Current Photovoltaic Research 10(4) 101-106 (2022)
DOI:https://doi.org/10.21218/CPR.2022.10.4.101
pISSN 2288-3274
eISSN 2508-125X

Hot-air 공정을 이용한 무기 $CsPbI_2Br$ 페로브스카이트 태양전지 제작 연구

김리나[1] · 이동건[2] · 강동원[2] · 김은도[3] · 김제하[1]*
[1]에너지융합학과, 청주대학교, 청주, 28503
[2]에너지시스템공학부, 중앙대학교, 서울, 06974
[3](주)아스트로텍, 청주, 28116

Study of Inorganic $CsPbI_2Br$ Perovskite Solar Cell Using Hot-air Process

RINA KIM[1] · Dong-Gun Lee[2] · Dong-Won Kang[2] · Eundo Kim[3] · Jeha Kim[1]*
[1]Department of Energy Convergence Engineering, Cheongju University, Cheongju, 28503, Korea
[2]Department of Energy System Engineering, Chung-Ang University, Seoul, 06974, Korea
[3]ASTROTEK Co., Ltd., Cheongju, 28116, Korea

Received October 24, 2022; Revised November 29, 2022; Accepted November 30, 2022

ABSTRACT: We prepared a $CsPbI_2Br$ solution using Cesium iodide (CsI), Lead (II) bromide ($PbBr_2$) and Lead (II) iodide (PbI_2) materials into a polar solvent mixture of *N,N*-dimethylformamide (DMF) and Dimethyl sulfoxide (DMSO). A simple spin coating technique was used for the fabrication of $CsPbI_2Br$ absorber layer in the solution process. In order to prepare uniform coating of absorber film we adopted a hot-air process in assocation with the spin coating. It was confirmed that the thin film manufactured by the hot-air process had a higher absorption rate than that without it, and the optical band gap was measured 1.93 eV. The thin film of absorber was uniformly prepared and revealed the Black α-Cubic crystal phase as proved through X-ray diffraction analysis. Finally, a perovskite solar cell having an n-i-p structure was manufactured with a $CsPbI_2Br$ perovskite absorption layer. From the solar cell, we obtained a power conversion efficiency (PCE) of 5.97% in a forward measurement.

Key words: Perovskite, $CsPbI_2Br$, Spin coating, Hot-air process, Power conversion efficiency (PCE)

1. 서 론

할라이드계 페로브스카이트(Perovskite) 물질은 높은 광흡수계수, 낮은 엑시톤 결합 에너지, 긴 전하확산거리와 같은 우수한 광전기적 특성을 지니고 있다[1-2]. 그리고 NREL 차트의 최신 자료에 따르면 납(Lead)을 기반으로 한 페로브스카이트 태양전지가 결정질 실리콘 태양전지의 효율보다 높은 효율을 보여준다[3]. 이러한 특성으로, 납을 기반으로 한 페로브스카이트 태양전지 중에 $CsPbX_3$ 기반 페로브스카이트는 상온이나 습기에 노출되면 Black-α상에서 Yellow-δ상으로 변하는 단점이 있지만 열 안정성을 향상시킬 수 있는 장점이 있다. $CsPbX_3$ 기반 페로브스카이트에는 $CsPbI_2Br$, $CsPbI_3$, $CsPbBr_3$으로 3가지 페로브스카이트 물질이 있는데, 그 중에서 $CsPbI_2Br$ 물질이 가장 우수한 화학적 안정성과 중간 밴드갭(1.91 eV)을 가진다는 장점이 있어 페로브스카이트 태양전지 제작에 유용하다[4-6].

페로브스카이트 태양전지 제작에 사용되는 전자수송층 물질의 종류로는 TiO_2, SnO_2 등이 있다. 그 중에서 SnO_2 물질은 넓은 밴드갭(3.6 eV), 높은 광투과율을 갖추고 있으며, 고온 열처리 과정이 필요한 TiO_2보다 저온(≤200°C) 열처리 과정으로 이용할 수 있는 장점이 있다. 이러한 장점을 지닌 SnO_2 층을 제작하기 위해서는 스핀 코팅, Thermal-ALD (Atomic Layer Deposition) 등이 있다. 여기서 $CsPbI_2Br$ 박막을 보다 균일하게 제작되기 위해서는 SnO_2 층에서 스핀 코팅으로 인해 생길 수 있는 핀홀(Pin hole) 생성을 최소화하고 고밀도 박막이 필요한데, 원자단위로 성막하는 Thermal-ALD가 적합한 방안이 되고 있다. 이 공정은 성장 속도가 느리다는 단점이 있으나 막의 균일한 피복성, 정밀한 두께가 가능하다는 장점을 지니고 있다[7-8].

*Corresponding author: jeha@cju.ac.kr

ⓒ 2022 by Korea Photovoltaic Society
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.

$CsPbI_2Br$ 페로브스카이트 흡수층의 제작은 가장 간단한 용액공정의 스핀코팅 공정을 이용한다. 기존의 단일 스핀 코팅으로만 제작된 페로브스카이트 흡수층은 낮은 박막의 두께와 핀홀 생성으로 페로브스카이트 박막의 효율이 좋지 않아 기존의 스핀 코팅을 이용한 조건보다 핀홀이 적고 효과적으로 박막을 제작할 수 있는 방법을 찾아야 한다. 그 중에서 쉽게 제작할 수 있는 공정인 hot-air 공정을 이용한다[9-11]. 이 hot-air 공정은 고온의 열과 바람이 동시에 나오는 방식이다. 이를 이용하는 이유는 기존의 스핀 코팅은 원심력에 의해 균일하게 코팅이 되지 않을 수 있지만, hot-air 공정을 스핀 코팅 중에 함께 이용하면 용매가 균일하게 증발이 되게 하며, 페로브스카이트 박막을 균일하게 코팅되게 하고, 균일한 입자 크기를 촉진하게 한다[9-11].

따라서 본 연구에서는 n-i-p 구조로 페로브스카이트 태양전지를 제작하기 위하여 전자수송층은 Thermal-ALD를 이용하여 SnO_2층을 증착하였고, 흡수층은 $CsPbI_2Br$ 물질을 이용하였다. 여기서 $CsPbI_2Br$ 흡수층은 hot-air 공정없이 진행된 스핀 코팅 공정과 hot-air 공정을 이용한 스핀코팅 공정으로 제작된 박막을 토대로 광학적 특성을 비교하였고, 광학적 특성이 우수한 hot-air 공정을 이용한 조건을 토대로 $CsPbI_2Br$ 페로브스카이트층을 적용하여 페로브스카이트 태양전지를 제작하여 결정상, FE-SEM으로 단면, J-V 특성에 대해 조사하였다.

2. 실험방법

2.1 페로브스카이트 용액 제조

본 연구를 위하여 $CsPbI_2Br$ 용액을 제조하였다[12]. 용액 제조에 필요한 용질과 용매는 Cesium iodide (CsI; 99.999%, Sigma-Aldrich), Lead (II) bromide ($PbBr_2$; 99.999%, Sigma-Aldrich), Lead (II) iodide (PbI_2; 99.999%, Sigma-Aldrich), *N,N*-dimethyl-formamide (DMF; 99.8%, Sigma-Aldrich), Dimethyl sulfoxide (DMSO; ≥99.9%)을 이용하였다. 용액 제조는 질소 분위기로 조성된 글로브박스(glove box)에서 진행하였다. 용매는 DMF와 DMSO의 비율을 3:7 v/v %로 제조하였다. 이는 DMF 용매로만 사용하였을 경우, DMF의 빠른 휘발성으로 인해 불균일한 박막이 형성될 수 있어 DMSO의 용매의 비율을 높여 박막의 밀도를 높게 하여 균일한 박막을 형성할 수 있게 DMF와 DMSO의 용매를 이용하였다[13]. DMF:DMSO = 3:7 v/v % 용매에 용질을 Cesium iodide (CsI), Lead (II) bromide ($PbBr_2$), Lead (II) iodide (PbI_2)를 1.2M:0.6M:0.6M의 비율로 혼합하고 12시간동안 60°C에서 교반하여 $CsPbI_2Br$ 1.2M 페로브스카이트 용액을 제조하였다. 제조한 $CsPbI_2Br$ 페로브스카이트 용액은 불순물 제거를 위해 0.2 μm PTFE 필터로 여과한 뒤 사용하였다.

2.2 페로브스카이트 태양전지 제작

Fig. 1은 $CsPbI_2Br$ 페로브스카이트 태양전지의 n-i-p 구조도

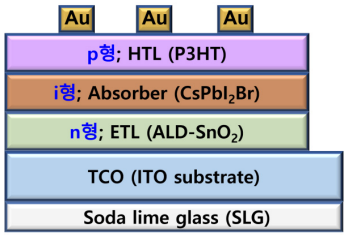

Fig. 1. N-i-p structure diagram of $CsPbI_2Br$ perovskite solar cell

이며, 이와 같이 제작하기 위해 투명 전극(Transparent conductive oxide, TCO)은 Soda lime glass (SLG)에 ITO 성장된 상용 기판으로, 전자수송층은 SnO_2 물질로, 흡수층(Absorber)은 $CsPbI_2Br$ 물질로, 정공수송층(Hole transport layer)은 Poly (3-hexylthiophene-2,5-diyl) (P3HT)로, 전극은 Au을 이용하였다.

먼저, SLG/ITO 기판(20×20 mm^2)의 ITO 층 두께는 161 nm였으며, 비저항은 Hall effect 측정기(ECOPIA, HMS-3000)을 이용하여 1.28×10^{-4} [Ω·cm]으로 측정되었다. SLG/ITO 기판은 아세톤, 이소프로필 알콜, DI Water 순으로 각각 10분간 초음파 세척기로 세척한 후 질소(N_2) 가스로 건조한 다음 사용하였다.

본 연구에서 이용한 페로브스카이트 태양전지의 공정과정은 다음과 같이 수행하였다. 첫 번째, 전자 수송층으로 사용되는 SnO_2층은 Thermal-ALD (iSAC RESEARCH, iOV m100) 장비를 이용하여 SLG/ITO 기판 위에 성막하였다. Table 1은 SnO_2를 약 20 nm로 증착하기 위하여 Thermal-ALD로 증착한 조건을 나타내며, 증착한 과정은 다음과 같다. 전구체인 Tetrakis-dimethylamino Tin (TDMASn,$Sn[N(CH_3)_2]_4$)를 캐리어 가스(Ar, 99.999%)와 함께 ALD 챔버 내부로 수송하여 SLG/ITO 기판에 전구체 흡착(1단계), ALD 챔버 내부에서 Ar 가스로 기판에 흡착된 전구체를 제외한 나머지 전구체를 Purge와 함께 밖으로 배출(2단계), 산화제(O_3)를 넣어 기판에 흡착된 전구체 중에서 염소나 수소, 탄소계 결합을 제거한 후 금속 물질인 Sn과 반응하여 SnO_2 산화물을 형성(3단계), 마지막으로 Ar 가스를 흘려 반응 부산물을 제거(4단계)과정으로 제작하였으며, 이 1-4단계를 1 cycle로 정의한다[14]. SnO_2 증착은 115 cycle로 공정하였고, GPC (Growth per cycle)는 0.174 nm였으며, 기판 온도는 200°C로 유지하였다. 목표 두께는 20 nm였다[7].

Table 1. Growth parameter of SnO_2 thin film by using thermal-ALD

Step	Pulse time (sec)	Flow rate (sccm)
TDMASn	2.0	200
Ar-Purge	5.0	800
Oxidant (O_3)	5.0	500
Ar-Purge	10.0	800
Growth temp. (real) (°C)	200	
Cycle number	115	

흡수층은 SLG/ITO/SnO_2 기판의 유기물 제거와 표면을 친수성화하기 위해 20분간 UV-OZONE 세척기로 표면 처리하여 $CsPbI_2Br$ 용액이 흡착되게 하였다. 이때, $CsPbI_2Br$ 층은 두 가지 방법으로 진행하였다. 첫 번째 방법은 제조된 $CsPbI_2Br$ 1.2M 용액을 SLG/ITO/SnO_2 기판 위에 약 0.1 mL 도포하고, 3000 RPM의 속도로 40초간 스핀코팅하였다. 두 번째 방법은 첫 번째 방법처럼 진행하되, 스핀 코팅이 진행되는 40초 중에서 처음 10-20초에는 hot-air 건으로 가열하였다. 이는 스핀 코팅으로 $CsPbI_2br$ 용액이 기판의 표면에 흡착되는 과정 중에 hot-air 건으로 열과 바람을 불어주면 표면 전체에 균일하게 확산이 되고, 제어된 용매 증발로 인하여 페로브스카이트 박막의 결정성이 향상될 수 있어 이용하였다. 두 가지 조건(hot-air 공정 이용한 조건/ hot-air 공정을 이용하지 않은 조건)으로 코팅된 기판은 $CsPbI_2Br$ 페로브스카이트 박막의 결정화를 촉진하기 위해 280°C에서 10분간 열처리하였다. 흡수층 제작은 아르곤 분위기로 조성된 글로브 박스에서 진행하였다.

정공 수송층의 제작은 Poly (3-hexylthiophene-2,5-diyl) (P3HT)을 클로로 벤젠에 혼합(10 mg/mL)한 후 12시간동안 교반하였다. 제조된 P3HT 용액을 SLG/ITO/SnO_2/$CsPbI_2Br$ 기판에 P3HT 용액을 약 0.1 mL 도포하고 3000 RPM의 회전 속도에서 30초간 스핀코팅한 다음, 100°C에서 5분간 열처리하였다. 마지막으로 정공 수송층까지 제작된 기판을 Au 전극 증착하기 위해 Thermal evaporator를 이용하였다. Au 전극은 4 mm^2의 셀 면적으로 된 스테인리스 스틸 섀도우 마스크(Shadow mask)를 이용하였으며 100 nm의 두께로 증착하였다.

3. 실험 결과 및 분석

제작된 $CsPbI_2Br$ 페로브스카이트 태양 전지의 흡수층인 $CsPbI_2Br$ 박막의 광학적 특성에 대해 알아보기 위해 UV-visible spectrometer (SHIMADZU, UV-2600)을 이용하여 파장별로 광학적 투과율, 흡수율을 측정하였다. 그리고 $CsPbI_2Br$층의 광학적 밴드갭(E_g)을 알기 위해 광학적 투과율을 토대로 광학적 밴드갭(E_g)을 측정하였다.

Fig. 2는 $CsPbI_2Br$ 페로브스카이트 박막의 광학 이미지로, Fig. 2(a)는 hot-air 공정없이 제작된 박막의 이미지고, 육안으로 보았을 때 박막의 표면이 얼룩지면서 색은 갈색을 띄었다. 이는 스핀코팅으로 공정한 다음 핫플레이트에서 열처리하는 과정에서 용매의 증발이 균일하게 되지 않아 얼룩이 발생한 것으로 판단되었다. 반면에 Fig. 2 (b)는 hot-air 공정으로 제작된 박막의 이미지로, Fig. 2 (a)보다 박막의 색이 어두운 갈색으로 변하였다. 이와 같이 hot-air 공정을 이용한 경우 용매의 증발이 균일하게 되어 시료 표면이 전체적으로 어두운 갈색을 띄었다. 여기서 흡수층은 박막의 색이 짙을수록 더 많은 빛을 흡수할 수 있고, 흡수층 표면이 전체적으로 균일하게 코팅이 되어야 빛을 균일하게 흡수할 수 있다. 그러므로 hot-air 공정을 이용하지 않은 단일 스핀코팅 공정보다 hot-air 공정을 이용한 스핀코팅 공정 방식이 적합함을 확인하였다.

Fig. 3은 hot-air 공정을 이용한 조건과 이용하지 않은 조건의 광학적 특성을 나타낸 그래프이다. Fig. 3 (a)는 광학적 투과율 스펙트럼을 나타내며, hot-air 공정을 이용한 $CsPbI_2Br$ 층은 300-650 nm 파장대에서 투과율이 약 0-10%를 투과하는 반면 hot-air 공정이 없는 $CsPbI_2Br$ 층의 투과율은 약 20-35%를 투과하였다. 그리고 Fig. 3 (b)는 광학적 흡수율 스펙트럼을 나타내었고, hot-air 공정을 이용하지 않은 $CsPbI_2Br$ 층은 낮은 흡수율을 보여주었다. 그러나 hot-air 공정을 이용한 $CsPbI_2Br$ 층은 hot-air 공정을 이용하지 않은 $CsPbI_2Br$ 층에 비해 높은 흡수율을 보여주었다. 이와 같이 박막의 색이 어두울수록 높은 흡수율

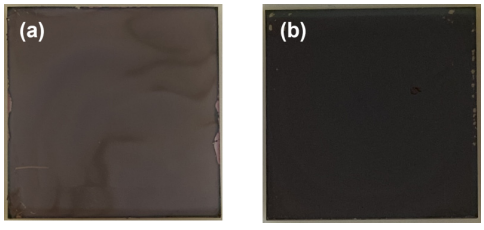

Fig. 2. Optical images of the $CsPbI_2Br$ perovskite thin film (a) without hot-air/ (b) with hot-air

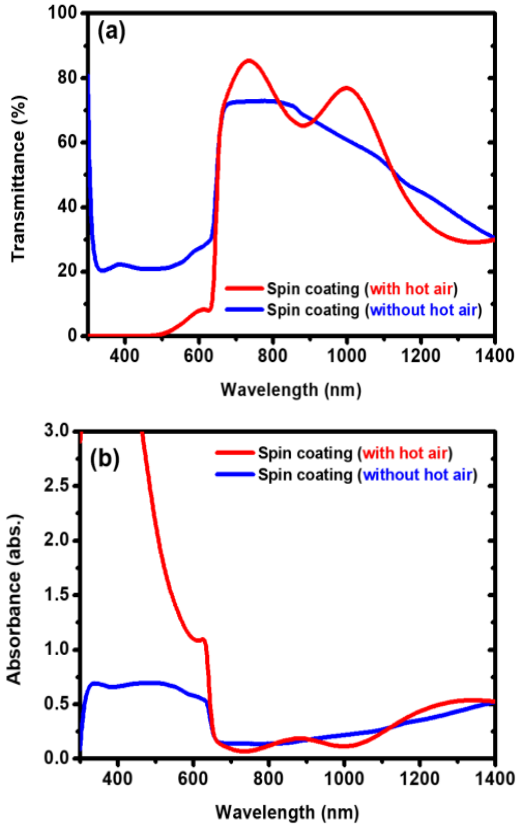

Fig. 3. Optical spectra vs. wavelength; (a) transmittance, (b) absorbance

을 나타내고, 빛을 더 많이 흡수할 수 있다는 결과를 보여 주었다.

Fig. 4는 Fig. 3 (a)의 광투과 특성으로부터 작성한 Tauc-plot 그래프이다. hot-air 공정을 이용한 경우와 그렇지 않은 경우에 광학적 밴드갭(E_g)은 각각 1.93 eV, 1.87 eV로 측정되었다. 이를 바탕으로 $CsPbI_2Br$ 벌크 결정의 광학적 밴드갭(E_g) 값인 1.91 eV로 비교하였을 때 hot-air 공정으로 이용한 조건(1.93 eV)이 가장 근접한 결과값으로 나타났다. 따라서 hot-air 공정을 이용한 조건이 가장 우수한 흡수특성과 $CsPbI_2Br$ 벌크 결정의 광학적 밴드갭 값을 비교하였을 때 가장 근접한 결과값을 얻었다. 결론적으로 n-i-p 구조의 태양전지에서 $CsPbI_2Br$ 층의 성막은 hot-air 공정을 이용하는 것이 매우 효과적이었다.

이러한 우수한 흡수 특성을 보인 hot-air 공정을 이용한 $CsPbI_2Br$ 페로브스카이트 태양전지의 $CsPbI_2Br$ 박막이 $CsPbI_2Br$의 Black α-cubic 결정 구조상을 가지는지 확인하기 위하여 XRD (X-ray diffraction) (Rigaku, SmartLab 3)을 측정하였다.

Fig. 5는 hot-air 공정을 이용한 $CsPbI_2Br$ 페로브스카이트 태양 전지의 XRD 패턴을 측정한 그래프이다. 본 연구에서 제작한 페로브스카이트 태양 전지에서 가장 강하게 피크가 보이는 14.7° (100), 29.7° (200)은 $CsPbI_2Br$ 박막의 Black α-Cubic 결정 구조상임을 확인하였다[9, 15]. 그리고 35.4° (400), 38.2° (111) 피크는 각각 투명전극(ITO), 금속 전극(Au)으로 판단하였다[16-17].

또한 페로브스카이트 태양전지의 단면을 확인하기 위해 FE-SEM (Field Electron-Scanning Electron Microscopy) (JEOL, JSM-7610F)을 측정하였다.

Fig. 6은 태양 전지의 전계방사형 주사전자현미경(FE-SEM)으로 얻은 영상으로, 태양전지의 단면 형상을 보여주고, 스케일 바는 100 nm이다. ITO, 페로브스카이트 층의 두께는 각각 161 nm, 446 nm였으며, 그 외 층(SnO_2, P3HT)은 약 20 nm의 두께로 쌓여 다른 층에 비해 SEM 영상에서는 보이지 않았다.

다음으로, $CsPbI_2Br$ 페로브스카이트 태양 전지의 특성은 솔라 시뮬레이터(Mcscience, solar simulator LAB50, Polaronix K201)을 이용해 인공 광원(100 mW/cm^2)을 조사하여 전압을 증가시키는 순방향(Forward) 스캔과 전압을 감소시키는 역방향(Reverse) 스캔을 통해 전류밀도-전압 특성을 측정하였다. 순방향 및 역방향 측정이 일치하지 않는지 확인하기 위하여 히스테리시스를 두 방향(순방향, 역방향)으로 측정하였다. 식 (1)은 순방향과 역방향 스캔으로 측정한 효율값을 통해 히스테리시스 지수(Hysteresis Index; HI)의 값을 확인하기 위해 계산하는 식이다.

$$HI = \frac{PCE\,(reverse) - PCE(forward)}{PCE\,(reverse)} \quad (1)$$

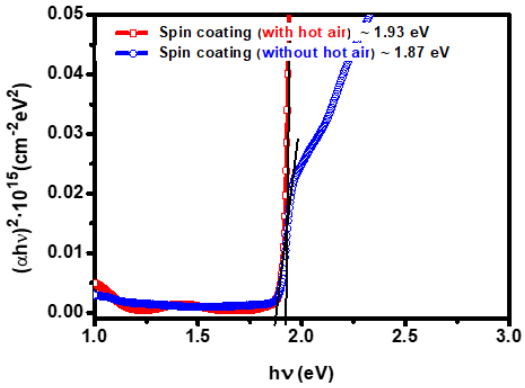

Fig. 4. Tauc-plot for optical bandgap

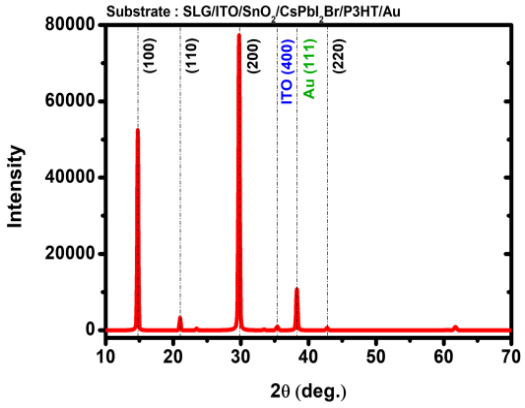

Fig. 5. $CsPbI_2Br$ perovskite solar cell XRD pattern (with hot-air process)

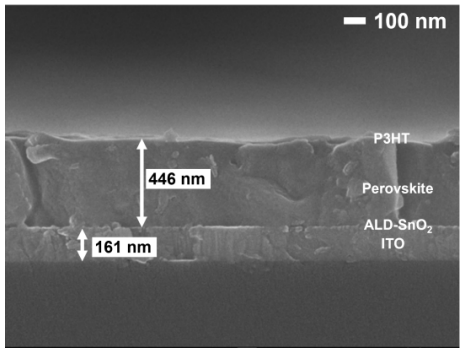

Fig. 6. SEM image of $CsPbI_2Br$ perovskite solar cell (with hot-air process)

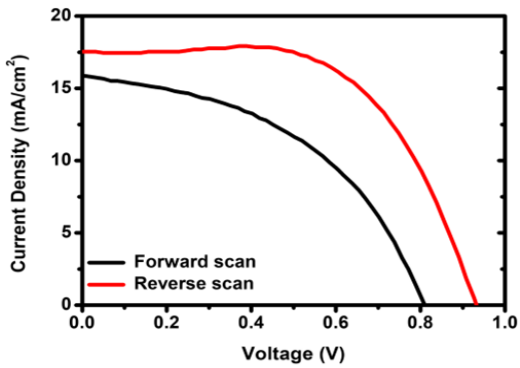

Fig. 7. Current density-voltage curves of $CsPbI_2Br$ perovskite solar cell (with hot-air process)

Fig. 7은 hot-air 공정을 이용한 $CsPbI_2Br$ 페로브스카이트 태양전지의 전류밀도-전압 곡선 그래프를 나타낸 그림이다. 전류밀도-전압 곡선 그래프에서 순방향 스캔과 역방향 스캔으로 측정하였을 때 순방향과 역방향 그래프가 일치하지 않았다.

Table 2는 hot-air 공정을 이용한 페로브스카이트 태양전지의 전류밀도-전압 곡선 그래프에 대한 파라미터 값들을 나타낸 것이다. Table 2에서 순방향일 때는 개방전압(V_{oc}) 0.81 V, 단락전류 밀도(J_{sc}) 15.90 mA/cm^2, 충진율(FF) 46.36%, 전력 변환 효율(PCE) 5.97%, 역방향일 때는 개방전압(V_{oc}) 0.93 V, 단락전류 밀도(J_{sc}) 17.54 mA/cm^2, 충진율(FF) 60.78%, 전력 변환 효율(PCE) 9.94%, 히스테리시스 지수(HI)는 0.40으로 나왔다.

히스테리시스 현상이 발생하는 원인을 크게 4가지 경우, 1) 이온 이동(Ion migration), 2) 강유전체(Ferroelectricity), 3) 전하 트래핑(Charge trapping), 4) 용량 효과(Capacitive effects)로 보고된다[18-19]. 최근에는 히스테리시스가 소자 구조, 스캔 속도, contact 또는 계면(Interface) 물질 등과 같은 여러 매개 변수에 따라 발생하지만 근본적인 원인은 주로 앞에서 언급한 4가지 경우이다[19]. 본 연구에서 제작한 태양 전지는 페로브스카이트/전하 수송층 계면에서 제한된 계면 접촉과 전하 이동 과정이 충분하지 않아 전자 traping-detrapping으로 인하여 히스테리시스 현상이 발생함으로 판단되었다[20]. 그리고 히스테리시스 지수는 0에 가까울수록 역방향과 순방향 스캔이 일치하는데, 본 연구에서는 0보다 0.40으로 높게 측정되었다. 이러한 문제점을 소자의 층 구조 변화, 물질 변화, 공정 환경에 대한 변화를 통해 소자의 히스테리시스 현상을 감소시키는 개선이 필요하다고 판단된다[21-22].

본 연구에서 n-i-p 구조의 페로브스카이트 태양전지 소자 제작을 위해 $CsPbI_2Br$ 페로브스카이트를 이용하였고, $CsPbI_2Br$ 흡수층 공정의 2가지 공정(hot-air 공정을 이용하지 않은 단일 스핀코팅, hot-air 공정을 이용한 스핀코팅)을 비교하였다. 광학적 이미지로 2가지 공정에 대해 비교하였을 때, hot-air 공정을 이용한 경우가 그렇지 않은 경우보다 어두운 갈색을 띄었고, 박막의 색이 짙으면 흡수율이 높아지게 되는데, 이러한 특성을 알기 위해 UV-visible spectrometer 측정을 통해 hot-air 공정으로 제작한 $CsPbI_2Br$ 페로브스카이트 층이 높은 흡수율을 보여주었다. 그리고 광학적 투과율을 바탕으로 작성한 광학적 밴드갭(Eg)이 1.93 eV로, $CsPbI_2Br$의 밴드갭(1.91 eV)와 근접한 결과값을 보여주었다. 이처럼 우수한 흡수 특성을 보여준 hot-air 공정을 기반으로 $CsPbI_2Br$ 페로브스카이트 태양전지를 제작하여 XRD 측정을 통해 Black α-Cubic 결정상을 확인하였고, FE-SEM 영상을 통해 태양전지 층의 두께를 확인할 수 있었다. 그리고 최종적으로 솔라 시뮬레이터로 태양전지의 특성을 측정하여 전력변환효율(PCE)이 5.97% (순방향 스캔), 9.94% (역방향 스캔)로 소자로써 작동되는 점을 확인하였고, 두 스캔의 단락전류 밀도-전압 곡선이 일치하지 않아 소자에서 히스테리시스 현상이 발생됨을 확인하였다. 이와 같이 히스테리시스 현상이 발생한 소자는 소자 구조를 n-i-p 구조에서 p-i-n 구조로 변화, 각 층으로 사용되는 물질의 변화, 전자수송층 물질인 SnO_2 물질을 증착하는 조건의 변화, $CsPbI_2Br$ 용액의 농도 변화, 전극을 Au뿐만 아니라 Ag, Ni 등의 물질로 변화하여 히스테리시스 현상에 대해 개선할 필요가 있다. 히스테리시스 현상에 대해서는 개선해야 하지만, hot-air로 제작한 소자가 태양전지로써 작동된다는 점에서는 긍정적인 연구결과라고 생각된다. 우리는 이 연구를 통해 $CsPbI_2Br$ 페로브스카이트 층이 Black α-Cubic 결정상을 지니고 있고, 우수한 흡수 특성, 소자로써 작동될 수 있다는 점에서 더 좋은 연구 방향으로 제시할 수 있다고 생각한다.

Table 2. Photovoltaic parameters of $CsPbI_2Br$ perovskite solar cell (with hot-air process)

	V_{oc} [V]	J_{sc} [mA/cm^2]	FF [%]	PCE [%]	HI
Forward scan	0.81	15.90	46.36	5.97	0.40
Reverse scan	0.93	17.54	60.78	9.94	

4. 결 론

본 연구에서 전자수송층 물질로 고품위 SnO_2 층을 이용하였으며, 산화제를 O_3를 이용하는 Thermal-ALD로 제작하였다. 그리고 n-i-p 구조의 페로브스카이트 태양 전지를 제작을 위하여 $CsPbI_2Br$ 1.2M 용액을 제조하였다. 제조된 $CsPbI_2Br$ 1.2M 용액을 이용해 간단한 스핀코팅 공정으로 제작하였고, 박막의 균일한 용액 확산과 박막의 결정상을 촉진할 수 있게 hot-air 공정을 이용하였다. hot-air 공정을 이용하여 제작된 페로브스카이트층은 그렇지 않은 공정에 비해 광학적 흡수율이 높았고, 광학적 밴드갭(Eg)이 1.93 eV인 것을 확인하였다. 그리고 이러한 결과를 통해 제작한 $CsPbI_2Br$ 페로브스카이트 태양전지를 XRD 측정하여 Black α-Cubic 결정상을 보여주었다. 그리고 제작된 태양전지의 전력 변환 효율의 순방향 스캔으로 5.97%로 얻었다. 그러나 본 연구를 통해 $CsPbI_2Br$ 페로브스카이트 박막이 전력변환효율(PCE) 5.97%을 보여주면서 낮은 전력변환효율을 얻었지만, 간단한 hot-air 공정이 고품질의 페로브스카이트 박막을 제조하는데 도움을 주는 점에 대해 긍정적이라고 생각된다. 더불어 히스테리시스 현상에 대해서는 최적화할 필요가 있어 추가적인 연구를 통해 고효율의 $CsPbI_2Br$ 페로브스카이트 태양전지 제작을 기대할 수 있을 거라고 예상된다.

후 기

이 논문은 2022년도 정부(산업통상자원부)의 재원으로 한국에너지기술평가원의 지원(No. 20224000000070, 스마트 에너지신산업 클러스터 인재양성)과 2022년 정부(산업통상자원부)

의 재원으로 한국산업기술진흥원의 지원을 받아 수행된 연구임 (P0011933, 2022년 산학융합지구조성사업). 이 논문은 2021~2022년도 청주대학교 연구장학 지원에 의한 것임.

References

1. Park, S. J., Ji, S. G., Kim, J. Y., "Inorganic charge transport materials for high reliable perovskite solar cells," Ceramist, 23(2), 145-165 (2020).
2. Stranks, S. D., Eperon, G. E., Grancini, G., Menelaou, C., Alcocer, M. J., Leijtens, T., Heaz, L. M., Petrozza, A., Snaith, H. J., "Electron-hole diffusion lengths exceeding 1 micrometer in an organometal trihalide perovskite absorber," Science, 342(6156), 341-344 (2013).
3. NREL, "Best Research-Cell Efficiency chart", 2022, https://www.nrel.gov/pv/cell-efficiency.html.
4. Shen, E., Chen, J., Tian, Y., Luo, Y., Shen, Y., Sun, Q., Jin, T., Shi, G., Li, Y., Tang, J., "Interfacial energy level tuning for efficient and thermostable CsPbI2Br perovskite solar cells," Advanced Science, 7(1), 1901952 (2020).
5. Zhao, H., Han, Y., Xu, Z., Duan, C., Yang, S., Yuan, S., Yang, Z., Liu, Z., Liu, S., "A novel anion doping for stable CsPbI2Br perovskite solar cells with an efficiency of 15.56% and an open circuit voltage of 1.30 V," Advanced Energy Materials, 9(40), 1902279 (2019).
6. Yin, G., Zhao, H., Jiang, H., Yuan, S., Niu, T., Zhao, K., Liu, Z., Liu, S., "Precursor engineering for all-inorganic CsPbI2Br perovskite solar cells with 14.78% efficiency," Advanced Functional Materials, 28(39), 1803269 (2018).
7. Farva, U., Kim, J., "Growth temperature-dependent morphological, optical, and electrical study of SnO2 thin film by atomic layer deposition," Materials Chemistry and Physics, 267, 124584 (2021).
8. Shin, S., Ham, G., Jeon, H., Park, J., Jang, W., Jeon, H., "Atomic Layer Deposition: Overview and Applications," Korean Journal of Materials Research, 23(8), 405-422 (2013).
9. Mali, S. S., Patil, J. V., Shinde, P. S., de Miguel, G., Hong, C. K., "Fully air-processed dynamic hot-air-assisted M: CsPbI2Br (M: Eu2, In3) for stable inorganic perovskite solar cells," Matter, 4(2), 635-653 (2021).
10. Mali, S. S., Patil, J. V., Hong, C. K., "Making air-stable all-inorganic perovskite solar cells through dynamic hot-air," Nano Today, 33, 100880 (2020).
11. Ouafi, M., Atourki, L., Laânab, L., Vega, E., Mari, B., Mollar, M., Jaber, B., "Hot airflow deposition: Toward high quality MAPbI3 perovskite films," Journal of Alloys and Compounds, 790, 1101-1107 (2019).
12. Farva, U., Lee, H. W., Kim, R. -N., Lee, D. -G., Kang, D. -W., Kim, J., "Growth temperature influence on atomic-layer-deposited In2O3 thin films and their application in inorganic perovskite solar cells," Nanomaterials, 11(8), 2047 (2021).
13. 이정구, 강동원, "페로브스카이트 태양전지의 기술현황 및 시장동향"(한국과학기술정보연구원, 2016).
14. Lee, S., Kim, H., "원자층 증착법(ALD)을 이용한 SiC MOS 게이트 산화막의 형성," Electrical & Electronic Materials, 30(9), 36-45 (2017).
15. Fan, Y., Fang, J., Chang, X., Tang, M., Barrit, D., Xu, Z., Jiang, Z., Wen, J., Zhao, H., Niu, T., Smilgies, D., Jin, S., Liu, Z., Li, E. Q., Amassian, A., Liu, S., Zhao, K.,"Scalable ambient fabrication of high-performance CsPbI2Br solar cells," Joule, 3(10), 2485-2502 (2019).
16. Thirumoorthi, M., Thomas Joseph Prakash, J, "Structure, optical and electrical properties of indium tin oxide ultra thin films prepared by jet nebulizer spray pyrolysis technique," Journal of Asian Ceramic Societies, 4(1), 124-132 (2016).
17. Assi, A.A., Saleh, W.R., Mohajerani, E., "Effect of metals (au, ag, and ni) as cathode electrode on perovskite solar cells," IOP Conference Series: Earth and Environmental Science, 722(1), 012019 (2020).
18. R. Singh, M. Parashar, "Origin of Hysteresis in Perovskite Solar Cells," in Soft-Matter Thin Film Solar Cells: Physical Processes and Device Simulation, (AIP Publishing (online), Melville, New York, 2020), pp. 1-1-1-42.
19. Elumalai, N. K., Uddin, A., "Hysteresis in organic-inorganic hybrid perovskite solar cells," Solar Energy Mater Solar Cells, 157, 476-509 (2016).
20. Kam, M., Zhang, Q., Zhang, D., Fan, Z., "Room-temperature sputtered SnO2 as robust electron transport layer for air-stable and efficient perovskite solar cells on rigid and flexible substrates," Scientific Report, 9(1), 1-10 (2019).
21. Kari, M., Saghafi, K., "Current-voltage hysteresis reduction of CH3NH3PbI3 planar perovskite solar cell by multi-layer absorber," Micro and Nanostructures, 165, 207207 (2022).
22. Wu, F., Pathak, R., Qiao, Q., "Origin and alleviation of JV hysteresis in perovskite solar cells: A short review," Catalysis Today, 374, 86-101 (2021).