

## Screening of SrO-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> Ternary System by Combinatorial Chemistry and QSAR

Jeong Gon Yoo, Jong Ho Back, Sang Ho Cho, and Kee-Sun Sohn<sup>†</sup>

Department of Materials Science and Metallurgical Engineering, Sunchon National University, Chonnam 540-742, Korea

(Received March 16, 2005; Accepted May 7, 2005)

### 조합화학과 QSAR를 이용한 SrO-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 3원계 청색형광체 개발

유정곤 · 백종호 · 조상호 · 손기선<sup>†</sup>

순천대학교 신소재공학부

(2005년 3월 16일 접수; 2005년 5월 7일 승인)

#### ABSTRACT

It is known that BaMgAl<sub>10</sub>O<sub>17</sub>:Eu<sup>2+</sup> (BAM) phosphors currently used have a serious thermal degradation problem. We screened SrO-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> system by a solution combinatorial chemistry technique in an attempt to search for a thermally stable blue phosphor for PDPs. A Quantitative Structure Activity Relationship (QSAR) was also obtained using an artificial neural network trained by the result from the combinatorial screening. As a result, we proposed a promising composition range in the SrO-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> ternary library. These compositions crystallized into a single major phase, Sr<sub>6</sub>BP<sub>5</sub>O<sub>20</sub>:Eu<sup>2+</sup>. The structure of Sr<sub>6</sub>BP<sub>5</sub>O<sub>20</sub>:Eu<sup>2+</sup> was clearly determined by *ab initio* calculation. The luminescent efficiency of Sr<sub>6</sub>BP<sub>5</sub>O<sub>20</sub>:Eu<sup>2+</sup> was 2.8 times of BAM at Vacuum Ultra Violet (VUV) excitation. The thermal stability was also good but the CIE color chromaticity was slightly poor.

**Key words :** PDP, Phosphor, Combinatorial chemistry, QSAR

#### 1. 서 론

PDP(Plasma Display Panel)용 청색형광체로서 BaMgAl<sub>10</sub>O<sub>17</sub>:Eu<sup>2+</sup>(BAM)은 매우 잘 알려져 있다.<sup>1-7)</sup> 하지만 sealing 과정에서의 열, 사용중 VUV 광자와 플라즈마에 의한 침식 때문에 열화현상이 발생하여 문제가 된다고 알려져 있다.<sup>8-11)</sup> BAM의 열화문제를 해결하기 위해 열화기구를 설명하려는 연구들이 계속 되고 있다.<sup>1-5)</sup> 최근 BaMgAl<sub>10</sub>O<sub>17</sub>:Eu<sup>2+</sup>(BAM)을 대체하기 위해 SrAl<sub>10</sub>SiO<sub>20</sub>:Eu<sup>2+</sup>(SAS)<sup>12)</sup>와 CaMgSi<sub>2</sub>O<sub>6</sub>:Eu<sup>2+</sup>(CMS)<sup>13)</sup>는 개발되었다. 하지만 여전히 SrAl<sub>10</sub>SiO<sub>20</sub>:Eu<sup>2+</sup>(SAS)는 열화문제가 존재하며 CaMgSi<sub>2</sub>O<sub>6</sub>:Eu<sup>2+</sup>(CMS)은 VUV 여기에서 휘도가 낮기 때문에 둘다 BaMgAl<sub>10</sub>O<sub>17</sub>:Eu<sup>2+</sup>(BAM)을 대체할만한 형광체로 부적절하다. 열적 안정성과 VUV 여기에서 발광효율이 모두 우수한 새로운 청색형광체가 필요하다.

본 연구에서는 새로운 PDP-용 청색 형광체를 개발하기 위해 대량 합성할 수 있는 용액 열분해법<sup>14-18)</sup>에 기초한 조합화학으로 SrO-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 3원계를 조사하였다. SrO-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 3원계 라이브러리를 준비하고 또 이 결과를 바

탕으로 fine-tuning을 하였다. 이러한 fine-tuning<sup>10)</sup> 3원계, 4원계의 새로운 물질을 개발하는데 있어서 효율적인 방법인 것은 이미 잘 알려져 있다.<sup>15-17)</sup> 본 연구에서는 QSAR (Quantitative Structure Activity Relationship)모델링을 도입하였다. QSAR는 조합 라이브러리결과에 기초한 ANN (Artificial Neural Network)으로 얻을 수 있다. 이는 발광휘도와 색순도를 조성에 대한 함수로 표현할 수 있는 기법이다. 본 연구에서는 조합화학과 QSAR를 이용하여 VUV 여기 조건에서 발광효율 면에서 가능성 있는 조성 범위를 발견하였다.

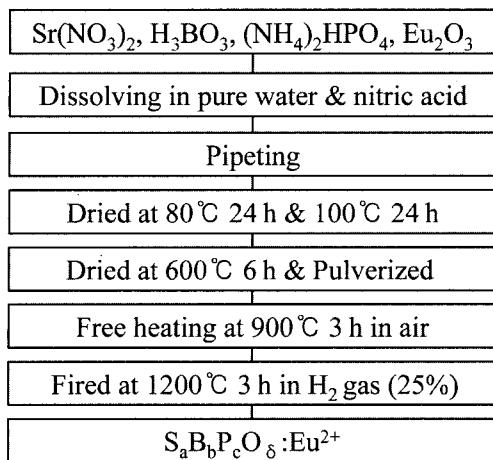
#### 2. 실험 방법

본 연구에서는 조합화학에 기초한 액상합성법으로 Eu<sup>2+</sup>가 도핑된 SrO-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 3원계 라이브러리를 구축하였다. Fig. 1은 조합화학을 이용하여 형광체를 제조하는 개략적인 공정도이다. 본 연구에서 사용한 시약은 일본 고순도 화학연구소의 Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(99.999%), Sr(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>(99.999%), H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub>(99.999%) 분말과 Aldrich Chemical사의 NH<sub>4</sub>H<sub>2</sub>PO<sub>4</sub>(99.999%)으로 질산(HNO<sub>3</sub>)과 중류수(H<sub>2</sub>O)에 용해시켜 용액을 만들었다. 3원계 조합화학을 위해 교육용 Visual Basic으로 직접 제작한 프로그램으로 각 조성별 용액량을 산출하고 각각의 용액을 12 m/l의 test tube에 micro pipet을

<sup>†</sup>Corresponding author : Kee-Sun Sohn

E-mail : kssohn@sunchon.ac.kr

Tel : +82-61-750-3557 Fax : +82-61-750-3550



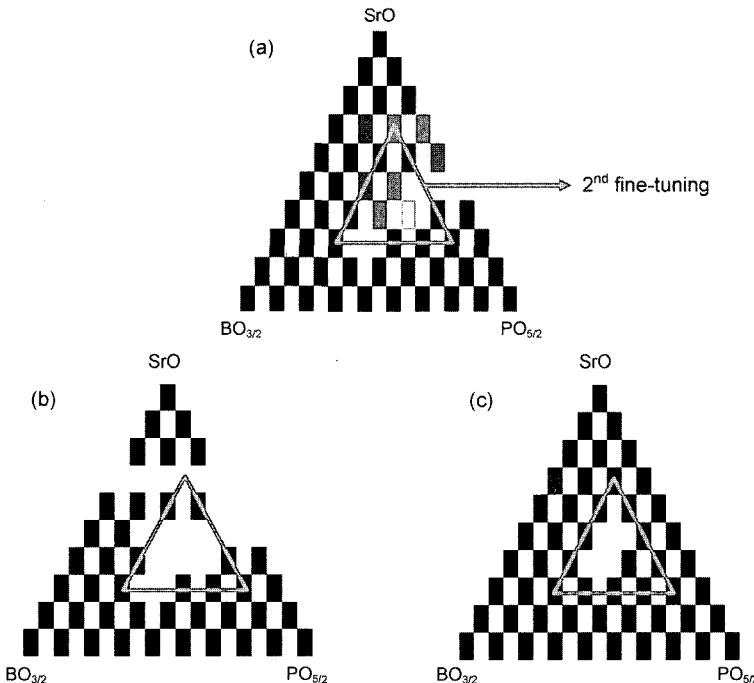
**Fig. 1.** Flow chart for sample preparation of the SrO-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> ternary library.

이용하여 정확한 양을 넣는다. 시료를 80°C의 dry oven에서 24 h, 100°C의 dry oven에서 24 h동안 건조하였다. 전기로에서 600°C로 6 h동안 2차 건조하였다. 그리고 건조된 분말을 분쇄하여 자체 개발한 조합화학용 합성용기(quartz container)에 옮겨 담아 대기중에서 900°C로 3 h동안 heating후 H<sub>2</sub>(25%) gas 분위기에서 1200°C로 3 h동안 환원 처리하여 형광체를 합성하였다. 이렇게 SrO-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 3원계를 screening한 후 그 중 특성이 우수한 부분을 2nd

screening을 하고 또 이 결과로부터 3rd screening을 하였다. 형광체의 발광특성은 제논 방전램프(xenon flash lamp)를 내장한 Perkin Elmer LS 50 spectrometer를 사용하여  $\lambda_{ex}=254$  nm로 측정하였다. 모든 시료를  $\lambda_{ex}=147$  nm로 측정하지 못했지만, 형광특성이 우수한 시료 몇몇을 뽑아  $\lambda_{ex}=147$  nm로 측정하여  $\lambda_{ex}=254$  nm와 비교하면 매우 유사하였다. VUV 영역에서의 여기 스펙트럼은 광원이 100 nm에서 UV 영역에 이르는 D2 lamp를 사용하고 초점거리가 20 cm인 UV/VUV emission/excitation monochromator와 PMT(Photomultiplier Tubes)를 사용하였다. 여기 스펙트럼은 sodium salicylate를 참고로 140~300 nm 범위에서 측정하였다. 그리고 휘도는 발광 스펙트럼의 면적값과 CIE 규정에 기초한 표준 광학 스펙트럼 효율 곡선으로 계산되었다.<sup>19)</sup> 잔광 곡선은 10<sup>-15</sup> sec의 Nd:YAG laser와 20 nsec의 해상력을 가진 CCD 센서로 측정한 time resolved emission spectra로 얻을 수 있었다. 조합화학 라이브러리에서 형광 특성이 우수한 몇 개의 시료를 선택하여 포항가속기 연구소의 Synchrotron Radiation X-Ray Diffraction(SR-XRD)으로 분석하여 결정성을 확인하였다.

### 3. 결과 및 고찰

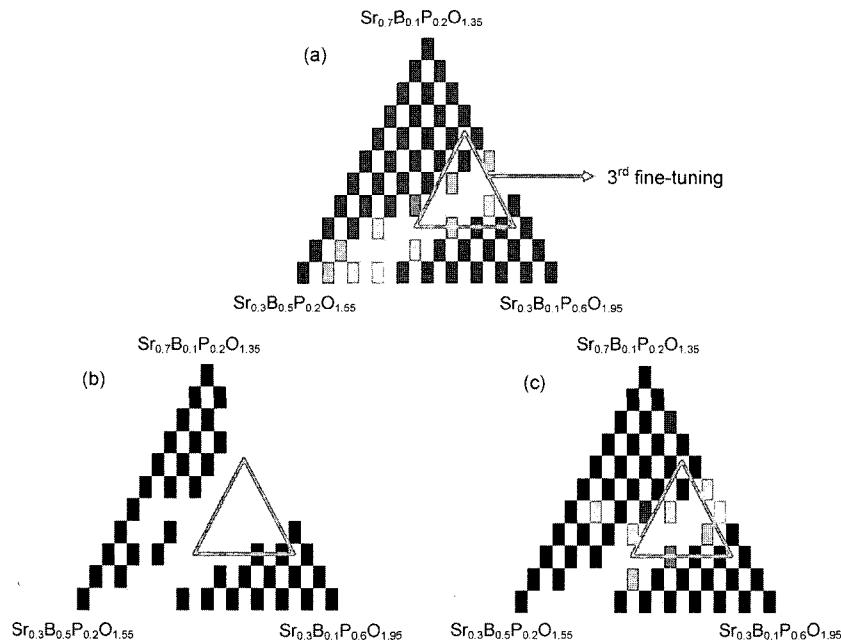
Fig. 2는 Eu<sup>2+</sup>가 도핑된 SrO-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 3원계를 1st screening한 것이다. Fig. 2(a)는 휘도도를 보여주고 (b)와



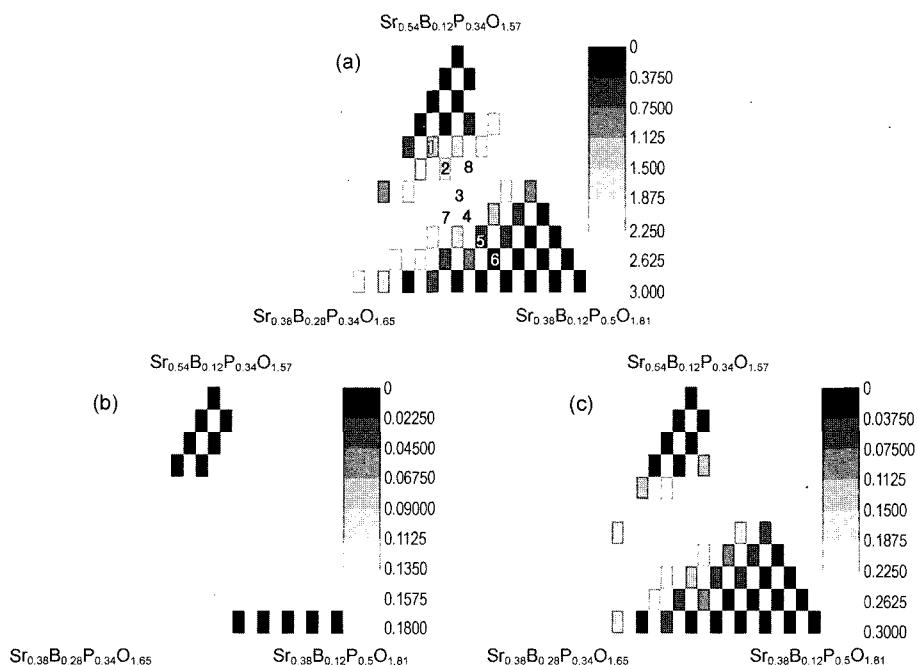
**Fig. 2.** Ternary combinatorial libraries of the first screening; (a) a term of luminance at the excitation light wavelength of 254 nm, (b) a term of the CIE chromaticity coordinate x at the excitation light wavelength of 254 nm, and (c) a term of the CIE chromaticity coordinate y at the excitation light wavelength of 254 nm.

(c)는 각각 색좌표의 x, y값이다. 회도와 색순도 모두 밝을수록 값이 큰 것을 의미한다. 2nd fine-tuning은 Fig. 2에서 보듯이 회도와 색순도 함께 고려하여 삼각형을 기본 조성으로 하는 3원계(ternary) 라이브러리를 screening

하였다. Fig. 3은 2nd fine-tuning의 (a)는 회도도, (b)와 (c)는 각각 색좌표의 x, y값이다. 여기서 사선의 밝은 영역을 명확하게 볼 수 있다. 그리고 2nd fine-tuning의 결과를 바탕으로 Fig. 3의 2nd fine-tuning 라이브러리의 내부

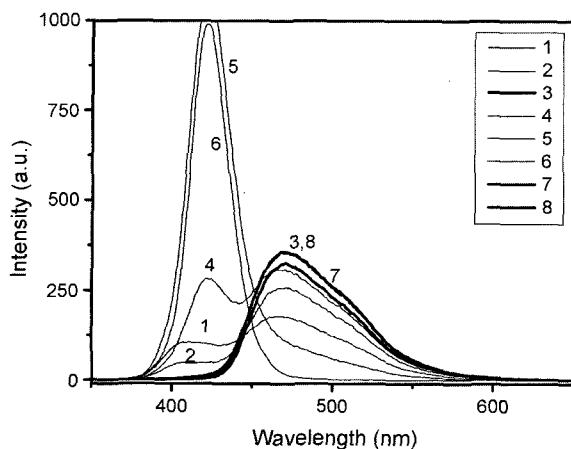


**Fig. 3.** Ternary combinatorial libraries of the second fine-tuning; (a) a term of luminance at the excitation light wavelength of 254 nm, (b) a term of the CIE chromaticity coordinate x at the excitation light wavelength of 254 nm, and (c) a term of the CIE chromaticity coordinate y at the excitation light wavelength of 254 nm.

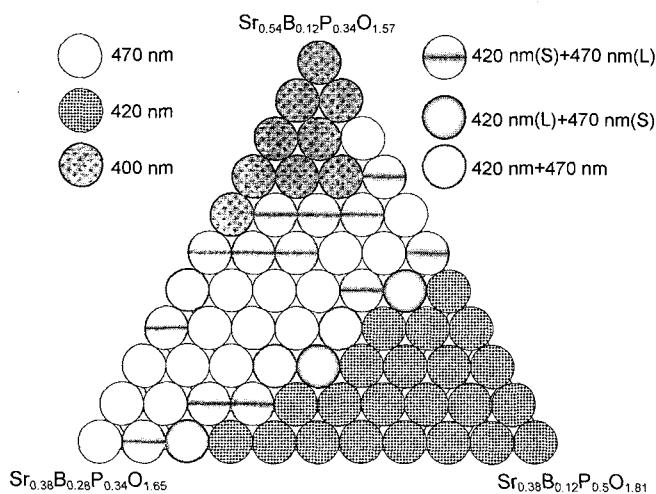


**Fig. 4.** Ternary combinatorial libraries of the third fine-tuning; (a) a term of luminance at the excitation light wavelength of 254 nm, (b) a term of the CIE chromaticity coordinate x at the excitation light wavelength of 254 nm, and (c) a term of the CIE chromaticity coordinate y at the excitation light wavelength of 254 nm.

에 작은 삼각형을 라이브러리로 하는 3rd fine-tuning을 조사하였다. Fig. 4에서 보듯 3rd fine-tuning 역시 사선의 밝은 영역과 어두운 영역이 명확하게 나누어진다. Fig. 5은



**Fig. 5.** Emission spectra of numbered samples taken out of the library of the final screening.

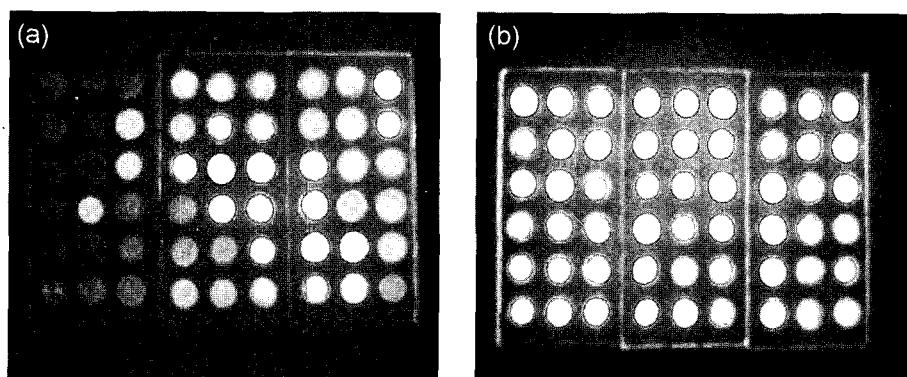


**Fig. 6.** The patterns of emission spectra of the third fine-tuning.

마지막 fine-tuning 라이브러리에서 대표적인 시료 8개의 발광 스펙트럼이다. 사선의 밝은 부분 주위의 시료(1,2,4,5,6) 발광 스펙트럼에서 407~420 nm의 제 2의 peak이 존재함을 알 수 있다. 이 제 2의 peak은  $\text{Sr}_3(\text{PO}_4)_2$ ,  $\text{Sr}_2\text{P}_2\text{O}_7$  등의 phosphate상 때문인 것으로 사료된다. 하지만 주목할 점은 고발광영역의 시료(3,7,8)의 발광 스펙트럼에서는 제 2의 peak이 존재하지 않는다. 밝은 사선 영역에서 멀어질 수록 제 2의 peak이 강해지고 시료 5,6처럼 완전히 벗어난 조성은 제2의 peak만이 존재한다. 이러한 시료의 양상을 Fig. 6에서 나타냈다. Fig. 6은 중심 peak 별로 조성도에 나타낸 것이다. Fig. 6에서처럼 밝은 사선의 고 발광 영역으로부터 아랫부분은 420 nm의 peak인 반면 윗부분은 400 nm의 peak이다. 마지막 라이브러리에서 보는 것처럼 우수한 발광성은  $0.41 < \text{Sr} < 0.48$ ,  $0.12 < \text{B} < 0.23$ ,  $0.39 < \text{P} < 0.42$ 의 조성 범위에 형성되어 있다. 우수한 발광영역을 나타내는 사선은 Sr, P의 조성의 변화보다는 B의 조성의 변화가 더욱 두드러진다. 다시 말하면 휘도면에서  $0.12 < \text{B} < 0.23$ 에서는 B이 발광성에 크게 영향을 주지 못한다. Sr/P와 Sr/B의 비가 중요하게 작용하는데 이는 각각  $1.1 < \text{Sr}/\text{P} < 1.2$ ,  $1.8 < \text{Sr}/\text{B} < 4$ 의 값이다.

고발광영역의 휘도는  $\text{BaMgAl}_{10}\text{O}_{17}:\text{Eu}^{2+}$ (BAM)의 휘도보다 2.5~2.8배가 우수하였다. 색좌표 x, y는 각각 Figs. 2, 3, 4의 (b)와 (c)에서 보여준다. 청색계열 색을 고려할 때 y값만을 다루는 것이 보통이다. 왜냐하면 x값은 표준 값 주변에 있기 때문이다. 마지막 fine-tuning 라이브러리에서 고발광 영역 조성의 y값은 0.25~0.28인데, National Television Standard Committee (NTSC)의 표준청색 값( $y=0.08$ )으로부터 크게 벗어나 있다. 오히려 제 2의 peak이 y값을 감소시켜 National Television Standard Committee(NTSC)의 표준청색 값( $y=0.08$ )으로 근접하게 한다. Fig. 7은 254 nm로 여기된 2nd fine-tuning, 3rd fine-tuning 라이브러리의 실제 사진이다.

만약 어떤 조성의 휘도를 일정한 함수로 표현할 수 있다면 실험의 효율성은 극대화 할 수 있을 것이다. 하지만



**Fig. 7.** The actual library photographed under the 254 nm excitation; (a) the second fine-tuning and (b) the third fine-tuning.

인간은 그러한 함수를 알 수 없고 아직까지 그런 함수도 존재하지 않는다. 하지만 어떤 실험적 결과값을 바탕으로 실험한 사이사이(실험하지 않은 조성)의 결과값을 예측할 수가 있다. 그 대표적인 것이 QSAR(Quantitative Structure Activity Relationship)이다. 조합화학 프로세스는 불연속적인 반면 QSAR는 연속적인 값으로 표현이 가능하다. 그리고 QSAR를 위한 보편적인 방법이 TANN(Trained Artificial Neural Network)이다.<sup>20-24)</sup> Fig. 8은 QSAR를 위한 ANN(Artificial Neural Network)의 구조를 간단히 나타낸다. QSAR는 전통적인 조합화학 프로세스로부터 얻은 screening 결과의 보다 쉬운 이해를 돋는 예비기구이다. Fig. 9는 TANN를 통한 2nd fine-tuning의 휘도를 재구성한 것이다. 여기서 보듯 우수한 발광 부분과 그렇지 못한 부분은 명확한 사선으로 알 수 있다. 최적부분은 붉은 색의 선으로 다음과 같은 식으로 표현이 가능하다.

$$Sr = 1.143P - 0.048 \quad (0.77 < Sr + P < 0.9, 0.1 < B < 0.23)$$

Fig. 4(a)에서 보는 것처럼 3rd fine-tuning의 대표적인 8

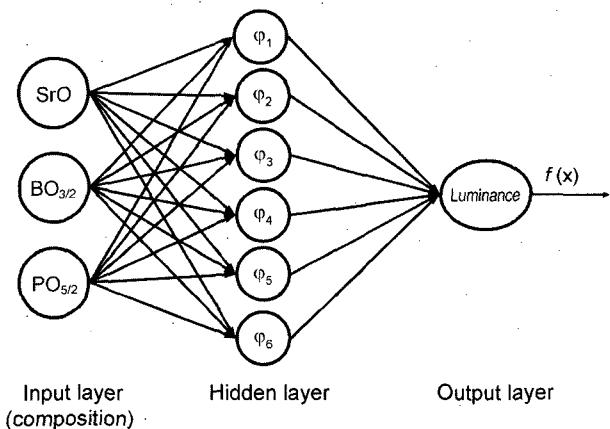


Fig. 8. Architecture of three-layered artificial neural network.

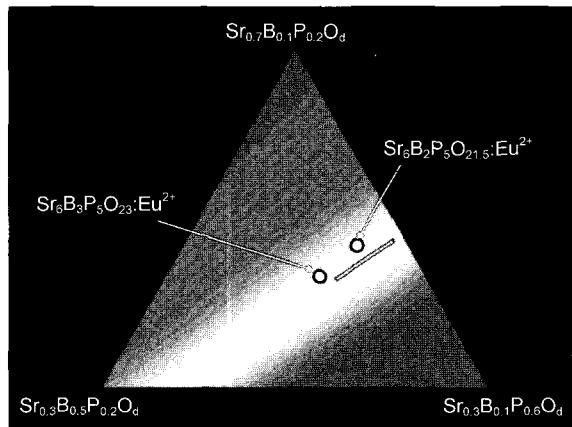


Fig. 9. Continuous luminance map constructed by the trained artificial neural network.

개 시료를 뽑아서 Inductively Coupled Plasma Atomic Emission Spectrometry(ICP-AES)뿐만 아니라 XRD를 이용한 구조분석을 하였다. ICP-AES를 통해 분석한 결과 Sr/P 원자 비는 1.15~1.19이었고, Sr/B 원자 비는 4.12~5.75였다. 이 범위에서 정수로 표현가능한 화학 조성을 살펴보면 Sr<sub>6</sub>BP<sub>5</sub>O<sub>20</sub>이 포함되어 있다. Fig. 10은 대표적인 시료 3의 XRD pattern이다. 이는 JCPDS 표준 데이터에 존재하지 않는다. 시료 3은 a=9.784, c=19.01의 격자상수를 가진 *I*4c2의 공간군에 주상이 존재하고 여기에 비해 무시될 만큼 양의 Sr<sub>3</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>가 포함되어 있음이 밝혀졌다. *ab initio* 계산에 의해 이 주상은 Sr<sub>6</sub>BP<sub>5</sub>O<sub>20</sub>로 결론 내렸다. Fig. 11은 Sr<sub>6</sub>BP<sub>5</sub>O<sub>20</sub>의 정확한 구조를 나타낸다. 그리고 이 구조는 Body Centered Tetragonal(BCT)이다. Sr<sub>6</sub>BP<sub>5</sub>O<sub>20</sub>:

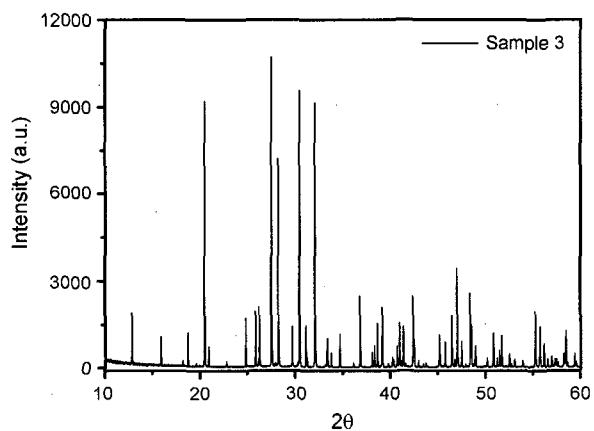


Fig. 10. XRD patterns of sample 3.

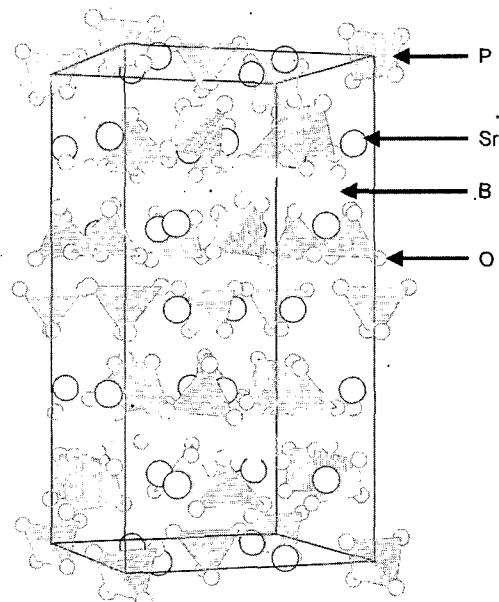


Fig. 11. The exact structure of Sr<sub>6</sub>BP<sub>5</sub>O<sub>20</sub> determined by *ab initio* calculation.

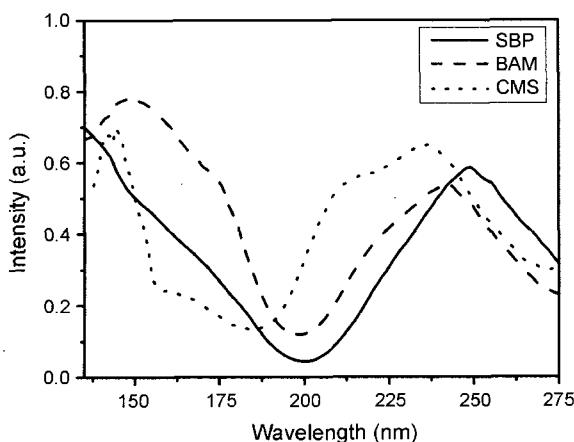


Fig. 12. Excitation spectra of SBP, CMS, and BAM.

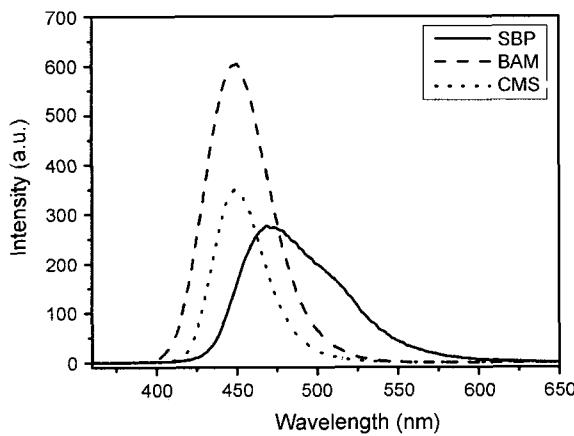


Fig. 13. Emission spectra of SBP, CMS, and BAM.

$\text{Eu}^{2+}$ 는 이미 1970년대에 high color 형광으로 사용되었고, 하지만 VUV 여기에서는 다루어 지지 못 했다. 따라서 본 연구에서  $\text{Sr}_6\text{BP}_5\text{O}_{20}:\text{Eu}^{2+}$ 의 구조를 규명할 때까지 어디에서도 완벽하게 해결하지 못 했다.

Fig. 12는  $\text{Sr}_6\text{BP}_5\text{O}_{20}:\text{Eu}^{2+}$ (SBP),  $\text{BaMgAl}_{10}\text{O}_{17}:\text{Eu}^{2+}$ (BAM),  $\text{CaMgSi}_2\text{O}_6:\text{Eu}^{2+}$ (CMS)의 VUV에서 여기 스펙트럼을 나타낸다.  $\text{BaMgAl}_{10}\text{O}_{17}:\text{Eu}^{2+}$ (BAM)은 상용이며  $\text{CaMgSi}_2\text{O}_6:\text{Eu}^{2+}$ (CMS)는 고장법으로 제조하였다. 이들 세 형광체 모두 VUV에서 147 nm 주변에서 강한 흡수영역을 가지고 있다. 이들 발광은 보통  $\text{Eu}^{2+}$ 의  $4f^65d^1 \rightarrow 4f^7$  전이 때문이다. Fig. 13의 발광 스펙트럼에서 보면 SBP가 가장 낮아 보인다. 하지만 표준 시감도 곡선을 고려하면 SBP의 발광효율은 BAM의 2.8배, CMS의 5배에 해당한다. 하지만 BAM이나 CMS의 중심 peak은 450 nm이지만 SBP의 중심 peak은 470 nm이다. 즉 색좌표가 다른데 BAM이나 CMS는  $x=0.145$ ,  $y=0.080$ 이고 SBP는  $x=0.144$ ,  $y=0.281$ 이다. 이들 형광체들의 Time Resolved Photoluminescence Behavior를 측정하였다. Fig. 14은 355 nm 여기에서  $\text{Sr}_6\text{BP}_5\text{O}_{20}:\text{Eu}^{2+}$

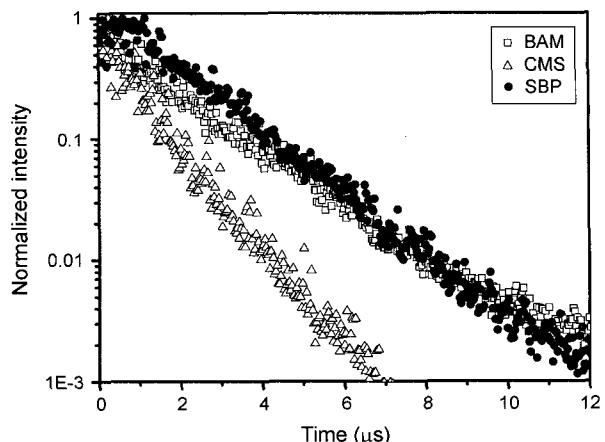


Fig. 14. Decay curves of SBP, CMS, and BAM.

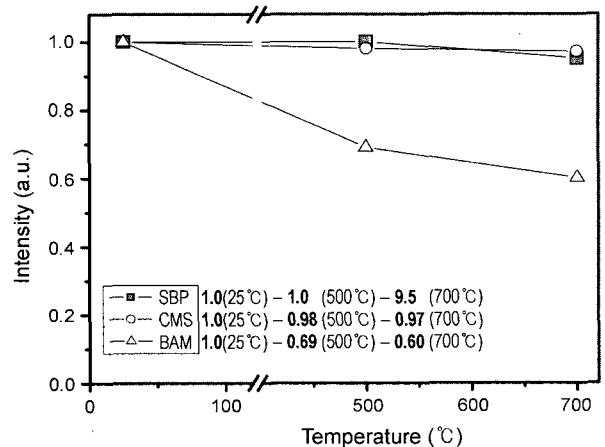


Fig. 15. Thermal degradation in terms of luminance of SBP, CMS, and BAM.

$\text{Eu}^{2+}$ (SBP),  $\text{BaMgAl}_{10}\text{O}_{17}:\text{Eu}^{2+}$ (BAM) 그리고  $\text{CaMgSi}_2\text{O}_6:\text{Eu}^{2+}$ (CMS)의 decay curve이다. 이들 곡선에서 1/10 decay time은 SBP=3.5 μs, BAM=3.2 μs, CMS=1.5 μs이다. Decay time이 상대적으로 CMS가 가장 짧다는 것을 알 수 있다. 그리고 이들의 샤프한 직선으로 볼 때  $\text{Eu}^{2+}$  이온간의 중요한 에너지 전이는 없다고 추측할 수 있다.

$\text{BaMgAl}_{10}\text{O}_{17}:\text{Eu}^{2+}$ (BAM)을 대체하기 위한 형광체로서 열적 안정성은 매우 중요하다. Fig. 15는 700°C까지의  $\text{Sr}_6\text{BP}_5\text{O}_{20}:\text{Eu}^{2+}$ (SBP),  $\text{BaMgAl}_{10}\text{O}_{17}:\text{Eu}^{2+}$ (BAM) 그리고  $\text{CaMgSi}_2\text{O}_6:\text{Eu}^{2+}$ (CMS)의 열화 실험이다. SBP와 CMS의 열적 특성은 BAM에 비해 훨씬 우수하다. BAM은 500°C에서 조차 30% 이상이 감소한 반면 SBP는 700°C에서도 5%만 감소하였다.

지금까지  $\text{Sr}_6\text{BP}_5\text{O}_{20}:\text{Eu}^{2+}$ (SBP)과  $\text{BaMgAl}_{10}\text{O}_{17}:\text{Eu}^{2+}$ (BAM)이나  $\text{CaMgSi}_2\text{O}_6:\text{Eu}^{2+}$ (CMS) 보다 휘도면이나 열적 안정성에서 훨씬 우수하다는 것을 살펴보았다. 이제  $\text{Sr}_6\text{BP}_5\text{O}_{20}:\text{Eu}^{2+}$ (SBP)의 색순도를 살펴보자. SBP의 색순도는 BAM에

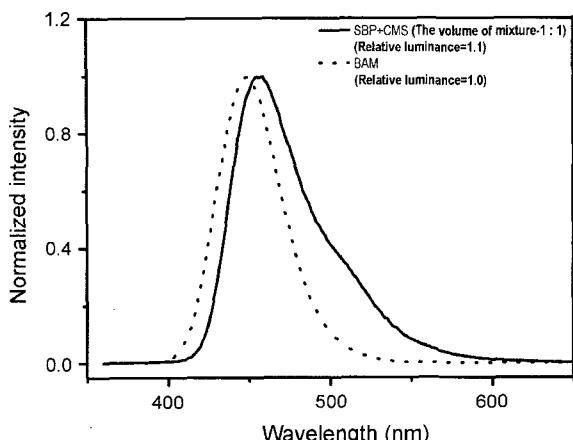


Fig. 16. Normalized emission spectrum of the SBP-CMS mixture along with BAM.

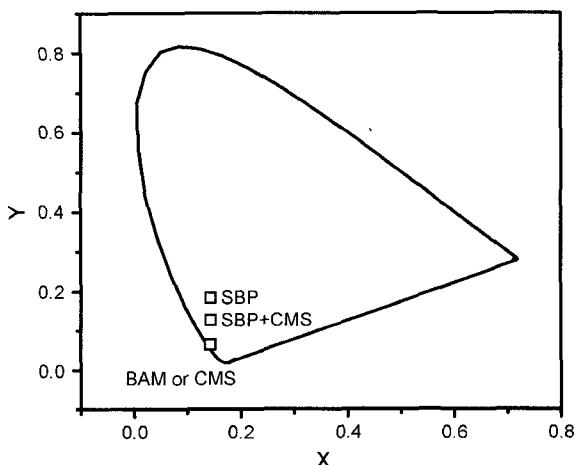


Fig. 17. The improvement of the CIE chromaticity coordinate y by the CMS mixing.

비해 매우 열악하다. 그래서 열적으로 안정한 CaMgSi<sub>2</sub>O<sub>6</sub>:Eu<sup>2+</sup>(CMS)와 Sr<sub>6</sub>BP<sub>5</sub>O<sub>20</sub>:Eu<sup>2+</sup>(SBP)를 혼합하는 시뮬레이션을 하였다. Fig. 16은 SBP와 CMS를 1:1의 부피비로 혼합한 것과 BAM의 발광성을 나타낸다. 이 혼합물의 휘도는 BaMgAl<sub>10</sub>O<sub>17</sub>:Eu<sup>2+</sup>(BAM)의 1.1배이고 혼합물의 색순도(x=0.145, y=0.170)는 향상되었다. Fig. 17은 SBP, SBP+CMS, BAM의 CIE 색도좌표에서의 위치를 보여준다. 비록 SBP+CMS의 색순도가 National Television Standard Committee (NTSC)의 표준 청색에 근접한 것은 아니지만, 이는 수용할만한 수준의 값이다. 만약 본 연구에서 CMS를 보다 우수하게 제조하여 이용하였다면 색순도와 휘도면에서 BAM을 훨씬 능가하는 혼합물을 만들 수 있었을 것이다.

#### 4. 결 론

액상합성법에 기초한 조합화학으로 Eu<sup>2+</sup>가 도핑된 SrO-

B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 3원계를 3차에 걸쳐서 screening을 하였다. 최적의 영역은 Sr=1.143P - 0.048(0.77 < Sr + P < 0.9, 0.1 < B < 0.23)였다. 그리고 screening 결과를 바탕으로 TANN (Trained Artificial Neural Network)를 통해 조성과 휘도의 관계를 알 수 있었다. 불연속적인 라이브러리를 QSAR (Quantitative Structure Activity Relationship)를 이용하여 연속적인 라이브러리로 향상 시켰고 VUV에서 고효율적이고 열적으로 안정한 SBP를 최적화하였다. SBP의 휘도는 BAM의 280%이고 열화는 700°C에서 조차 5% 감소로 미세하였다. 색순도가 열악한 점을 보완하기 위해 CMS와 혼합물을 제조하여 평가하였다. 이 혼합물의 색좌표는 x=0.145, y=0.170이며 휘도는 BAM의 110%였다. 따라서 혼합물(SBP+CMS)은 열적으로 안정하므로 색순도를 좀 더 향상하다면 BAM을 대체할 만한 형광체가 될 수 있다.

#### REFERENCES

- S. Oshio, T. Matsuoka, S. Tanaka, and H. Kobayashi, "Mechanism of Luminance Decrease in BaMgAl<sub>10</sub>O<sub>17</sub>:Eu<sup>2+</sup> Phosphor by Oxidation," *J. Electrochem. Soc.*, **145** 3903-08 (1998).
- S. Oshio, K. Kitamura, T. Shigeta, S. Horii, S. Matsuoka, S. Tanaka, and H. Kobayashi, "Firing Technique for Preparing a BaMgAl<sub>10</sub>O<sub>17</sub>:Eu<sup>2+</sup> Phosphor with Controlled Particle Shape and Size," *J. Electrochem. Soc.*, **146** 392-98 (1999).
- K. C. Mishra, M. Raukas, A. Ellens, and K. H. Johnson, "A Scattered Wave Model of Electronic Structure of Eu<sup>2+</sup> in BaMgAl<sub>10</sub>O<sub>17</sub> and Associated Excitation Processes," *J. Lumin.*, **96** 95-105 (2002).
- K.-B. Kim, Y.-I. Kim, H.-G. Chun, T.-Y. Cho, J.-S. Jung, and J.-G. Kang, "Structural and Optical Properties of BaMgAl<sub>10</sub>O<sub>17</sub>:Eu<sup>2+</sup> Phosphor," *Chem. Mater.*, **14** 5045-50 (2002).
- K.-S. Sohn, S. S. Kim, and H. D. Park, "Luminescence Quenching in Thermally-Treated Barium Magnesium Aluminate Phosphor," *Appl. Phys. Lett.*, **81** 1759-65 (2002).
- A. Ellens, F. Zwaschka, F. Kummer, A. Meijerink, M. Raukas, and K. Mishra, "Sm<sup>2+</sup> in BAM : Fluorescent Probe for the Number of Luminescing Sites of Eu<sup>2+</sup> in BAM," *J. Lumin.*, **93** 147-53 (2001).
- Y.-L. Liu and C.-S. Shi, "Luminescent Centers of Eu<sup>2+</sup> in BaMgAl<sub>10</sub>O<sub>17</sub> Phosphor," *Mater. Res. Bull.*, **36** [1-2] 109-15 (2001).
- B. Howe and A. L. Diaz, "Characterization of Host-Lattice Emission and Energy Transfer in BaMgAl<sub>10</sub>O<sub>17</sub>:Eu<sup>2+</sup>," *J. Lumin.*, **109** 51-9 (2004).
- T. Justel, H. Lade, W. Mayr, A. Meijerink, and D. U. Wiechert, "Thermoluminescence Spectroscopy of Eu<sup>2+</sup> and Mn<sup>2+</sup> Doped BaMgAl<sub>10</sub>O<sub>17</sub>," *J. Lumin.*, **101** [3] 195-200 (2003).
- K. Yokota, S.-X. Zhang, K. Kimura, and A. Sakamoto, "Eu<sup>2+</sup>-Activated Barium Magnesium Aluminate Phosphor for Plasma Displays-Phase Relation and Mechanism of

- Thermal Degradation," *J. Lumin.*, **92** [3] 223-27 (2001).
11. S. Oshio, T. Matsuoka, S. Tanaka, and H. Kobayashi, "Mechanism of Luminance Decrease in BaMgAl<sub>10</sub>O<sub>17</sub>:Eu<sup>2+</sup> Phosphor by Oxidation," *J. Electrochem. Soc.*, **145** [11] 3903-08 (1998).
  12. S. Kubota and M. Shimada, "Sr<sub>3</sub>Al<sub>10</sub>SiO<sub>20</sub>:Eu<sup>2+</sup> as a Blue Luminescent Material for Plasma Displays," *Appl. Phys. Lett.*, **81** 2749-54 (2002).
  13. J. Hao and M. Cocivera, "Luminescent Characteristics of Blue-Emitting Sr<sub>2</sub>B<sub>5</sub>O<sub>9</sub>Cl:Eu Thin-Film Phosphors," *Appl. Phys. Lett.*, **79** 740-45 (2001).
  14. K.-S. Sohn, J. M. Lee, and N. Shin, "A Search for New Red Phosphor Using Computational Evolutionary Optimization Process," *Adv. Mater.*, **15** [22] 2081-87 (2003).
  15. K.-S. Sohn, I. W. Zeon, H. Chang, S. K. Lee, and H. D. Park, "Combinatorial Search for New Red Phosphors of High Efficiency at VUV Excitation Based on the YRO<sub>4</sub> (R =As, Nb, P, V) System," *Chem. Mater.*, **14** 2140-45 (2002).
  16. K.-S. Sohn, J. M. Lee, I. W. Jeon, and H. D. Park, "Combinatorial Searching for Tb<sup>3+</sup>-Activated Phosphors of High Efficiency at Vacuum UV Excitation," *J. Electrochem. Soc.*, **150** H182-87 (2003).
  17. C. H. Kim, S. M. Park, J. G. Park, H. D. Park, K.-S. Sohn, and J. T. Park, "Combinatorial Synthesis of Tb-Activated Phosphors in the CaO-Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> System," *J. Electrochem. Soc.*, **150** H183-89 (2002).
  18. S. Y. Seo, K.-S. Sohn, H. D. Park, and S. Lee, "Optimization of Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Based Red Phosphors Using Combinatorial Chemistry Method," *J. Electrochem. Soc.*, **149** H12-8 (2002).
  19. S. Shionoya and W. M. Yen, "Phosphor Handbook", CRC press, Boca Raton, 623-36 (1999).
  20. T. Hattori and S. Kito, "Neural Network as a Tool for Catalyst Development," *Catal. Today*, **23** [4] 347-52 (1995).
  21. M. Sasaki, H. Hamada, Y. Kintaichi, and T. Ito, "Application of a Neural Network to the Analysis of Catalytic Reactions Analysis of NO Decomposition over Cu/ZSM-5 Zeolite," *Appl. Catal. A*, **132** [2] 261-65 (1995).
  22. Z.-Y. Hou, Q. Dai, X.-Q. Wu, and G.-T. Chen, "Artificial Neural Network Aided Design of Catalyst for Propane Ammonoxidation," *Appl. Catal. A*, **161** 183-87 (1997).
  23. Y. Watanabe, T. Umegaki, M. Hashimoto, K. Omata, and M. Yamada, "Optimization of Cu Oxide Catalysts for Methanol Synthesis by Combinatorial Tools Using 96 Well Microplates, Artificial Neural Network and Genetic Algorithm," *Catal. Today*, **89** [4] 455-61 (2004).
  24. U. Rodemerck, M. Baerns, M. Holena, and D. Wolf, "Application of a Genetic Algorithm and a Neural Network for the Discovery and Optimization of New Solid Catalytic Materials," *Appl. Surf. Sci.*, **223** [1-3] 168-74 (2004).