

## Effects of forming and cooling temperature on the opaque properties of translucent opal glass for the glass diffuser of LED lighting

Hyun-Woo Ku<sup>\*,\*\*</sup>, Tae-Young Lim<sup>\*,†</sup>, Jonghee Hwang<sup>\*</sup>, Jin-Ho Kim<sup>\*</sup>, Mi-Jai Lee<sup>\*</sup> and Dong Wook Shin<sup>\*\*</sup>

<sup>\*</sup>Korea Institute of Ceramic Engineering & Technology, Seoul 153-801, Korea

<sup>\*\*</sup>Hanyang University, Seoul 133-791, Korea

(Received August 12, 2013)

(Revised September 10, 2013)

(Accepted September 13, 2013)

**Abstract** Translucent opal glass was fabricated in order to substitute polycarbonate diffuser of LED lighting for the purpose of improving the durability problem. Calcium phosphate was used for the opacifier of opal glass and melted at 1550°C for 2 hrs in electric furnace. Because opal glass was made by phase separation and growth of opacifier grains during cooling procedure after forming of melted glass, we identified the effect of opaque properties by the change of forming and cooling temperature, as R.T. (room temperature), 850°C, 1100°C and 1200°C. As the results, it had excellent optical properties for the diffuser of LED lighting in the fabricated sample of forming and cooling at 1200°C, with no dazzling from direct light by high haze value over 82 % and low parallel transmittance value under 10 %. For the thermal properties, it had expressed thermal expansion coefficient of  $6.352 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$  and softening point of 839°C.

**Key words** Opal glass, Diffuser, LED, Lighting, Optical properties

## LED 조명용 반투명 유리 광확산판에 있어서 성형 및 냉각온도가 유백특성에 미치는 영향

구현우<sup>\*,\*\*</sup>, 임태영<sup>\*,†</sup>, 김진호<sup>\*</sup>, 이미재<sup>\*</sup>, 황종희<sup>\*</sup>, 신동욱<sup>\*\*</sup>

<sup>\*</sup>한국세라믹기술원 광·디스플레이소재팀

<sup>\*\*</sup>한양대학교 신소재공학과

(2013년 8월 12일 접수)

(2013년 9월 10일 심사완료)

(2013년 9월 13일 게재확정)

**요약** LED 조명등의 내구성 문제를 개선할 목적으로 광 확산판에 사용되는 폴리카보네이트 소재를 대체하기 위하여 반투명 유백유리를 제조하였다. 유백유리의 유백제로서 인산칼슘을 사용하였고, 1550°C 전기로에서 2시간 용융하였다. 유백유리는 용융유리가 성형된 후 냉각 열처리 과정에서 상분리 및 유백입자의 성장에 의해 만들어진다. 따라서 성형 및 냉각온도를 상온, 850°C, 1100°C 및 1200°C로 변화시키면서 유백특성의 영향을 확인하였다. 결과적으로 가장 고온인 1200°C에서 성형 및 냉각을 한 샘플에서 가장 양호한 특성을 갖는 유백유리가 얻어졌다. 이 유리는 82 % 이상의 높은 Haze 값과 10 % 미만의 낮은 평행광 투과도에 의해 직사광 투과에 의한 눈부심이 없이 LED 조명용 광확산판으로서 우수한 광특성을 나타내었다. 또한 열적특성으로서  $6.309 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ 의 열팽창 계수와 839°C의 연화점을 나타내었다.

### 1. 서론

LED 조명은 기존의 백열전구 및 형광등에 비해 전력 소모가 적으면서도 빛의 밝기가 세고 백열등의 100배,

형광등의 10배 이상의 긴 수명을 가지고 있어서 장기적인 경제성에 비추어 볼 때 차세대 조명으로 각광을 받으면서 기존의 조명제품을 대체하고 있다[1-4]. LED 튜브 램프의 경우, LED 소자는 튜브 내부에 삽입되고 LED 소자 뒷면은 방열을 쉽게 하기 위하여 알루미늄 금속 튜브로 되어 있으며 빛이 나가는 방향의 반쪽 면은 유백색 플라스틱 튜브로 되어있어 확산판(diffuser) 역할을 하며, 육안으로 LED 광원을 직접 보았을 때 눈부심을

<sup>†</sup>Corresponding author

Tel: +82-2-3282-2426

Fax: +82-2-3282-7814

E-mail: tyylim@kicet.re.kr

방지하는 효과가 있다. 그러나 현재 사용되고 있는 플라스틱 재질의 확산판(diffuser)은 장시간 사용하면 자외선의 영향을 받아서 황변현상이 발생하여 투과율이 저하되거나 열에 의해 변형되는 단점을 가지고 있어 실외 또는 고온 분위기의 산업현장에서는 사용 수명이 더욱 단축된다. 또한 현재 사용되고 있는 PC 재질의 튜브램프는 저온(-35°C 이하)에서는 사용 환경 조건에 따라 파손되는 단점이 있어 냉동 창고와 같은 저온용으로는 사용하기가 적합하지 않다. 따라서 이러한 문제를 근본적으로 해결하기 위해서는 LED 튜브 램프 또는 LED 전구의 확산판(diffuser) 소재를 유백색 유리 또는 유백색 코팅유리로 대체하면 열 또는 자외선에 의한 변형이 없기 때문에 내구성을 증가시킬 수 있으며, 방열을 위해 사용하고 있는 알루미늄소재가 불필요하므로 제조 원가가 절감되어 LED 램프 시장이 보다 급속히 확장될 것으로 생각된다. 또한 수입품에 비하여 가격경쟁력이 생겨서 LED 튜브 램프 및 LED 전구의 수출이 증가할 것으로 기대된다. 또한 유리의 물리적 특성조절에 따라 투과율 및 반사율 제어를 통한 광학적 변화에 의해 다양한 감성조명의 실현이 가능하리라 판단된다[5].

본 연구에서는 LED 조명에 사용되는 기존의 Polycarbonate(PC) 재질의 광 확산판(light diffuser) 소재를 내열성이 좋고 화학적 내구성이 우수한 유리 재질로 대체하기 위하여 반투명 유백유리 조성의 개발, 성형 및 냉각 열처리 조건에 따른 특성을 측정하였다. 일반적인 유리는 투명성을 유지해야 하지만, 본 연구에서 개발하고자 하는 유리는 광원에서 나오는 직사광선에 의한 눈부심을 방지하고 적정하게 투과율을 조절하는 역할을 해야 하므로 반투명의 유백유리를 제조해야 하며, 따라서 조성별로 다양한 종류의 광특성에 대한 투과율 제어가 중요하다. 또한 화학 조성에 따라 유리의 열적, 물리적, 화학적 특성이 변화하므로 향후 제조 조건 및 사용조건에 맞도록 조성을 설계하는 것이 중요하다. 투명성을 갖는 일반적인 유리가 아닌, 불투명, 혹은 반투명 상태의 유리를 인위적으로 만드는 방법에는 두 가지가 있다. 하나는 비정질의 유리 조직 내에 미세한 결정을 생성시키고 이러한 결정입자가 성장되면서 빛의 투과를 막아서 투명성을 떨어뜨리는 결정성장(Crystal growth) 방법이며, 다른 하나는 유리원료로서 유탁제(opacifier)를 넣어 유리 내에 서로 잘 섞이지 않는 입자를 생성시킨 후 이런 입자가 분리되어 성장하면서 빛의 투과를 조절하는 상분리(Phase separation) 방법에 의한 것이다[6]. 유탁제에 의한 유백유리는 비정질의 유리 상태 내부에 존재하는 미립자에 의해 유백화를 하는 것으로, 유리 중에 굴절률을 달리하는 이물질의 미립자가 무수하게 존재하여 있으면, 유리를 통과하는 빛은 그 미립자에 의해 산란되어 그 결과 불투명 백색을 띠게 되며, 이와 같은 미립자

를 형성하기 위해 넣는 것이 유탁제(opacifier)이다. 유리 중에 들어 있는 미립자의 크기와 수에 따라 빛의 산란도가 다르기 때문에 같은 유백유리(opal glass)라 하여도 유백도에는 차이가 있다. 입자가 작고 수도 많은, 따라서 유백도가 큰 것을 opal, 입자가 크고 수가 적은 것을 alabaster라고 한다[7]. 본 연구에서는 광확산커버로 사용하기에 적합한 유리조성을 선정하여 이에 맞는 유리원료를 혼합한 후 용융유리를 제조 후 성형 및 냉각 열처리하는 과정에서 온도 변화에 따른 유백특성의 변화 및 그에 따른 열적 특성인 연화점과 열팽창계수를 측정하였고, 제조된 유리 샘플을 두께별로 가공하여 가시광선 투과율, 탁도(haze) 및 색차를 측정하여 분석함으로써 LED 조명 램프의 광확산판으로의 적용 가능성을 파악하였다.

## 2. 실험방법

본 연구에서 채택한 반투명 유백유리는 결정화에 의한 방법이 아닌 유탁제로 인한 상분리에 의한 유백화방법을 선택하였으며, 여기에 적용한 배합비는 Table 1과 같다. 종전에 식기유리 등에서 활용하던 유백유리 조성은 인산칼슘계와 불화물계로 나누어진다[8]. 최근 불소성분의 환경적인 문제로 인해 본 연구에서는 인산칼슘계를 택하여 유백유리 조성을 선정하였고, 그 원료로서  $\text{Ca}_3(\text{PO}_4)_2$ 를 사용하였다. 인산염계 유백유리의 경우, 인산칼슘( $\text{Ca}_3(\text{PO}_4)_2$ )을 넣어 규산염 유리를 용해하면 충분히 잘 섞이지 않기 때문에 인산염 유리의 미세한 입자가 유리 중에 분산된 형태로 유백화 한다.

Fig. 1에 도식된 실험 방법에 의해 배합비에 따라 원료를 조합한 후 혼합하여 알루미늄 도가니에 넣고 1550°C에서 약 2시간 용융하였다. 용융된 유리를 각각 다른 분위기 온도 조건에서 성형 및 냉각 열처리를 하여 유리 샘플을 제조하였다. 제조된 유리의 기본적인 열적 특성을 알아보기 위하여 TMA(thermomechanical analyzer: Q400, TA, USA)를 이용하여 열팽창계수를 측정하였고, 연화점 측정기(SP-3A, ORTON, USA)를 이용하여 연화

Table 1  
Batch composition of CPG

Raw materials	Main components	Batch composition (mol%)
Silica sand	$\text{SiO}_2$	79.8
Alumina	$\text{Al}_2\text{O}_3$	2.2
Calcium carbonate	CaO	7.7
Sodium sulfate	$\text{Na}_2\text{O}$	5.4
Potassium carbonate	$\text{K}_2\text{O}$	3.4
Calcium phosphate	$\text{P}_2\text{O}_5$	1.5
Total	-	100.0

\*CPG: Calcium Phosphate Glass.

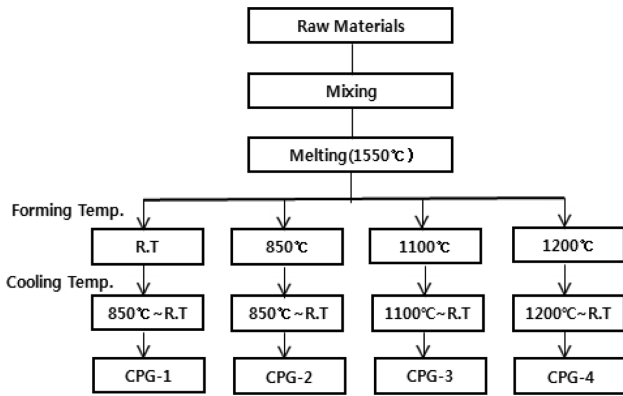


Fig. 1. Experimental procedure for preparing CPG samples.

점을 측정하였다.

또한 조명소재로서 가장 중요한 광학적 특성을 알아보기 위하여 유리시편을 두께별로 일정하게 경면연마한 후 UV/VIS/IR spectrometer(V570, JASCO, JAPAN)를 이용하여 가시광선 영역에서의 광투과율과 컬러좌표인 색도(chromaticity)를 측정하였고, haze meter(NDH 5000, NIPPON DENSHOKU, JAPAN)를 이용하여 탁도(haze)를 비롯한 확산투과율(diffuse transmittance), 평행광투과율(parallel transmittance), 총투과율(total transmittance) 등을 측정하였다.

아울러서 유백특성을 나타내는 유백유리의 표면미세구조를 확인하기 위하여 유백유리 시편을 5% 불산 용액에 15초 동안 담가 표면을 에칭한 후 FE-SEM(JEOL JSM-6700F, JEOL Korea)을 이용하여 관찰하였다.

### 3. 결과 및 고찰

#### 3.1. 성형 및 냉각 열처리 온도에 따른 유백특성

본 연구에서는 동일한 유백유리 조성의 용융유리가 성형 및 냉각온도 차이에 따라 어떤 유백특성을 나타내는지 알아보기 위해 Table 1에 나타난 것과 같은 유백유리 원료배치를 전기로에 넣어 1550°C에서 약 2시간 용융한 후 Fig. 1에서와 성형 및 냉각온도에 따라 각각 상온(R.T.: Room Temperature), 850°C, 1100°C, 1200°C로 4종류의 CPG(Calcium Phosphate Glass) 샘플을 제조하였고, 각각 CPG-1, CPG-2, CPG-3, CPG-4로 명명하였다. 용융유리를 전기로에서 꺼내어 상온의 분위기 상태에서 성형한 후 850°C 서냉로에서 냉각 열처리한 CPG-1의 경우, Fig. 3에서 나타난 바와 같이 국부적으로 유백화는 일어났지만 표면부의 급랭에 의한 내외부의 열이력 편차로 인해 유백화가 균일하지 않은 상태로 일어난 것을 확인할 수 있었다. 이 시편의 경우 Fig. 2에

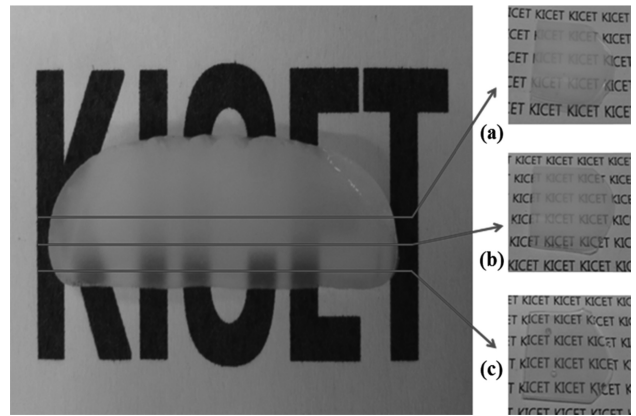


Fig. 2. Photographs of CPG-1 with position of sample. (a) Core part, (b) Intermediate part, (c) Outside part.

Table 2  
Optical properties of CPG-1 with position of sample

	Position of sample		
	Core	Intermediate	Outside
Haze	60.32	49.34	8.22
P.T <sup>1)</sup>	18.86	26.52	71.77
D.T <sup>2)</sup>	28.67	25.83	6.43
T.T <sup>3)</sup>	47.53	52.35	78.20

\* <sup>1)</sup> Parallel Transmittance, <sup>2)</sup> Diffuse Transmittance, <sup>3)</sup> Total Transmittance.

서 확인할 수 있듯이, 상온의 graphite mold에 고온의 용융유리를 부었을 때 mold와 접촉된 바깥 부분의 유리는 급랭이 되면서 유백화가 거의 나타나지 않았고, 내부로 가면서 중간부위와 안쪽의 코어(core) 부분들은 상대적으로 서냉이 일어나면서 유백화가 점진적으로 발생하는 것을 확인할 수 있었다. 부위별로 채취한 시편들의 광학적인 특성을 측정한 결과 Table 2에서 보듯이 냉각속도에 따라 급랭의 바깥부분, 중간부분, 안쪽중심부분으로 가면서 가시광선 투과율에서 78.20%, 52.35%, 47.53%로, Haze 특성에서 8.22%, 49.34%, 60.32%로 뚜렷한 경향성을 나타내는 것을 확인할 수 있었다. 또한 용융유리를 CPG-1에서와 같이 상온으로 꺼내어 성형하지 않고, 용융유리를 각각 850°C, 1100°C, 1200°C로 설정된 박스형 전기로 내부에서 고온 분위기 상태 하에 성형을 한 후 냉각 열처리하여 이에 따른 유백 특성의 차이를 확인하였다. 850°C에서 성형 후 냉각 열처리한 CPG-2에서는 Fig. 3에 나타난 바와 같이 균일하지 못한 유백 특성을 나타내는 유백유리 샘플이 얻어졌으며, 반면에 상대적으로 1100°C와 1200°C의 좀 더 높은 분위기 온도에서 성형 후 냉각 열처리한 CPG-3과 CPG-4의 경우 Fig. 3에서와 같이 비교적 균질하고 뚜렷한 유백색의 유리 샘플을 얻을 수 있었다. 따라서 유백유리의 유백화를 위해서는 제조공정상 유리조성 내에 함유된 유백입자들이 성

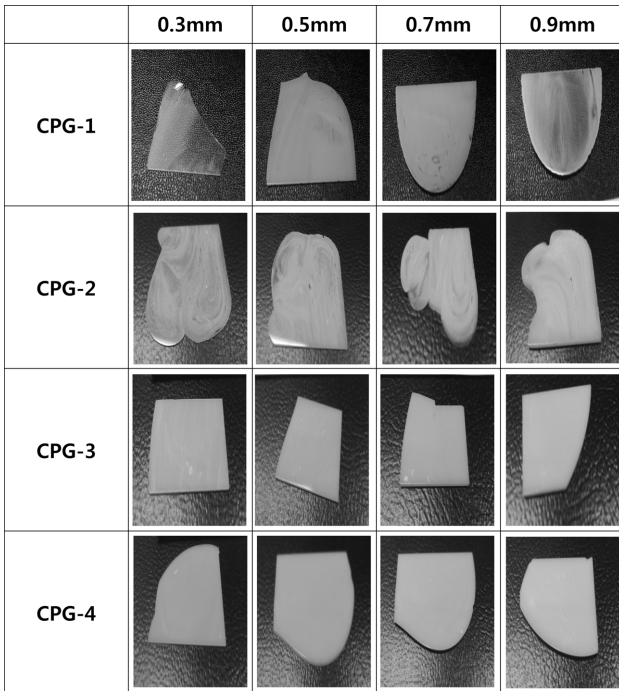


Fig. 3. Photographs of CPG samples.

형 후 냉각과정에서 충분히 성장할 수 있도록 1100°C 이상의 고온에서의 성형 및 서냉 열처리가 필요한 것으로 판단되었다.

3.2. 유백유리의 미세구조 특성

앞서 설명한 바와 같이 유백유리는 굴절률이 다른 2차 입자가 유리 매트릭스 내에 존재하면서 성장된 이들 입자가 광의 투과를 방해하여 반투명 유리를 생성하게 된다. 이러한 유백화 2차상의 입자는 용융 후 액상 상태에서 분리되어 모유리 상 내에 고르게 분포하면서 성장한다[9]. 유백화 2차상 입자는 보통 0.025에서 4.0 μm 크기를 나타내며, 상의 분리는 즉각적으로 나타나지만 입자 성장은 상대적으로 천천히 일어나는 것으로 보고되고 있다[10]. 전자현미경을 이용하여 유리 표면을 관찰하면 이러한 물방울 모양의 입자들이 있는 것을 관찰할 수 있는데, 이 물방울 모양의 입자들은 Na<sub>2</sub>O, BaO 또는 P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 성분이 분리되어 입자를 형성하는 것으로 알려져 있다[11]. 따라서 용융 후 성형 및 냉각 온도의 컨트롤이 균일한 유백화 특성에 큰 영향을 미친다는 것을 알 수 있다. 본 실험에서 제조된 CPG-3 시편을 5% 불산 용액을 이용하여 15초간 에칭한 후 FE-SEM을 이용하여 표면을 관찰한 결과 Fig. 4에서 보이는 바와 같이 0.5 μm 정도 크기의 물방울 모양의 입자들이 표면에 형성된 것을 확인할 수 있었으며, 이러한 형상은 미국 Corning사가 발표한 미국특허 4,309,218에 실린 사진과

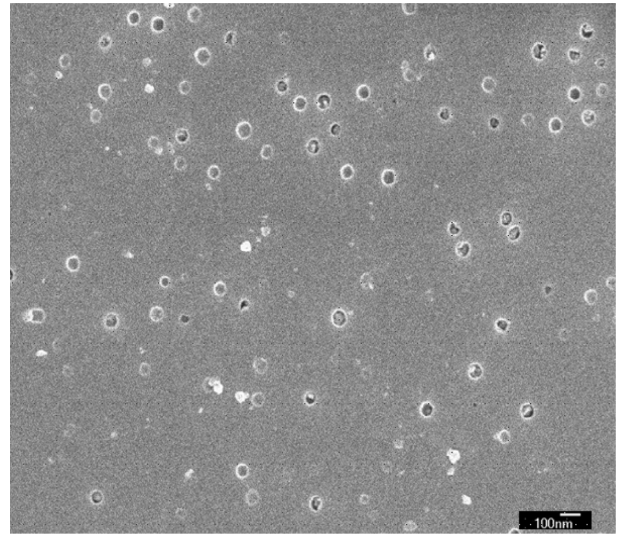


Fig. 4. FE-SEM image of CPG-3 sample.

거의 동일한 형상을 나타냄을 확인할 수 있었다[11]. 이렇듯 굴절률이 다른 물방울 모양의 입자들이 유리 내에 성장함으로써 유백색의 반투명한 유리가 생성되었음을 확인할 수 있었다.

3.3. 유백유리의 광투과율 특성

성형 및 서냉온도에 따른 유백특성의 차이를 정량적으로 파악하기 위하여 CPG-1, CPG-2, CPG-3, CPG-4의 각 시편을 두께별로 0.3 mm, 0.5 mm, 0.7 mm, 0.9 mm로 경면연마한 후 spectrophotometer를 사용하여 가시광선영역 파장에서의 광투과율을 측정하였으며, 시편의 표면특성을 감안하여 적분구투과율 모드를 채택하여 측정하였다. Table 3와 Fig. 6의 그래프에서 보는 바와 같이 CPG-1의 경우에는 가시광투과율에 있어서 두께별로 일정한 경향성을 나타내지 못했다. 이는 앞에서 언급했듯이 용융유리를 상온으로 꺼내어 낮은 분위기 온도에서 성형이 이루어지면서 유리표면이 급랭되었고, 또한 내외부의 열이력 편차로 인해 유백화가 균일하지 않은 상태

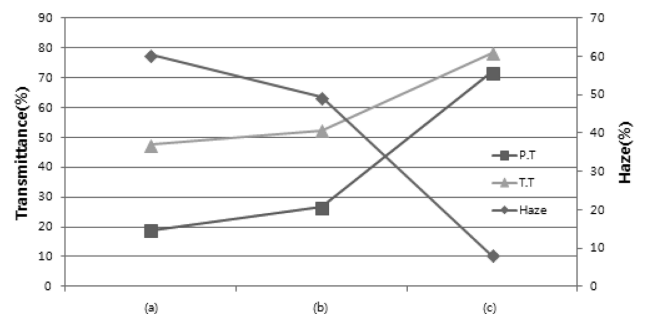


Fig. 5. Optical properties of CPG-1 with position of sample. (a) Core part, (b) Intermediate part, (c) Outside part.

Table 3  
Visible light transmittance of CPG samples

Sample name	Visible light transmittance (%)			
	0.3 mm	0.5 mm	0.7 mm	0.9 mm
CPG-1	77.1	56.0	47.2	59.2
CPG-2	65.0	53.6	47.2	43.1
CPG-3	60.9	50.9	44.9	41.1
CPG-4	56.4	48.6	42.6	37.7

로 일어났기 때문에 다른 시편에 비해 상대적으로 투과율 값은 높은 반면 시편의 두께에 따른 경향성을 나타내지 못했다. 반면에 좀 더 고온에서 성형이 이루어진 CPG-2, CPG-3, CPG-4 시편의 경우에는 가시광선 투과율이 37.7~65.0%의 값을 나타내어 반투명유리로서의 가시광투과율 특성을 나타내었으며, 특히 각각의 조성에서 두께가 증가함에 따라 광투과율이 일정하게 점차적으로 감소하는 뚜렷한 경향성을 나타내었다. 이는 유리 내의 유백화가 균일하게 형성되었다는 것을 나타내며, 향후 조명용 광 확산판(diffuser)으로서 필요한 광투과율 값을 유리의 두께만을 조절하여 설계할 수 있다는 면에서 매우 바람직한 광특성을 나타내고 있다고 판단된다.

3.4. 유백유리의 탁도(haze) 특성

조명용 광확산커버(lighting diffuser cover)로 사용되기 위해서는 광원으로부터 발생하는 직사광이 직접 전달되지 않아야 하고, 따라서 광원으로 인한 눈부심이 없어야 한다. 즉, 충분한 조도가 발휘될 수 있도록 광 확산판(diffuser) 소재가 일정 값 이상의 광투과율을 나타내되 직사광이 아닌 확산광이 투과될 수 있도록 높은 탁도(haze) 값을 나타내게 하는 것이 필요하다.

본 연구에서는 CPG-1, CPG-2, CPG-3, CPG-4 샘플을 탁도측정기(haze meter)를 사용하여 탁도(haze) 값을 비롯하여 총투과율(total transmittance), 확산투과율(diffuse transmittance) 및 평행광투과율(parallel transmittance)을 측정하였고, Table 4와 같은 특성 값을 얻을 수 있었다. 탁도(haze) 값은, 확산투과율(diffuse transmittance)을 총투과율(total transmittance)로 나누어 백분율로 표시한 값으로 나타나며, 값이 높을수록 직사광에 의한 투과 없이 확산광에 의한 산란광이 많다는 의미를 나타낸다. 따라서 탁도(haze) 값이 100%라는 것은 모든 투과광이 확산광에 의해 이루어진다는 것으로 조명용 확산소재로는 매우 바람직하다는 것을 나타낸다. 반면에 평행광투

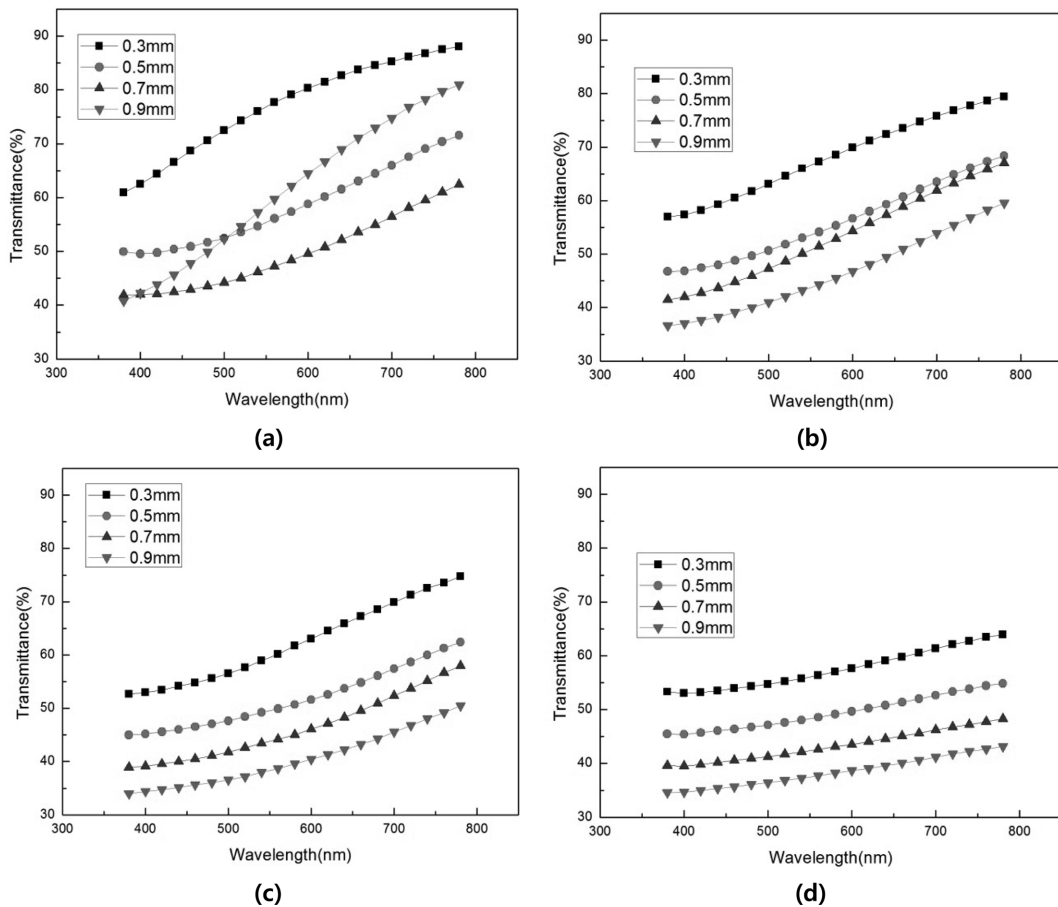


Fig. 6. Light transmittance of CPG samples. (a) CPG-1, (b) CPG-2, (c) CPG-3, (d) CPG-4.

Table 4  
Optical properties of CPG samples

	Thickness (mm)	Sample name			
		CPG-1	CPG-2	CPG-3	CPG-4
Haze (%)	0.3	14.05	44.02	53.71	82.32
	0.5	75.76	58.54	77.17	83.38
	0.7	77.23	71.25	77.96	83.48
	0.9	28.29	78.02	83.23	83.49
Parallel Transmittance (%)	0.3	66.50	36.14	28.22	10.51
	0.5	13.25	22.90	11.22	8.68
	0.7	10.87	13.96	10.26	7.65
	0.9	44.91	9.66	6.89	6.83
Total Transmittance (%)	0.3	77.37	64.56	60.96	59.46
	0.5	54.66	55.23	50.90	52.22
	0.7	47.73	48.56	44.94	46.31
	0.9	62.63	43.94	41.08	41.36

과율(Parallel transmittance)은 총투과율에서 확산투과율을 뺀 값으로 나타나며, 직사광에 의한 투과율을 의미하

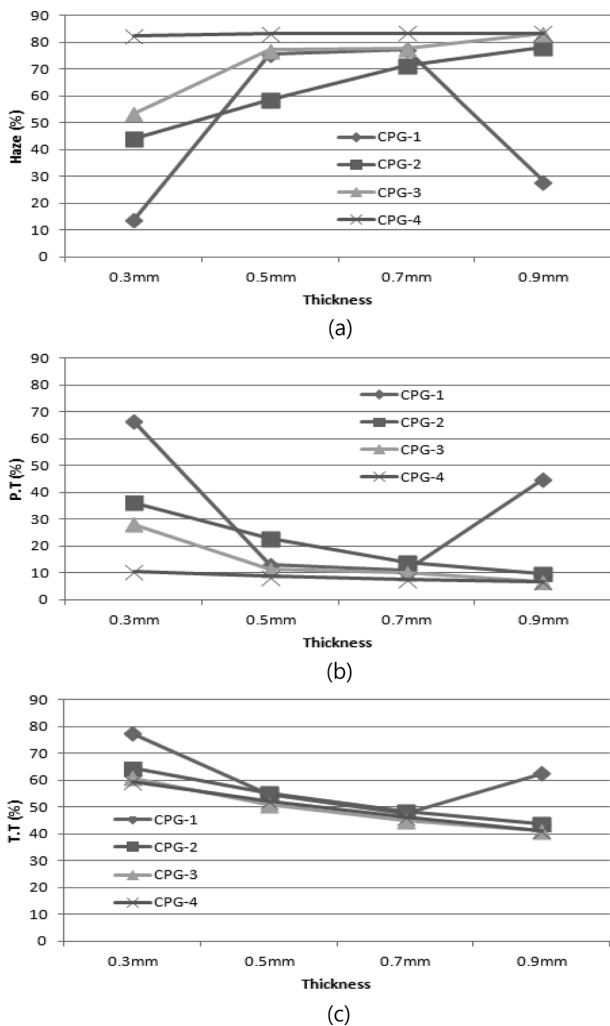


Fig. 7. Optical properties of CPG samples. (a) Haze, (b) Parallel transmittance, (c) Total transmittance.

므로 이 값이 높을수록 직사광에 의한 눈부심이 높아지므로 조명용 소재로는 적합하지 않다는 것을 의미한다. Table 4에서 보는 바와 같이, 상온에서 성형 후 850°C 서냉로에서 냉각 열처리한 CPG-1 유백유리에 있어서는 탁도(Haze) 값이 두께에 따라 14.05~77.23%, 평행투과율 값이 10.87~66.50%로 큰 범위 값을 나타냈고, 특히 0.3 mm, 0.9 mm 시편에 있어서는 탁도(Haze)값이 14.05%, 28.29%로서 조명용 광 확산판(diffuser) 소재로서는 매우 부적합한 특성치를 나타내었다. 그러나 성형 및 냉각 열처리 온도가 높아짐에 따라 탁도(Haze)의 증가 및 평행광투과율의 감소가 나타났으며, 성형 및 냉각 열처리 온도가 1200°C 이상인 CPG-4 유백유리 시편에 있어서는 탁도(Haze) 값이 80% 이상, 평행광투과율 값이 10% 이하를 나타내어 조명용 광 확산판(diffuser)으로서 양호한 광특성치를 나타내었다. 그리고 Fig. 7의 그래프에서 볼 수 있듯이 성형 및 냉각 열처리 온도가 1200°C 이상인 CPG-4에서는 모든 광학적인 특성 값이 두께와 상관없이 매우 안정된 경향성을 보이는 광학적 특성 값을 나타내었다.

### 3.5. 유백유리의 색도(chromaticity) 특성

일반적으로 착색유리(color glass)에서는 유리의 초기 컬러 선정 및 일정하게 재현성있는 컬러의 관리를 위해 색좌표(chromaticity diagram)에 의한 정확한 컬러 측정이 이루어지고 있다. 본 연구에서도 조명용 유백유리로서 일정한 컬러의 조명색을 나타내는 것이 본 소재의 중요한 특성의 하나이기 때문에 컬러특성을 분석하기 위해 spectrophotometer를 이용하여 각 시편들의 색좌표를 측정하였고, 이를 Fig. 8에 나타내었다. 그림에서 볼 수 있

Table 5  
Chromaticity of CPG samples

	Thickness	L*	a*	b*
CPG-1	0.3 mm	90.55	0.81	6.30
	0.5 mm	80.97	1.71	4.24
	0.7 mm	77.03	2.29	5.31
	0.9 mm	85.13	2.14	10.91
CPG-2	0.3 mm	84.89	1.54	7.03
	0.5 mm	76.54	2.16	5.72
	0.7 mm	72.78	2.78	6.18
	0.9 mm	69.78	2.46	6.39
CPG-3	0.3 mm	79.99	2.18	5.80
	0.5 mm	73.43	1.87	3.83
	0.7 mm	70.50	2.26	4.99
	0.9 mm	66.90	1.71	3.85
CPG-4	0.3 mm	78.00	0.96	2.31
	0.5 mm	73.24	0.82	2.32
	0.7 mm	69.29	0.74	2.43
	0.9 mm	63.53	0.70	2.60

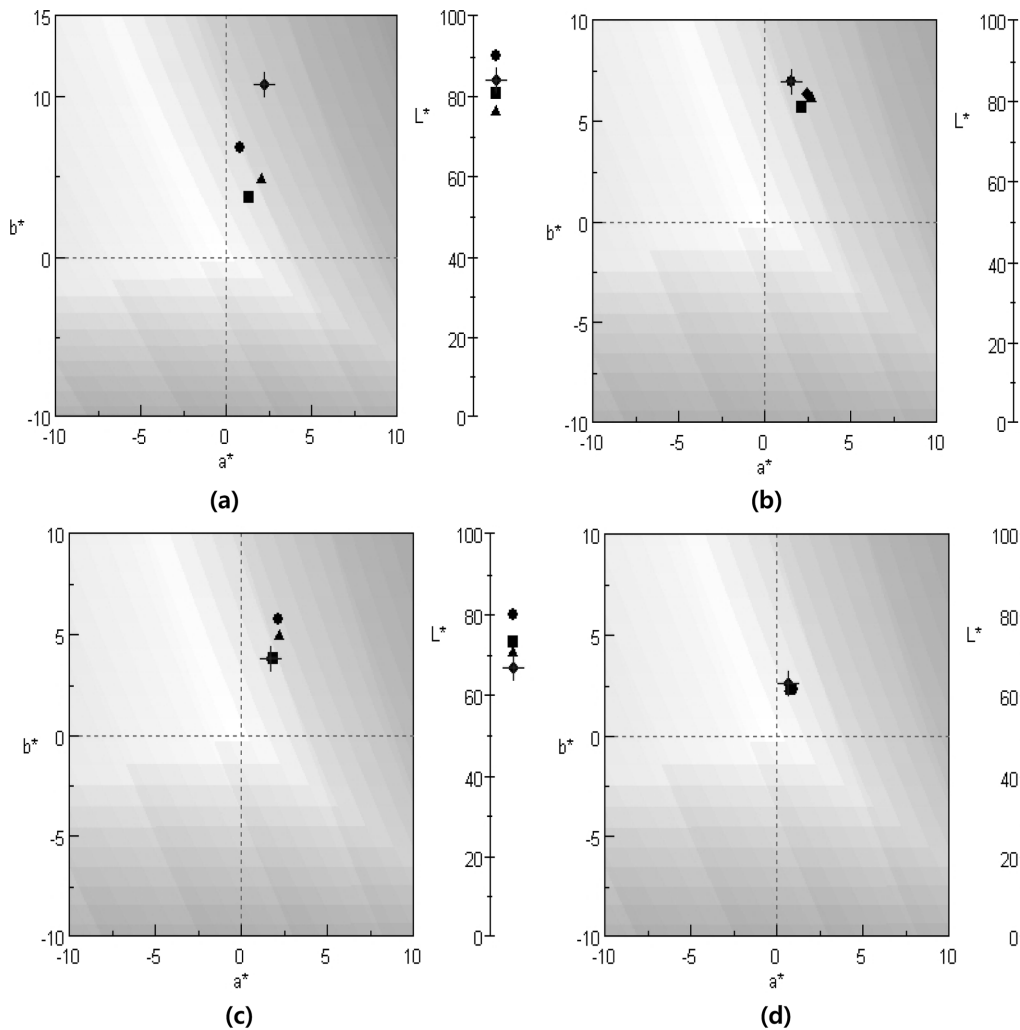


Fig. 8. Chromaticity of CPG samples.

듯이 CPG-1 샘플의 경우에는 두께에 따라 색좌표 값이 큰 편차를 보이면서 넓은 분포를 나타내었으나, 반면에 고온에서 성형 및 냉각 열처리한 샘플들에서는 두께에 따라 큰 편차 없이 비슷한 색좌표를 나타내는 것을 확인할 수 있었다. 특히 성형 및 냉각 열처리 온도가 높아질수록 색 좌표 값이 거의 순백색의 '0(제로)' 포인트에 가까워지는 것을 확인할 수 있었고, 두께에 따른 유리 시편들의 좌표값의 편차도 작아지는 것을 확인할 수 있었으며, 특히 CPG-4 시편의 경우에는 시편의 두께차이와 관계없이 거의 동일한 컬러 좌표 값을 나타내었다. 따라서 이들은 향후 균일한 컬러의 조명색을 나타낼 수 있는 조명용 광 확산판(diffuser) 소재로서도 양호한 특성을 갖추고 있다고 판단되었다.

3.6. 유리의 열적 특성

유리의 열적특성은 유리의 화학조성에 의해 직접적으로 좌우되는 특성으로서 소재의 물리적 특성평가뿐 만

Table 6  
Thermal properties of CPG samples

Sample name	Thermal expansion coefficient (°C)	Softening point (°C)
CPG-1	$5.726 \times 10^{-6}$	832
CPG-2	$6.242 \times 10^{-6}$	844
CPG-3	$6.309 \times 10^{-6}$	838
CPG-4	$6.352 \times 10^{-6}$	839

아니라 향후 제조공정조건을 결정하는 매우 중요한 데이터라고 볼 수 있다. 특히 본 연구의 목적이 LED 조명용 PC(polycarbonate) 광 확산판(diffuser) 소재가 갖고 있는 내열성의 문제를 해결하기 위한 대체소재로서 열적으로 안정된 유리소재의 개발 및 이를 토대로 개발된 유백유리의 향후 양산 가능여부에 대한 제조조건 검토도 필요하다고 판단되어, 본 실험을 통해 제조된 유백유리의 열팽창계수(thermal expansion coefficient)와 연화점(softening point)과 같은 열적 특성을 측정하였다. 유리의 열팽창곡선은 유리 조성에 따라 다르지만 측정되기 전의 열처리

에 의해서도 영향을 받는다[13]. 열팽창계수 측정 결과 상온 성형 후 850°C에서 열처리 한 CPG-1의 경우에는 열팽창 계수가  $5.726 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ 인 반면에 고온에서 성형 및 냉각 열처리 한 샘플의 경우에는 성형 및 냉각 열처리 온도가 높아질수록 열팽창계수 값이  $6.242 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ ,  $6.309 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ ,  $6.352 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ 로 조금씩 증가하는 것으로 나타났으나 그 차이가 작아서 거의 동일한 열팽창특성을 갖고 있다고 판단되었다.

일반적으로 유리에서는 열팽창계수가 작을수록 열적변화에 대한 내열충격성이 크며[14, 15], 내열충격성은 유리가 깨지는 온도차( $\Delta T$ )로 표시되고, 아래 식에서와 같이 표현된다[9].

$$\Delta T = \sigma(1 - \nu)/(E \cdot \alpha) \cdot S$$

( $\sigma$ : 파괴응력(인장강도),  $\nu$ : 푸아송비(Poisson's ratio),  $E$ : 영률(Young's modulus),  $\alpha$ : 선팽창계수,  $S$ : 시험편의 모양에 따라 달라지는 값)

일반 판유리 및 병유리에 적용되는 소다라임(soda-lime)계 유리의 경우 열팽창계수 및 내열충격온도가 각각  $9 \sim 10 \times 10^{-7}/^{\circ}\text{C}$ 와  $\Delta T$  60°C, 규산알루미늄유리(alumino-silicate)계 내열유리의 경우  $5 \sim 6 \times 10^{-7}/^{\circ}\text{C}$ 와  $\Delta T$  135°C, 파이렉스(pyrex)라고 불리는 붕규산(boro-silicate)계 내열유리의 경우  $3 \sim 4 \times 10^{-7}/^{\circ}\text{C}$ 와  $T$  180°C의 값을 나타낸다[12]. 따라서 본 실험에서 제조된 유백유리의 경우 열팽창계수가 규산알루미늄계유리와 비슷한 값을 나타내어  $\Delta T$  135°C 정도의 내열충격성을 가질 것으로 예상되어지며, 따라서 LED 조명등의 확산판(diffuser)으로서는 충분한 내열성을 나타낼 것으로 판단되었다.

또한 유백유리 시편의 연화점(softening point)을 측정 한 결과 인산칼슘의 투입량에 따라 조성별로 832~844°C의 값을 나타내었다. 유리에서의 연화점은 유리의 점도 값이  $10^{7.6}$  poise인 온도를 나타내는 값으로서 유리의 작업점(working point)과 함께 유리의 특성 및 제조공정을 결정하는 데 중요한 값으로 여겨진다[16]. 일반적으로 유리의 성형이 시작되는 점도를  $10^{3-4}$  poise, 성형이 완료되는 점도를  $10^7$  poise로 보고 있으므로 최소한 연화점 이상에서 성형이나 열가공이 완료되도록 공정조건을 맞추어야 한다. 타 조성 유리와 본 샘플의 연화점을 비교해 볼 때 일반소다라임 유리의 725~735°C에 비해서는 약 100°C 정도 높은 값을 나타냈으며, 일반적으로 저팽창 내열성유리에 적용되는 알루미늄실리케이트 유리의 연화점인 900°C에 비해서는 약 50°C 정도 낮은 값을 나타내어, 기 상용화제품의 공정조건 범위 내에 있음을 알 수 있었다. 따라서 향후 유백유리의 양산 제조에 있어서도 큰 공정상의 큰 문제는 없을 것으로 판단되었으며, 적용할 용융 및 성형공법에 맞춰 필요에 따라 양산공정

을 감안한 약간의 화학조성에 대한 조절도 충분히 가능 하리라 판단되었다.

## 4. 결 론

조명용 LED의 광확산커버(Lighting diffuser cover)로 사용하기 위한 인산칼슘계 반투명 유백유리의 조성개발 및 용융 후 성형과 냉각 열처리 과정에서 상분리 및 유백입자의 성장조건에 따른 유백 특성의 변화에 대해 연구를 진행하였다. 유백제로서 인산칼슘을 원료로 하여 배치를 조합하고 1,550°C에서 2시간 용융한 유리를 온도를 달리하여 상온 및 고온 분위기 상태 하에서 성형한 후 냉각 처리한 결과 온도조건에 따라 유백효과가 큰 차이를 나타내는 것을 알 수 있었다. 상온 성형 후 850°C에서 냉각처리한 유백유리에 비해 1200°C의 고온에서 성형 및 냉각처리한 유백유리가 유리 내에 인산칼슘 입자가 균일하게 성장하여 양호한 유백효과를 나타냄으로써 유백입자의 균일한 생성 및 성장을 위해 고온 분위기에서의 성형 및 냉각 열처리가 중요함을 확인 할 수 있었다. 이러한 조건에서 제조된 시편의 경우, 80% 이상의 높은 Haze 값과 10% 이하의 낮은 평행광투과율 값을 나타냄으로써 직사광투과에 의한 눈부심이 없이 조명용 LED 광확산커버에 적용 가능한 유백유리로서 매우 적합한 광특성을 나타내었으며, 특히 균일한 유백 컬러 특성과 함께 두께 차에 따라 일정한 경향성을 갖는 광투과율 특성을 나타냄으로써, 조명소재로서 필요한 광특성에 따라 적절하게 부품을 설계할 수 있는 우수한 특성의 유리질 광확산판 소재가 얻어졌다. 또한 유리의 열적특성을 측정 한 결과  $5.7 \sim 6.3 \times 10^{-7}/^{\circ}\text{C}$ 의 열팽창계수와 832~844°C의 연화점을 나타내어 상업적인 알루미늄실리케이트 내열유리와 유사한 열적특성을 나타냄으로써 LED 조명용 광 확산판으로서 충분한 열충격특성을 가짐과 동시에 glass tube나 bulb를 성형하는 데 있어 기존의 제조공법을 적용하는데 큰 어려움이 없으리라 예측되어 향후 양산 제조를 하는데도 별 문제가 없을 것으로 판단되었다. 따라서 향후 열처리 조건 및 유리의 두께에 따른 유백 특성 최적화 실험을 통해 기존의 polycarbonate 광 확산판을 대체할 수 있는 고내열, 고내구성을 갖는 최적의 유리질 광확산판을 상업적으로 개발하는데 있어서 충분히 적용이 가능한 소재가 개발되었음을 판단할 수 있었다.

## 감사의 글

이 논문은 2013년도 지식경제부 글로벌 전문기술개발

사업(정보통신)의 연구비 지원을 받아 수행된 것으로, 이에 감사드립니다.

## 참 고 문 헌

- [ 1 ] B.M. Jung and H.K. Jung, "Present condition and prospect of LED lighting technology", The Proceedings of the KIIIEE 20[1] (2006) 31.
- [ 2 ] H.W. Jang, "Trend in development of lighting source of high power LED", Bulletin of KIEEME 25[5] (2012) 3.
- [ 3 ] Y.M. Yu, "Materials and components of LED lighting for technical innovations", Korea Insitute for Advancement of Technology (2010) 14.
- [ 4 ] Electronics Infomation Center, "Technology and Patent of LED", Korea Electronics Tecnology Institute (2012) 12.
- [ 5 ] Y.M. Yu, J.H. Beck, N. Hwang, S.B. Song and Y.I. Choi, "The basics and applications of LED", Optical Sciences and Technology 11 (2007) 21.
- [ 6 ] B.H. Kim, "Glass technology", Chungmoon Gak (2009) 29.
- [ 7 ] T. Suzuki, "Data book of glass composition", The Glass Manufacturers'association in Japan (1991) 48.
- [ 8 ] Sumio Sakka, "Glass handbook", Asakura Publishing Co., Ltd. (1975) 295.
- [ 9 ] H.J. Jung, "Fusion ceramic materials (text book for high school)", Ministry of Education Science and Technology (2003) 42.
- [10] William H. Dumbaugh, James E. Flannery and George B. Hares, "Opal glass compositions", U.S. Patent, 3,661,601 (1969).
- [11] James E. Flannery, John L. Stempin and Dale R. Wexell, "Chemically durable phosphate opal glasses", U.S. Patent, 4,309,218 (1980).
- [12] H.J. Jung, "Fusion ceramic materials (text book for high school)", Ministry of Education Science and Technology (2003) 193.
- [13] Harold Rawson, "Properties and applications of glass", Daekwang Moonhwasa (1999) 77.
- [14] S. Kang, "Effect of modifiers on the properties of glass ceramics containing coal bottom ash", Journal of the Korean Crystal Growth and Crystal Technology 20(1) (2010) 53.
- [15] T.Y. Lim, S.S. Jung, J. Hwang and J.H. Kim, "A study on the fabrication of sodalime glass by using refused coal ore and its properties", Journal of the Korean Crystal Growth and Crystal Technology 20(1) (2010) 43.
- [16] B.H. Kim, "Glass Technology", Chungmoon Gak, (2009) 380.