(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2012-0069217
(43) 공개일자 2012년06월28일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
B82B 3/00 (2006.01) *C09K 11/80* (2006.01)
(21) 출원번호 10-2010-0130664
(22) 출원일자 2010년12월20일
심사청구일자 2010년12월20일

(71) 출원인
부경대학교 산학협력단
부산광역시 남구 신선로 365 (용당동, 부경대학교)
(72) 발명자
양현경
부산광역시 기장군 기장읍 대청로 46-10, 아람하이츠빌라 B동 401호
정증현
부산광역시 수영구 광안로 12, SK VIEW 103동 2202호 (광안동)

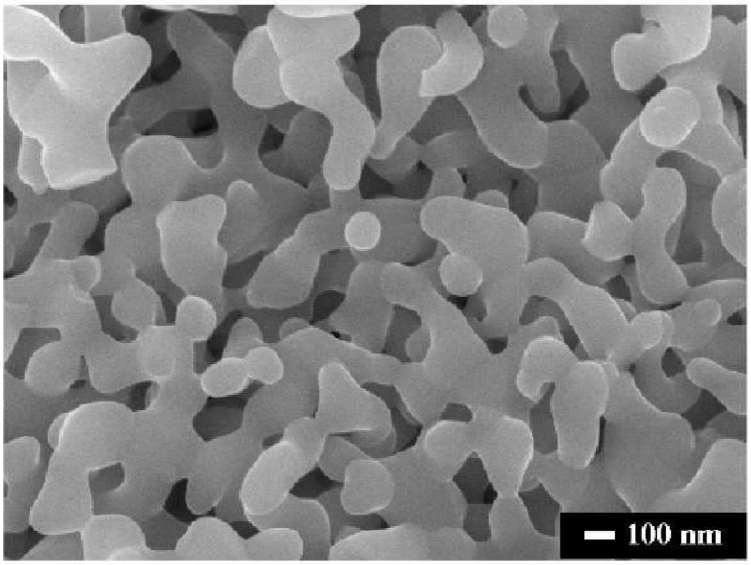
전체 청구항 수 : 총 5 항

(54) 발명의 명칭 **고 에너지 볼 밀링방법을 이용한 이트륨알루미늄가넷 나노결정의 제조**

(57) 요 약

본 발명은 고 에너지 볼 밀링방법을 이용한 이트륨알루미늄가넷(Yttrium aluminium garnet, 이하 YAG라 함) 나노결정의 제조방법에 관한 것으로서, 화학적인 합성방법을 사용하지 않고 일반적인 고상반응법을 이용하여 1300℃의 낮은 열처리 온도에서 순수한 YAG 나노결정을 제조하는 방법에 관한 것이다.

대 표 도



특허청구의 범위

청구항 1

고 어너지 볼 밀링 방법을 이용한 1300℃의 낮은 소성온도에서 하기 화학식 1의 YAG 나노결정의 제조방법.

화학식1

$Y_3Al_5O_{12}$

청구항 2

산화이트륨, 산화알루미늄들을 180ml 바울에 넣고 산화이트륨, 산화알루미늄과 반응하지 않는 용매를 150ml 채우고 10mm의 직경을 가지는 고 순도 ZrO볼 25개를 투입 후, 위성볼밀기기에 넣고 350rpm으로 100시간동안 볼 밀링을 시행 후 건조로에서 완전건조 후 얻어진 시료를 1300℃에서 4시간동안 소성하는 방법.

청구항 3

제2항에 있어서,

산화이트륨, 산화알루미늄과 반응하지 않는 용매는 물, 에탄올, 메탄올, 아세톤을 특징으로 하는 방법.

청구항 4

제2항에 있어서,

위성볼밀기의 rpm이 300내지 400에서 밀링하는 것을 더 포함하는 방법.

청구항 5

제2항에 있어서,

10mm의 직경을 가지는 고 순도 ZrO볼의 개수를 조절하는 방법.

명 세 서

기 술 분 야

[0001] 본 발명은 고 에너지 볼 밀링방법을 이용한 이트륨알루미늄가넷(Yttrium aluminium garnet, 이하 YAG라 함) 나노결정의 제조방법에 관한 것으로서, 화학적인 합성방법을 사용하지 않고 일반적인 고상반응법을 이용하여 1300℃의 낮은 열처리 온도에서 순수한 YAG 나노결정을 제조하는 방법에 관한 것이다.

배 경 기 술

[0002] 본 발명은 YAG 나노결정의 제조방법에 관한 것이다.

[0003] YAG는 조성식 $Y_3Al_5O_{12}$와 같은 garnet 결정구조의 aluminate이며, 화학적?열적으로 매우 안정하고, 레이저발진 소자의 원료나, 형광소자의 모체물질등의 용도가 있다. YAG에 있어서 Y의 일부를 Ce로 치환한 것으로 조성식 $Ce_xY_{3-x}Al_5O_{12}$로 표시되는 형광체재료가 되고, 특히 405 nm의 GaN등의 여기광에 의한 백색 발광 LED에 효율적으로 형광을 발한다는 것이 알려져 있다.

[0004] YAG의 대표적인 합성방법으로서는 산화이트륨과 산화알루미늄을 함께 볼밀링등으로 분쇄혼합하고, 1500℃의 고온으로 일정시간 고상반응시킨 후 다시 볼밀등으로 미립자화하여 체로 분급하는 방법이 대표적이며, 나노형태의 대표적인 합성방법으로는 열수용법(Hydrothermal), 열용매법(Solvothermal)등이 대표적인다.

[0005] 그러나, 고상반응에 의해 얻어진 생성물을 볼밀로 분쇄함으로써 미립자화를 행하고 있으므로, 얻어지는 YAG미립자의 입자분포가 2~20㎛로 넓고, 거칠고 큰 입자의 혼입을 피할 수 없으며, 1500℃의 고온에서 고상반응이 가능하기 때문에, 제조단가가 비싸지는 문제점이 있다. 그리고, 열수용법, 열용매법등의 화학적인 합성방법을 이용한 나노입자의 합성법은 100 nm 이하의 작고 균일한 입자의 합성은 가능하지만, 기본적인 시료의 가격이 비싸고 합성의 공정이 복합하며 한번의 공정으로 생산할 수 있는 시료의 량이 적은 문제점이 있다.

발명의 내용

해결하려는 과제

[0006] 본 발명은 나노크기의 미세하고 입경분포가 좁고, 또한 고순도의 YAG 나노결정의 제조를 간단한 공정과 1300℃의 낮은 온도에서 열처리를 통하여 대량생산이 가능하게 하는 방법을 제공하는 것을 목적으로 한다.

과제의 해결 수단

[0007] 고 에너지 볼 밀링방법을 이용하여 1300℃의 낮은 온도에서 열처리를 통하여 평균 100 nm의 작고 균일한 YAG 나노결정을 제조한다.

발명의 효과

[0008] 화학적이 합성방법 없이 고상반응법을 이용하여 나노크기의 미세하고 입경분포가 좁고, 또한 고순도의 YAG 나노결정의 제조를 간단한 공정과 1300℃의 낮은 온도에서 열처리를 통하여 제조비용을 절감할 수 있으며, 대량생산이 가능하다.

도면의 간단한 설명

[0009] 도1은 본 발명의 실시예 1에 따른, 고 에너지 볼 밀링방법을 이용하여 1000, 1100, 1200, 그리고 1300℃에서 소성한 YAG 나노결정의 X-선회절패턴을 나타낸 특성도.

도2는 본 발명의 실시예 1에 따른, 고 에너지 볼 밀링방법을 이용하여 1300℃에서 소성한 YAG 나노결정의 주사현미경사진.

도3은 본 발명의 실시예 2에 따른, 고상반응법을 이용하여 1300℃, 1400℃, 그리고 1500℃에서 소성한 YAG 결정의 X-선회절패턴을 나타낸 특성도.

도4는 본 발명의 실시예 2에 따른, 고상반응법을 이용하여 1300℃에서 소성한 YAG 결정의 주사현미경사진.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0010] **실시예**

[0011] 본 발명의 고 에너지 볼밀링 방법에 따르면, 일반적인 고상반응법에서 고상반응시킨 후 다시 볼밀등으로 미립자화하여 체로 분급하는 과정 없이 YAG 나노결정의 제조가 가능하며, 1300℃의 낮은 온도에서 YAG상을 얻을 수 있다.

[0012] 다음에, 본 발명의 적합한 실시예에 대하여 설명한다.

[0013] [제1의 실시예]

[0014] 본 실시예는 산화이트륨 Y_2O_3과 산화알루미늄 Al_2O_3으로 YAG 나노결정을 제조한 예이다.

[0015] 먼저, 산화이트륨 Y_2O_3 8.468g과 산화알루미늄 Al_2O_3 6.373g을 칙량하여 Planetary Ball Milling 전용 용기인 180ml 원통형 바울에 넣고 산화이트륨 및 산화알루미늄과 반응하지 않는 용매를 150ml 채우고 10㎜의 직경을 가지는 고 순도(99.9%) ZrO볼 25개를 투입 후, 위성볼밀기기에 넣고 350rpm으로 100시간동안 볼 밀링을 시행 후 100℃의 건조로에서 완전건조 후 산화이트륨과 산화알루미늄이 고루 혼합된 시료를 얻었다.

[0016] 다음에 얻어진 시료를 0.5g씩 분리하여 고 순도(99.8%) 알루미늄 도가니에 넣고 1000, 1100, 1200, 그리고 1300℃에서 각각 4시간동안 소성하였다.

[0017] 얻어진 각각의 YAG 나노결정을 X-선회절을 행하여 YAG의 결정상을 확인하였다. 이 결과를 도면1에 나타낸다. 도면 중, 종축은 YAG 상의 회절강도(임의 단위)를 나타내고 횡축은 회절각도 2q(°)를 나타낸다. 이 도면으로부터 1200℃이하에서는 $Y_4Al_2O_9$(이하 YAM이라 함), $YAlO_3$(이하, YAP라 함)의 결정상이 존재하고, 1300℃에서 순수한 YAG의 결정상이 나타난다. 이 X-선회절패턴은 JCPDS(joing committee on Powder Diffraction Standards)카드 (YAM, 22-0987), (YAP, 33-0041), (YAG, 08-0178)와 일치한다.

[0018] 또, 고 에너지 볼밀링 방법을 통하여 1300℃에서 소성한 YAG 나노결정을 주사전자현미경에 의해 관찰했을 때의 사진을 도면2에 나타낸다. 이 도면에 의하면, 평균 입경이 약 100nm이고, 입도가 잘 갖추어진 YAG 나노결정이 얻어져 있는 것을 알 수 있다.

[0019]

[0020] [제2의 실시예]

[0021] 본 실시예는 제1의 예와 달리 일반적인 고상반응법을 이용한 산화이트륨 Y_2O_3과 산화알루미늄 Al_2O_3으로 YAG 결정을 제조한 예이다.

[0022] 먼저, 산화이트륨 Y_2O_3 8.468g과 산화알루미늄 Al_2O_3 6.373g을 칙량하여 일반적인 250ml 플라스틱 원통 바울에 넣고 산화이트륨 및 산화알루미늄과 반응하지 않는 용매를 200ml 채우고 3mm의 직경을 가지는 고 순도(99.9%) ZrO볼을 200g 투입 후, 볼밀기기에 놓고 350rpm으로 20시간동안 밀링을 시행 후 100℃의 건조로에서 완전건조 후 산화이트륨과 산화알루미늄이 고루 혼합된 시료를 얻었다.

[0023] 다음에 얻어진 시료를 0.5g씩 분리하여 고 순도(99.8%) 알루미늄 도가니에 넣고 1300℃, 1400℃, 그리고 1500℃에서 각각 4시간동안 소성하였다.

[0024] 얻어진 YAG 결정을 X-선회절을 행하여 결정상을 확인하였다. 이 결과를 도면2에 나타낸다. 도면 중, 종축은 YAG 상의 회절강도(임의 단위)를 나타내고 횡축은 회절각도 2q(°)를 나타낸다. 이 도면으로부터 YAM, YAP, YAG의 결정상이 혼재하여 나타남을 알 수 있으며, 일반적인 고상반응법을 통하여 1300℃, 1400℃, 1500℃의 모든 소성온도에서 순수한 YAG 결정상을 얻을 수 없음을 확인했다.

[0025] 또, 일반적인 고상반응법을 통하여 1300℃에서 소성한 YAG 결정을 주사전자현미경에 의해 관찰했을 때의 사진을 도면4에 나타낸다. 이 도면에 의하면, 평균 입경이 약 200~500nm이고, 균일하지 못한 YAG 결정이 얻어져 있는 것을 알 수 있다.

[0026] 이상의 설명으로부터도 명백한 바와 같이, 제1의 실시예에 있어서 얻어지는 YAG 나노결정은 입경이 평균 100nm이하로 매우작고, 입도분포가 균일하며, 1300℃의 낮은 소성온도에서도 순순한 YAG 나노결정이 조성된다는 것을 확인하였다.

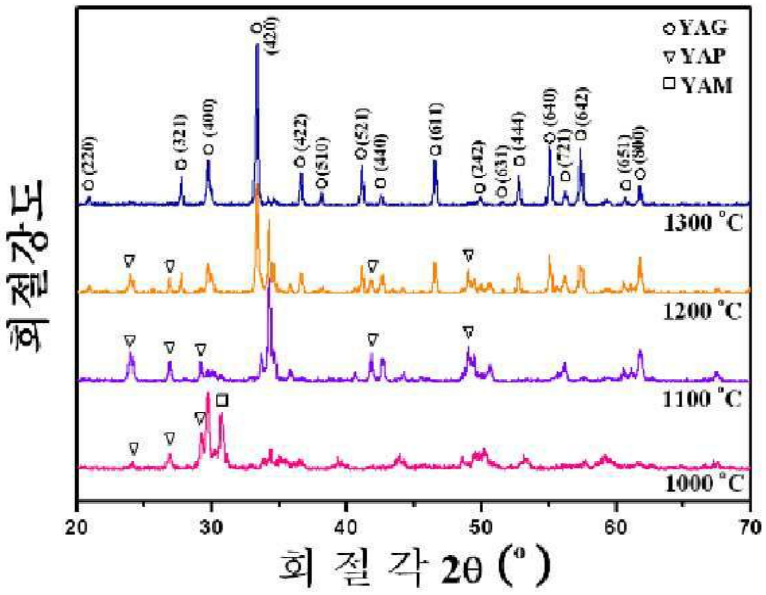
[0027] **산업이용 가능성**

[0028] 본 발명은 화학적인 합성방법이 아닌 물리적인 합성방법을 이용함으로써 공정이 간단하고 한번의 공정으로 많은 량의 합성이 가능하며, 낮은 온도에서 YAG 나노결정을 제조할 수 있으며, 이러한 공정을 통하여 YAG:Ce등

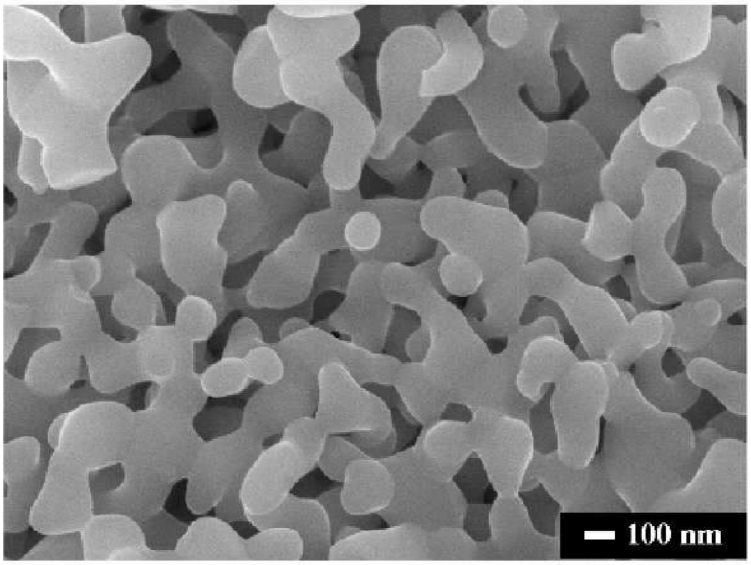
의 화이트 LED등의 제조가 가능하다.

도면

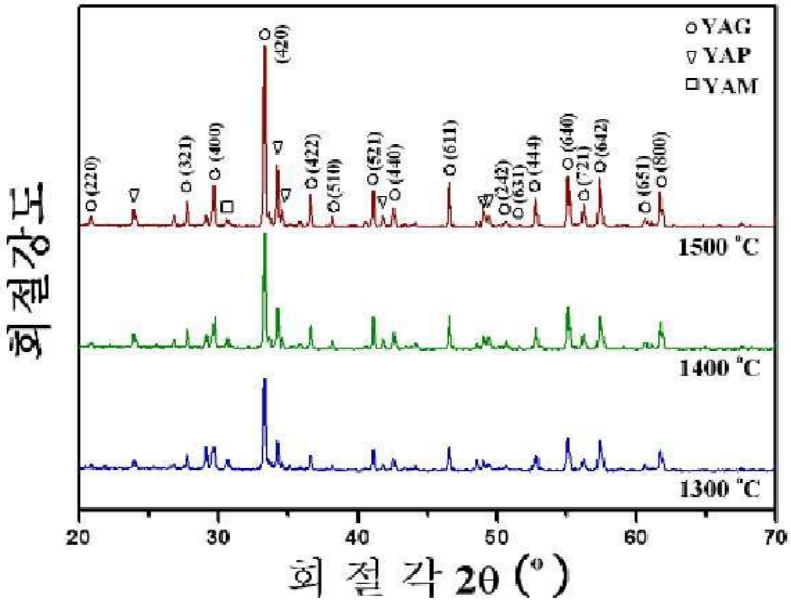
도면1



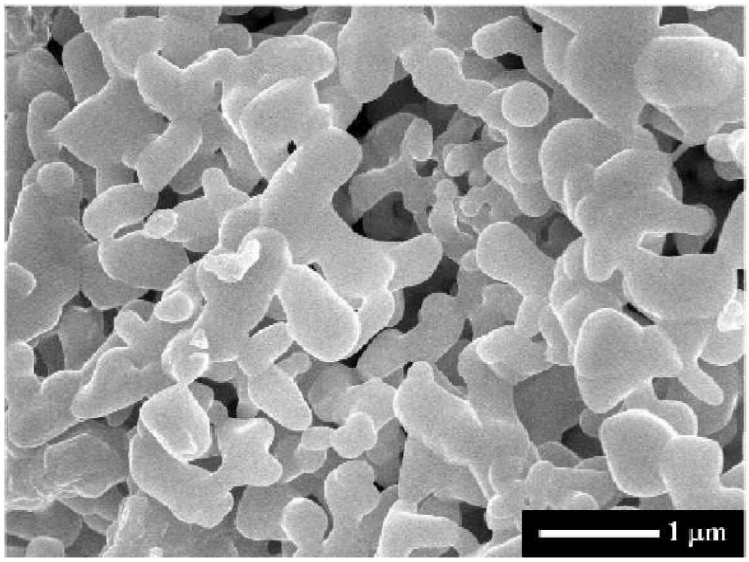
도면2



도면3


YAG
YAP
YAM
(220)
(321)
(400)
(420)
(422)
(510)
(521)
(440)
(611)
(242)
(631)
(444)
(640)
(721)
(642)
(651)
(800)
1500 °C
1400 °C
1300 °C
회절강도
20
30
40
50
60
70
회 절 각 2θ (°)

도면4


1 μm