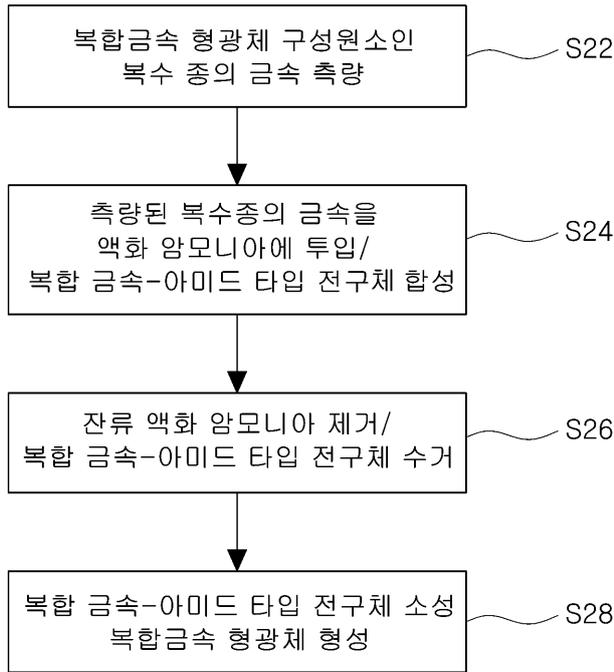
- [0076] 앞선 실시형태와 달리, 도7b에 도시된 백색 발광장치(60)와 같이, 형광체를 수지포장부 내부에 혼합한 형태가 아니라 별도의 막(69)으로 구성할 수 있다.
- [0077] 도7b에 도시된 바와 같이, 본 실시형태에 따른 발광장치(60)는 2개의 리드 프레임(62a,62b)이 형성된 패키지 본체(61)를 포함한다. 상기 패키지 본체(61)는 도시된 바와 같이, 오목부(C)를 갖는 구조로 제공될 수 있다.
- [0078] 도7b에 도시된 백색 발광장치(60)에 채용된 형광체막은 발광다이오드(69) 상면에 적용된 형태로 예시되어 있다.
- [0079] 상기 패키지 본체(61) 상에 근자외선 또는 청색 발광다이오드(65)가 배치되며, 상기 근자외선 발광다이오드(65)의 두 전극(미도시)은 각각 와이어를 통해 상기 리드프레임(62a,62b)에 연결된다. 또한, 상기 오목부에 상기 발광다이오드(45)를 둘러싸도록 투명수지로 이루어진 수지포장부(48)를 형성한다.
- [0080] 백색 발광장치(20,30,40)에 채용되는 발광다이오드(25,35,45)는 200?410nm의 파장광을 방출하는 자외선 또는 근자외선 발광다이오드 또는 410?500nm의 파장광을 방출하는 청색 또는 유사 청색 발광다이오드일 수 있다.
- [0081] 본 발명은 상술한 실시형태 및 첨부된 도면에 따라 한정되는 것이 아니고, 첨부된 청구범위에 따라 한정하고자 하며, 청구범위에 기재된 본 발명의 기술적 사상을 벗어나지 않는 범위 내에서 다양한 형태의 치환, 변형 및 변경이 가능하다는 것은 당 기술분야의 통상의 지식을 가진 자에게 자명할 것이다.

도면

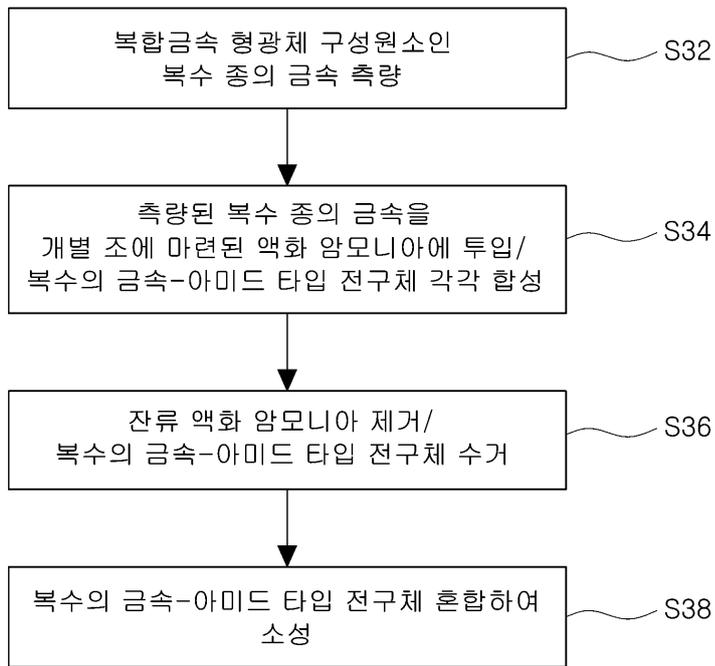
도면1



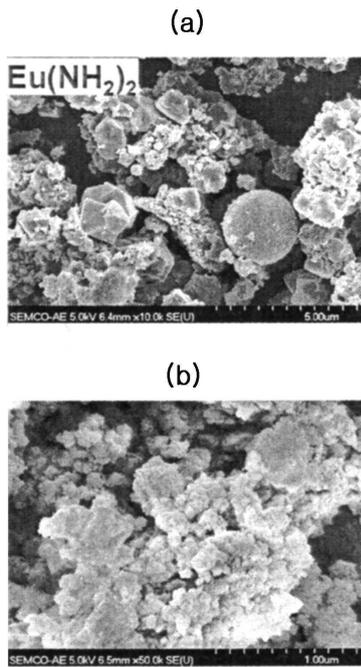
도면2a



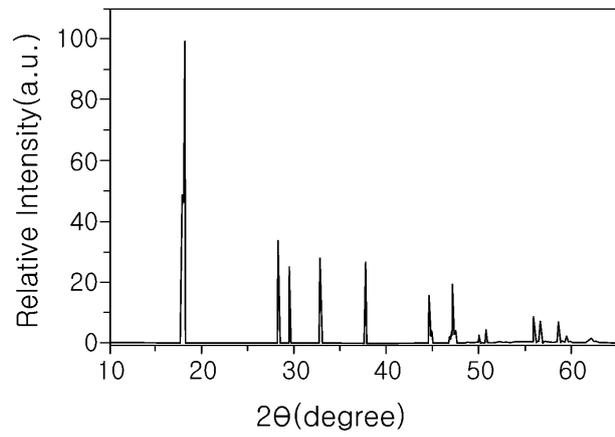
도면2b



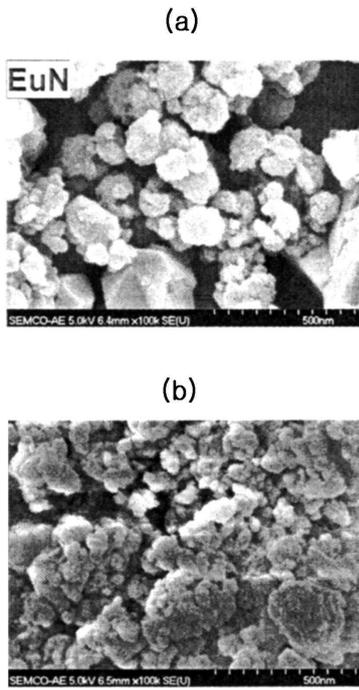
도면3



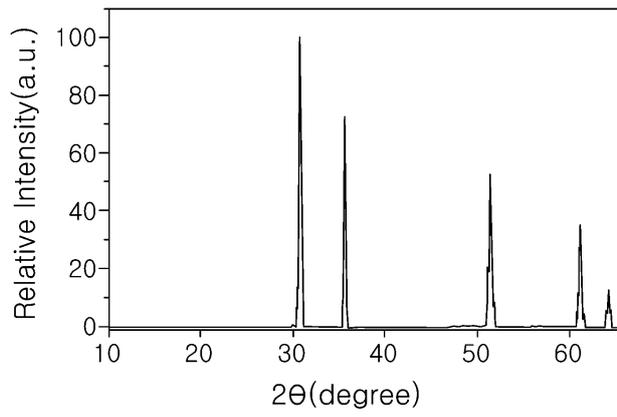
도면4



도면5



도면6



도면7

