

# 상업용 유리프릿의 소결 공정을 이용한 내수성을 갖는 CsPbBr<sub>3</sub>/Glass 세라믹 복합체의 제작

문나은 · 김성훈<sup>†</sup>

동의대학교 공과대학 응용화학과

## Simple Fabrication of Green Emission and Water-Resistant CsPbBr<sub>3</sub> Encapsulation Using Commercial Glass Frits

Na-eun Mun and Sunghoon Kim<sup>†</sup>

Department of Applied Chemistry and Food Science Technology, Dong-Eui University,  
Busan 47340, Republic of Korea

(Received January 2, 2021 : Revised January 7, 2021 : Accepted January 8, 2021)

**Abstract** In this work, narrow-band green-emitting CsPbBr<sub>3</sub> particles are embedded in commercialized glass composites by a facile dry process. By optimizing the method through sintering in glass frit (GF) composites including CsBr and PbBr<sub>2</sub>, used as precursors, the encapsulation of CsPbBr<sub>3</sub> particles made them waterproof with green fluorescence. To improve the fluorescent properties by reducing aggregation of CsPbBr<sub>3</sub>, fumed silica (FS) is additionally used to help particles avoid bulking up in the glass matrix. The CsPbBr<sub>3</sub> perovskite/glass composites are characterized using scanning electron microscopy (SEM) images and energy-dispersive X-ray spectroscopy (EDS) maps, which support the existence of CsPbBr<sub>3</sub> particles in the glass matrix. The photoluminescence (PL) properties demonstrate that the emission spectrum peak, full width at half maximum (FWHM), and photoluminescence quantum yield (PLQY) values are 519 nm, 17 nm, and 17.7 %. We also confirm the water-resistant properties. To enhance water/moisture stability, the composite sample is put directly into water, with its PLQY monitored periodically under UV light.

**Key words** perovskite/ceramic composite, CsPbBr<sub>3</sub>, phosphor in glass, sintering process.

### 1. 서 론

일반적인 유무기 금속-할라이드 페로브스카이트 소재는 ABX<sub>3</sub>(A=유기 또는 무기 1가 양이온, B=2가 금속 양이온, X=Cl, Br, I) 화학식을 가지며 높은 광 흡광계수와 캐리어 이동도(high optical absorption coefficient and carrier mobility), 긴 전자 확산 거리(long electron diffusion length), 낮은 엑시톤 결합 에너지(low excitation binding energy) 등 우수한 광전자 특성 때문에 태양전지,<sup>1-3)</sup> light-emitting diode,<sup>4-6)</sup> 광 검출기,<sup>7,8)</sup> 습도센서<sup>9)</sup> 등 광전소재 및 소자 영역에서 폭넓게 연구되며 많은 주

목을 받고 있다. 또한, 할라이드 페로브스카이트의 밴드 갭 구조에서 보여주는 좁은 방출 파장 대역폭(narrow emission bandwidths)과 높은 양자 효율(quantum yields), 그리고 할로젠화 음이온의 상이한 조성비에 따라서 밴드갭이 제어되는 광 전기적 특성들은 디스플레이용 발광소자의 연구적, 산업적 관심을 불러일으키기에 충분하다. 한편, A-site에 유기 양이온이 치환된 유무기 하이브리드 타입 대비 Cs 1가 양이온을 적용한 무기 페로브스카이트 소재는 열적 안정성이 우위에 있다는 사실이 이미 보고되었다.<sup>10-13)</sup> 그럼에도 불구하고, 금속-할라이드 페로브스카이트 소재는 외부의 공기, 습도, 빛의 노출에 대

<sup>†</sup>Corresponding author

E-Mail : hoon@deu.ac.kr (S. Kim, Dong-Eui Univ.)

© Materials Research Society of Korea, All rights reserved.

This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.


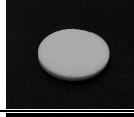
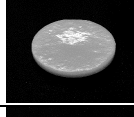
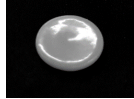
해 비교적 낮은 안정성으로 그 특성에 심각한 열화 현상이 나타난다. 특히, 원자 간 이온결합성을 갖는 특성 때문에 수분 및 극성 용매에 매우 취약하여 ion migration에 의한 구조적 분해가 쉬운 특징을 가지고 있다.<sup>14,15)</sup> 최근 수년간 금속-할라이드 페로브스카이트 소재의 수분 및 공기 취약성을 극복하기 위해 세라믹 소재를 모재로 응용한 다양한 시도와 뚜렷한 발전이 있었다. 메조포러스 실리카를 사용하고 CsPbX<sub>3</sub> quantum dot (QD)을 흡착하여 음이온 교환을 막음으로써 안정성을 높일 수 있는 나노복합체가 보고되었고,<sup>16,17)</sup> 3-aminopropyl triethoxysilane의 가수분해를 통해서 페로브스카이트 QD/silica 나노복합체를 합성하여 공기 노출로부터의 안정성이 크게 향상되었다.<sup>18)</sup> 한편, melt-quenching법을 이용하여 세라믹 매트릭스에 페로브스카이트 QD를 직접 매립시킴으로써 페로브스카이트 나노 결정이 수분과 공기에 의해 열화되는 현상을 최소화하는 것이 가능했다. 인산염 유리에 매립된 CsPbBr<sub>3</sub> QD는 2016년 Zhao 그룹에서 처음 공개된 이후로 안정성과 광특성을 개선하기 위해 유리 매트릭스 기반으로 CsPbX<sub>3</sub> QD복합체 형태의 다양한 시스템들이 보고되었다.<sup>19-22)</sup> 이와 같이 앞서 보고된 연구 결과를 통해서 CsPbX<sub>3</sub> 입자가 유리 매트릭스에 내장될 때 더 나은 화학적 안정성과 금속-할라이드 페로브스카이트 고유의 광학적 특성을 보인다는 결론을 쉽게 도출할 수 있다.

본 연구에서는 선행연구들을 바탕으로 CsPbBr<sub>3</sub>의 전구체인 CsBr와 PbBr<sub>2</sub>를 용매를 전혀 사용하지 않고 유리 매트릭스 내에서 재결정(recrystallization)하여 CsPbBr<sub>3</sub>/Glass 복합체를 얻고자 하였다. 따라서, 약 650 °C 이하의 저온 소결이 가능한 상용화 유리 프릿(glass frits)과 CsPbBr<sub>3</sub> 전구체를 종래의 phosphor in glass (PIG)<sup>23,24)</sup> 소결 공정에 적용하여, 용융-급랭-어닐링(annealing)-냉각 과정을 거쳐야 하는 다소 복잡한 melt-quenching법을 간소화하고 녹색 형광 특성과 내수성을 확보할 수 있는 CsPbBr<sub>3</sub>/glass 복합체 제작 연구를 진행하였다.

## 2. 실험 방법

본 연구에 사용된 출발 원료들은 세슘(I)브로마이드(CsBr, 99.9%)의 경우 Alfa Aesar, 납(II)브로마이드(PbBr<sub>2</sub>, 99%)는 Kojundo korea, 폼드 실리카(fumed silica, aggregated particle size: 0.2 ~ 0.3 μm)는 sigma aldrich, 그리고 Zn-B-Al-Si계 glass frit (GF)는 Ferro (product code: EG 3046)에서 구매하여 사용하였다. CsBr와 PbBr<sub>2</sub> 적용에 앞서, 모재인 GF의 소결 온도 조건을 Table 1과 같이 검증하여 승온 속도 분당 10 °C, 소결 온도 650 °C, 유지 시간을 10분으로 선정하였다.

**Table 1.** The investigation of sintering temperature on GFs

Sample No.	GF (g)	Temperature (°C)	Time (min)	Sample Image
1		590		
2		610		
3	0.9	630	10	
4		650		

재결정에 의한 벌크(bluk) CsPbBr<sub>3</sub> 구조 형성을 최소화하기 위해 fumed silica (FS), CsBr, PbBr<sub>2</sub> 혼합분말과 GF의 다양한 혼합비 테스트를 통해서 녹색 형광 특성과 소결 완성도가 높은 CsPbBr<sub>3</sub>/Glass 복합체를 얻고자 하였다. 도출된 실험 방법은 다음과 같다. GF 15 g에 CsBr (0.32 g, 1.5 mmol)와 PbBr<sub>2</sub> (0.55 g, 1.5 mmol)을 1:1비율로 고정하여 투입하고 알루미늄 유발에서 20분동안 1차 그라인딩 후, 이 혼합물 0.9 g에 FS (0.1 g)을 투입하여 10분 동안 2차 그라인딩을 진행하였다. 그리고, 이 혼합 분말을 17 Φ 크기의 스테인레스 몰드를 이용하여 프레스(1 t) 장비로 눌러 성형체를 얻었다. 최종적으로 분말 성형체를 전기로(Hantech C-22p)에 넣어 650 °C에서 10분 유지 후 서냉하는 소결 조건으로 시료를 제작하였다.

CsPbBr<sub>3</sub>/Glass 복합체의 광특성은 절대 양자효율 측정장비(absolute quantum yield measurement system, hamamatsu C9920-03)의 Xe 램프(450 nm)를 여기 광원으로 사용하여 photoluminescence (PL), full width at half maximum (FWHM), photoluminescence quantum yield (PLQY)를 평가하였고, 유리 매트릭스에 매립된 CsPbBr<sub>3</sub> 입자는 SEM (hitachi SU-70) 및 EDS mapping 분석을 통해서 확인하였다. 또한, 시료의 내수성 성능을 검증하기 위해서 CsPbBr<sub>3</sub>/Glass 복합체 시료를 물속에 완전히 잠기게 하여 PLQY를 측정치와 자외선(365 nm)을 조사한 형광 이미지를 시간에 따라 모니터링하였다.

## 3. 결과 및 고찰

선행연구 결과들에 따르면 CsPb(Br,I)<sub>3</sub> 나노결정이 매립된 세라믹 복합체는 주요한 3가지 열처리 경로를 갖는 melt-quenching 공정을 통해서 얻어진다. 첫째, 모재

의 용융점 즉, 유리와 페로브스카이트 전구체 혼합 분말이 약 1,000 °C 이상에서 용융 이후, 캐스팅(casting) 된다. 둘째, 잔류 열적 스트레스를 해소하는 어닐링이 진행되는 이 두가지 과정에서 페로브스카이트 결정이 석출된다. 마지막으로 유리전이온도(약 420 ~ 460 °C) 대역에서 정교하게 조절된 열처리 온도와 장시간(약 10시간)에 걸친 유지시간을 통해 비로소 고온에서 안정한 입방정계 구조의 페로브스카이트가 형성된다. 이렇게 얻어진 페로브스카이트/세라믹 복합체는 여기 광원의 흡수 파장, PL, FWHM의 특성들이 용액 공정에 의해 합성된 페로브스카이트 QD에서 나타나는 광특성들과 매우 유사하다. 유리 매트릭스에 매립된 페로브스카이트 입자의 크기는 보고된 문헌에 따라 수 나노미터부터 수백 나노미터까지 상이하지만 입자 표면에 유기 리간드가 없음에도 불구하고 입자 간 응집현상은 크게 찾아볼 수 없었다. 만약, 입자 간 응집현상이 발생했다면 페로브스카이트 소재의 낮은 엑시톤 결합에너지에 의해 QD에서 볼 수 있는 유사한 광특성은 나타내기 어려울 것으로 사료된다.

본 연구에서는 선행연구에서 보고된 solid-solution매커니즘에 의해 CsBr과 PbBr<sub>2</sub> 분말이 재결정된 CsPbBr<sub>3</sub> 형광체의 합성법과<sup>25)</sup> 유리 프리트를 모재로 사용하는 PIG 제작 기술을 착안하였다(Fig. 1).

고안된 CsPbBr<sub>3</sub>/Glass 복합체 제작에 있어서 CsPbBr<sub>3</sub> 전구체들의(CsBr:PbBr<sub>2</sub>, 1 : 1) 혼합 분말, 첨가제, 그리고 유리 프리트의 함량비를 다양하게 조절하여 성형체를 제작하고 소결 공정을 진행하였다. Table 2는 각 구성 성분의 혼합 질량 비율에 따라 자외선을 조사한 상태에서 시료들의 형광 이미지를 나타낸 것이다. 2번과 3번 시료는 전구체의 함량이 각각 4.3 wt%와 1.2 wt%로써 전구체의 최대와 최소 함량을 나타낸다. 각 비율을 벗어나는 함량에서는 자외선 조사 시 발광 특성을 관찰할 수 없었다. 3번 시료의 경우 미량의 CsPbBr<sub>3</sub> 전구체 투입으로 시료의 국부적인 부분에서만 녹색 형광이 관찰되었

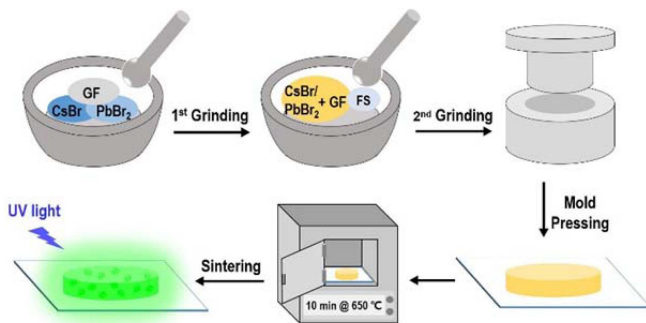
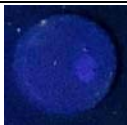

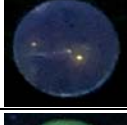
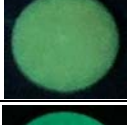
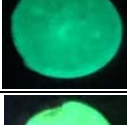
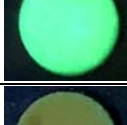



Fig. 1. Schematic illustration of the sintering process for the CsPbBr<sub>3</sub>/Glass composite.

고, 2번 시료는 시료 전반에 여러 파장의 색깔이 섞인 미약한 형광이 관찰되는 것으로 보아 과량의 CsPbBr<sub>3</sub>가 서로 응집되어 벌크 상태에 가까운 구조를 형성하면서 밴드갭이 좁아지는 현상으로 판단하였다.

유리 매트릭스에 내장된 CsPbBr<sub>3</sub>의 응집 현상을 해소하기 위해서 소결 온도에서 화학적, 물리적 반응성이 없으면서 CsPbBr<sub>3</sub>의 분산매 역할을 할 수 있는 세라믹 분말 입자를 첨가제로 적용하는 것을 시도하였다. 최초 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (showa denko, D50 500 nm)와 SiO<sub>2</sub> (US research nanomaterials, D50 200 nm) 분말을 GF 대비 3 ~ 5 wt% 첨가하여 소결 진행하였으나, 소결 완성도가 상당히 떨어지는 현상을 보였다. 이를 보완하기 위해 표면적 대 부피의 비율(surface-area-to-volume ratio)이 매우 큰 FS를 분산매로 채용하여 실험을 진행하였다. Table 2의 4번 시료와 같이 CsPbBr<sub>3</sub> 전구체 4.1 wt%, FS 3.2 wt%와 GF 92.7 wt%를 혼합하여 소결체를 얻었을 때 소결 완성도가 높았고 자외선을 조사한 결과, FS를 첨가하지 않은 2번 시료의 미약한 형광색과는 달리 녹색 형

Table 2. The results of luminescent properties of CsPbBr<sub>3</sub>/Glass composites according to the mixing ratio from CsBr, PbBr<sub>2</sub>, FS and GF.

Sample No.	Mixing Ratio (wt%)			Sample Image
	CsBr+PbBr <sub>2</sub>	FS	GF	
1	n/a	n/a	100	
2	4.3	n/a	95.7	
3	1.2	n/a	98.8	
4	4.1	3.2	92.7	
5	3.8	10	86.2	
6	5.2	10.1	84.7	
7	7.6	10	82.4	

광 특성이 나타남을 확인하였다. 따라서, 용융된 CsBr과 PbBr<sub>2</sub>가 유리 매트릭스 내에서 재결정될 때 FS가 분산 매로 작용하여 응집을 억제하는 것으로 판단하였다. 이 결과를 바탕으로 CsPbBr<sub>3</sub> 전구체, FS 및 GF의 함량을 다양하게 조절하여 여기 광원에 의한 녹색 형광 세기를 증가시켜보고자 노력하였다. 전구체와 FS의 함량이 증가할수록 녹색 형광의 세기가 증가하는 경향을 확인하였지만, 소결체의 소결 완성도가 급격하게 하락하여 CsPbBr<sub>3</sub> 입자를 유리 매트릭스에 완전히 매립하고자 하는 목적에 부합하지 못했다. 본고에서 사용한 상용화 GF (EG 3046, Ferro)의 유리전이온도는 495 °C이며, 연화점은 590 °C 이다. 따라서, pure silica의 유리전이온도가 1,200 °C 인 것을 고려할 때 FS의 함량이 증가할수록 GF 입자간 목형성(neck formation)을 방해하여 성형체의 소결 완성도가 떨어지는 것으로 판단된다. 그러므로, GF의 소결 완성도가 확보되는 조건 이하에서 전구체와 FS의 함량비를 조절하는 것이 필요했다. Table 2의 5, 6, 7번 시료들에서는 FS 첨가량을 10 wt%로 고정하고 CsPbBr<sub>3</sub> 전구체 함량을 변화했을 때 여기 광원에 의한 녹색 형광 특성을 나타낸다. FS 첨가 시 육안 상 소결 완성도가 확보되는 조건은 5번과 6번의 두 시료들이며 전구체가 7.6 wt%가 투입되는 7번 시료부터는 약간의 미소결 형태를 보였다. 녹색 형광 세기가 가장 강하게 나타나는 시료는 각 함량이 CsPbBr<sub>3</sub> 전구체(5.2 wt%), FS (10.1 wt%), GF (84.7 wt%) 수준에서 제작된 6번 시료인 것을 확인할 수 있었다.

Fig. 2는 5번과 6번 시료들의 365 nm 여기 광에 대한 PL 스펙트럼을 확인할 수 있다. 5번 시료의 경우는 PL 피크, FWHM, PLQY가 515 nm, 17 nm, 10.3%이며, 6번 시료는 519 nm, 17 nm, 17.7%로 각각 측정되었다.

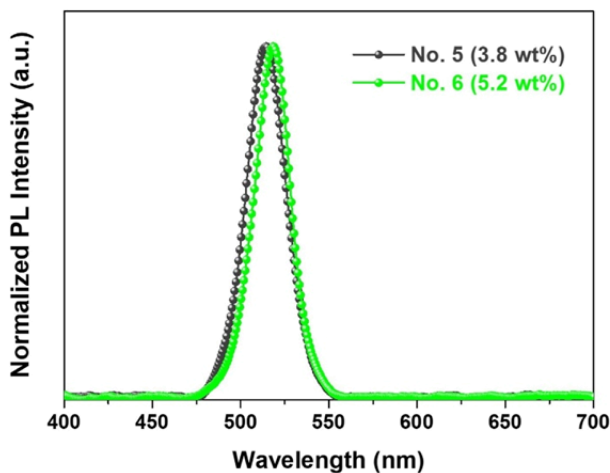


Fig. 2. PL spectra corresponding to the input amounts of CsBr and PbBr<sub>2</sub> in the sintered composites.

이렇게 제작된 세라믹 복합체 내부에 매립된 CsPbBr<sub>3</sub>결정의 존재를 증명하기 위해 X-선 회절 분석기 [X-ray diffractometer (XRD)]를 이용하여 분석하였으나, 유리 매트릭스의 비정질 특성을 나타내는 broad halo 패턴만이 관측되었다. 이는 소결 완성도를 확보하기 위해 제한된 미량의 CsPbBr<sub>3</sub> 전구체 함량 때문에 상대적인 함유량이 작은 CsPbBr<sub>3</sub> 결정구조가 관측되지 못한 것으로 사료된다. 그러나, 소결된 CsPbBr<sub>3</sub>/Glass 복합체의 미세구조 관찰을 통해서 매립된 CsPbBr<sub>3</sub> 입자들을 증명하고자 하였다. Fig. 3은 6번 시료 제작 조건 샘플의 단면 미세구조를 SEM 이미지와 EDS정성 분석을 통해서 나타낸 결과이다. 상대적으로 전자밀도가 높은 CsPbBr<sub>3</sub>입자를 보다 명확하게 확인하기 위해서 BSE (back-scattered electrons) 검출기를 이용하여 이미지를 관찰하였고, Fig 3(a)와 같이 약 1~3 μm 크기의 CsPbBr<sub>3</sub> 입자가 핀홀(pinhole)이 거의 없는 유리 매트릭스에 매립된 형태를 관찰할 수 있었다. Fig. 3(b)에서 알 수 있듯이 Cs, Pb, Br 원소들과 유리 프릿을 형성하는 주요 원소인 Si를 EDS mapping 통해서 정성분석을 실시하여 CsPbBr<sub>3</sub> 입자가 명백함을 확인했다.

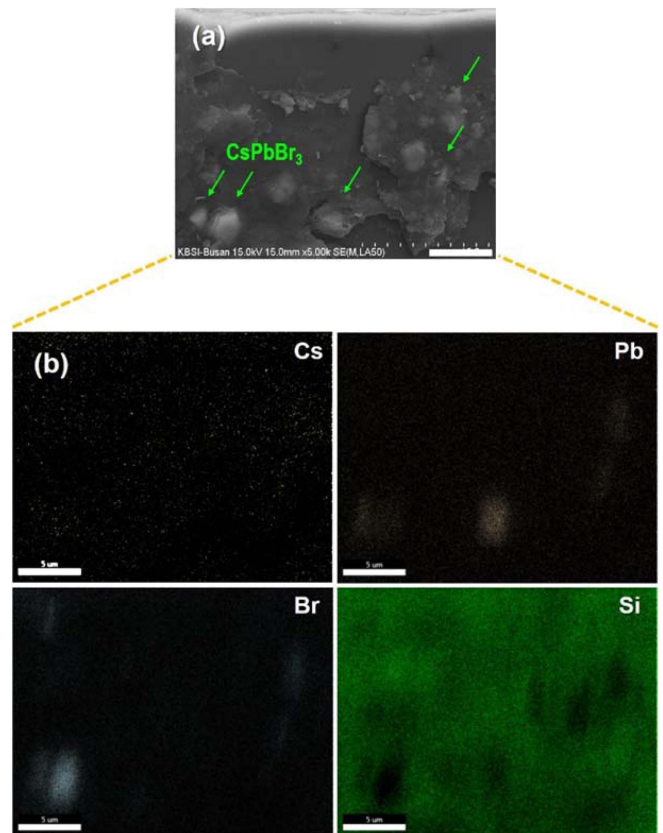
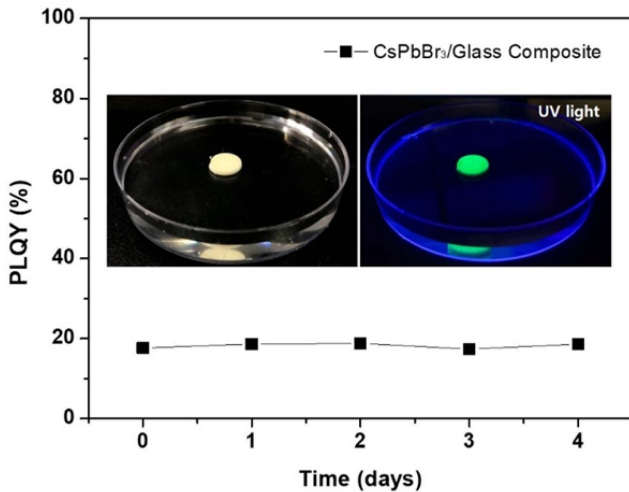


Fig. 3. (a) Cross-section and magnified image of sintered CsPbBr<sub>3</sub>/Glass composite (No. 6) by SEM (All scale bars are 5 μm long), (b) EDS maps of panel (a) area.



**Fig. 4.** The stability of sintered CsPbBr<sub>3</sub>/Glass composite sample (No. 6) in water. The right inset shows PL image of under ultraviolet lamp excitation.

Melt-quenching법을 이용한 선행연구 결과들과 마찬가지로 유리 매트릭스에 CsPbBr<sub>3</sub> 결정이 매립된 형태로 소결 완성도가 높은 세라믹 복합체는 내수성을 가질 수 있다고 판단하였다. Fig. 4는 이를 평가하기 위해서 소결체를 물속에 완전히 잠기게 하여 4일 동안 PLQY 측정치 변화를 관찰한 결과이다. 각 측정치들은 초기 대비  $\pm 1.1$  pp 이하의 PLQY 변화율을 나타냈다. 그래프에 삽입된 이미지는 물속에 완전히 잠긴 CsPbBr<sub>3</sub>/Glass 복합체를 백열등과 자외선에 노출된 상태를 각각 보여준다. 시료가 물속에 완전히 잠겨 있는 상태에서 자외선에 여기 되어 방출되는 녹색 형광 이미지를 확인할 수 있다. 수분 또는 극성 용매의 노출에 매우 민감한 페로브스카이트 소재의 내수성을 감안할 때 의미 있는 평가 결과로 사료된다.

#### 4. 결 론

CsBr와 PbBr<sub>2</sub> 분말을 고용체로 적용하여 손쉽게 형성되는 CsPbBr<sub>3</sub> 합성법과 시중에 유통되는 유리 프리트를 모재로 이용한 PIG 공정 기술을 접목하여 CsPbBr<sub>3</sub>/Glass 세라믹 소결체를 제작하였다. CsBr, PbBr<sub>2</sub> 혼합 분말과 GF 함량비를 다양한 조건으로 실험하였고, FS를 CsPbBr<sub>3</sub>의 분산매로 첨가하여 유리 프리트의 소결 완성도를 유지하면서 CsPbBr<sub>3</sub> 입자의 응집현상을 줄임으로써 녹색 형광을 구현할 수 있었다. 또한, 소결체의 단면 미세구조 분석을 통해서 CsPbBr<sub>3</sub> 입자가 유리 매트릭스에 매립된 구조를 관찰하였으며, 이에 따라 소결체의 수분 저항성 평가를 진행하여 내수성이 있음을 확인하였다. 따라서, 비

교적 복잡하고 tact time이 긴 melt-quenching 제조법 대비 공정을 단순화하면서 녹색 파장 대역폭이 좁은 형광 특성과 내수성을 갖는 형광체 플레이트 제조 가능성을 확인할 수 있었다. 반면, melt-quenching 제조법에 비교하여 매립된 CsPbBr<sub>3</sub>의 입자 사이즈가 크고, 소결 완성 수준에 따른 전구체 함량의 제한에 의해서 광속 및 양자효율 면에서는 비교적 열위에 있다고 판단된다. 이를 개선하기 위해서는 새로운 소재의 조성 및 구조 개발, 소결 온도 제어 등 다양한 시도를 고려할 수 있다.

#### Acknowledgment

This work was supported by Dong-eui University Grant. (202003550001).

#### References

1. S. D. Stranks and H. J. Snaith, *Nat. Nanotechnol.*, **10**, 391 (2015).
2. M. A. Green, A. Ho-Baillie and H. J. Snaith, *Nat. Photonics*, **8**, 506 (2014).
3. H. S. Jung and N. G. Park, *Small*, **11**, 10 (2015).
4. J. Li, L. Xu, T. Wang, J. Song, J. Chen, J. Xue, Y. Dong, B. Cai, Q. Shan, B. Han and H. Zeng, *Adv. Mater.*, **29** (2017).
5. X. Zhang, B. Xu, J. Zhang, Y. Gao, Y. Zheng, K. Wang and X. W., *Adv. Funct. Mater.*, **26**, 4595 (2016).
6. J. Song, J. Li, X. Li, L. Xu, Y. Dong and H. Zeng, *Adv. Mater.*, **27**, 7162 (2015).
7. P. Ramasamy, D.-H. Lim, B. Kim, S.-H. Lee, M.-S. Lee and J.-S. Lee, *ChemComm.*, **52**, 2067 (2016).
8. J. Ding, S. Du, Z. Zuo, Y. Zhao, H. Cui and X. Zhan, *J. Phys. Chem. C*, **121**, 4917 (2017).
9. M. Y. Cho, S. Kim, I. S. Kim, E. S. Kim, Z. J. Wang, N. Y. Kim, S. W. Kim and J. M. Oh, *Adv. Funct. Mater.*, **30**, 1907449 (2019).
10. J. Song, J. Li, X. Li, L. Xu, Y. Dong and H. Zeng, *Adv. Mater.*, **27**, 7162 (2015).
11. Q. Shan, J. Li, J. Song, Y. Zou, L. Xu, J. Xue, Y. Dong, C. Huo, J. Chen and B. Han, *J. Mater. Chem. C*, **5**, 4565 (2017).
12. M. Kulbak, S. Gupta, N. Kedem, I. Levine, T. Bendikov, G. Hodes and D. Cahen, *J. Phys. Chem. Lett.*, **7**, 167 (2016).
13. M. Kulbak, D. Cahen and G. Hodes, *J. Phys. Chem. Lett.*, **6**, 2452 (2015).
14. Y. Yuan and J. Huang, *Acc. Chem. Res.*, **49**, 286 (2016).
15. Q. Tai, P. You, H. Sang, Z. Liu, C. Hu, H. L. Chan and F. Yan, *Nat. Commun.*, **7**, 1 (2016).
16. X. Di, J. Jiang, Z. Hu, L. Zhou, P. Li, S. Liu, W. Xiang and X. Liang, *Dyes Pigm.*, **146**, 361 (2017).
17. H. C. Wang, S. Y. Lin, A. C. Tang, B. P. Singh, H. C.

- Tong, C. Y. Chen, Y. C. Lee, T. L. Tsai and R. S. Liu, *Angew. Chem. Int. Ed.*, **55**, 7924 (2016).
18. C. Sun, Y. Zhang, C. Ruan, C. Yin, X. Wang, Y. Wang and W. W. Yu, *Adv. Mater.*, **28**, 10088 (2016).
19. B. Ai, C. Liu, J. Wang, J. Xie, J. Han, X. Zhao and J. Heo, *J. Am. Ceram. Soc.*, **99**, 2875 (2016).
20. X. Xiang, H. Lin, J. Xu, Y. Cheng, C. Wang, L. Zhang and Y. Wang, *Chem. Eng. J.*, **378**, 122255 (2019).
21. S. Yuan, D. Chen, X. Li, J. Zhong and X. Xu, *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **10**, 18918 (2018).
22. Y. Ye, W. Zhang, Z. Zhao, J. Wang, C. Liu, Z. Deng, X. Zhao and J. Han, *Adv. Opt. Mater.*, **7**, 1801663 (2019).
23. R. Zhang, H. Lin, Y. Yu, D. Chen, J. Xu and Y. Wang, *Laser Photonics Rev.*, **8**, 158 (2014).
24. J. S. Lee, P. Arunkumar, S. Kim, I. J. Lee, H. Lee and W. B. Im, *Opt. Lett.*, **39**, 762 (2014).
25. J. P. Park, T. K. Lee, S. K. Kwak and S.-W. Kim, *Dyes Pigm.*, **144**, 151 (2017).

<저자소개>

문나은

동의대학교 응용화학과 학생

김성훈

동의대학교 응용화학과 교수