

## 연속침적방법을 리용한 페로브스카이트형빛전지의 제조에 미치는 몇가지 요인의 영향

백충성, 김별, 고성국, 류권일

페로브스카이트형빛전지는 제작원가가 낮고 효율이 높은것으로 하여 지금 세계적으로 이 빛전지에 대한 연구가 광범히 진행되고있다.[1-3] 페로브스카이트형빛전지에서 빛증감제로 리용되는 페로브스카이트는 흡수결수가 크고 전하나르개의 수명이 길며 전자확산길이가 긴 우점을 가지고있으며 여러가지 방법으로 제조할수 있다.[1] 2단계연속침적법[2]은 페로브스카이트제조에서 많이 리용되고있지만 구체적인 제조조건들이 명백히 밝혀지지 않았다.

우리는 2단계연속침적법을 리용한 페로브스카이트제조에 미치는 몇가지 요인의 영향을 연구하였다.

### 재료와 방법

실험재료 페로브스카이트제조에 리용한 요드화메틸암모니움( $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}$ )은 선행연구[2]방법에 따라 자체로 합성한것이며 요드화연( $\text{PbI}_2$ ), 염화연( $\text{PbCl}_2$ ), 디메틸포름아미드(DMF), 이소프로필알콜은 분석순이다. 치밀층제조에 리용한 티탄이소프로폭시드아세틸아세톤과 격리층제조에 리용한 산화지르코늄( $\text{ZrO}_2$ ), 상대극으로 리용한 탄소도 분석순이다.

빛전지용전도기판으로는 불소도포산화석투명전도성유리(FTO, 《LOF》)를 리용하였다. 나노결정성의  $\text{TiO}_2$ 층,  $\text{ZrO}_2$ 층, 탄소층은 채인쇄기를 리용하여 전도성유리우에 채인쇄하여 형성시켰다.

페로브스카이트의 가시선흡수스펙트르는 자동기록식분광광도계(《DU730》)로 측정하였다. 빛전지성능은  $100\text{mW}/\text{cm}^2$ 의 빛조건에서 수자식회로시험기(《UT51》)로 측정하였다. 광원으로는 할로겐등(500W)을 리용하였으며 비침도는 조도계(《ЛЮКМЕТР IO116》)로 측정하였다.

실험방법 전도성유리를  $2\text{cm} \times 3\text{cm}$ 의 크기로 자르고 레이자부식법으로 음극과 양극을 분리시킨 다음 증류수, 에타놀로 초음파세척하였다. 티탄이소프로폭시드아세틸아세톤용액을 분무열분해법으로  $450^\circ\text{C}$ 에서 전도성유리우에 입혀 치밀층을 형성시켰다. 치밀층우에  $\text{TiO}_2$ 과  $\text{ZrO}_2$  파스타를 채인쇄법으로 입히고  $450^\circ\text{C}$ 에서 30min동안 소결하여 나노결정성  $\text{TiO}_2$ 층과 격리층을 제조하였다. 탄소파스타를 채인쇄법으로 입히고  $400^\circ\text{C}$ 에서 30min동안 소결하여 탄소층을 형성시켰다.

빛증감제의 침적은 2단계연속침적법[2]으로 진행하였다.

$\text{PbI}_2$ 과  $\text{PbCl}_2$ 을 3 : 1의 물질량비로 DMF용액에 풀어 선구체용액을 제조하였다. 이 선구체용액을 각이한 온도( $60 \sim 100^\circ\text{C}$ )의 다공성층( $\text{TiO}_2/\text{ZrO}_2/\text{탄소}$ )우에 침적시키고  $70^\circ\text{C}$ 에서

15min동안 열처리하였다. 선구체용액이 침적된 전극을 농도가 각이한  $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}$ 의 이소프로필알콜용액에 각이한 시간동안 담그었다가 꺼내어  $70^\circ\text{C}$ 에서 30min동안 처리하여 페로브스카이트형빛전지를 제조하였다.

## 결과 및 논의

2단계연속침적법을 리용하여 선구체용액을 각이한 온도로 가열된 FTO결면위에 침적시켜 제조한 페로브스카이트의 가시선흡수스펙트르를 측정하였다. 온도에 따르는 페로브스카이트의 가시선흡수스펙트르는 그림 1과 같다.

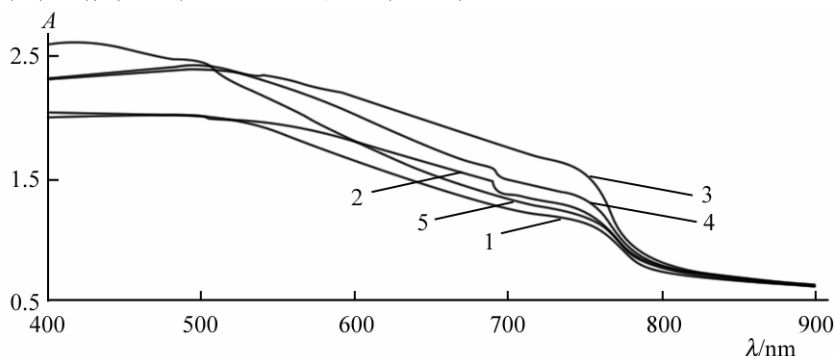


그림 1. 온도에 따르는 페로브스카이트의 가시선흡수스펙트르

그림 1에서 보는바와 같이 기판온도가 증가함에 따라  $750\text{nm}$ 에서의 흡수봉우리는 증가하였는데 기판온도가  $80^\circ\text{C}$ 일 때 제일 높고 그 이상에서는 감소하였다. 이것은 선구체용액을 침적시킬 때 기판온도에 따라 페로브스카이트층의 피복도가 달라지기때문[4]이라고 볼수 있다.

선구체용액의 침적온도에 따르는 빛전지의 효율은 그림 2와 같다.

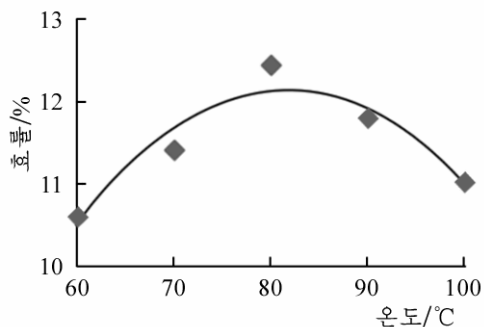


그림 2. 선구체용액의 침적온도에 따르는 빛전지의 효율

그림 2에서 보는바와 같이 온도가 증가함에 따라 빛전지의 효율은 증가하였는데  $80^\circ\text{C}$ 에서는 12.43%로서 최대값을 나타내고 그 이상에서는 감소하였다. 이것은 온도가 증가함에 따라 페로브스카이트층의 빛흡수능력이 증가하기때문이라고 볼수 있다.  $80^\circ\text{C}$ 이상의 온도에서 빛전지의 효율이 감소하는것은 선구체용액에 의해 침적된  $\text{PbI}_2$ 막이 너무 치밀해져  $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}$ 가 잘 침투하지 못하여 페로브스카이트로 완전히 전환되지 못하기때문[4]이라고 볼수 있다.

선구체용액을  $80^\circ\text{C}$ 의 다공성층위에 침적시키고 이 전극을 농도가 각이한  $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}$ 의 이소프로필알콜용액에 잠그어 제작한 빛전지의 효율을 검토하였다.  $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}$ 용액의 농도에 따르는 빛전지의 효율은 그림 3과 같다.

그림 3에서 보는바와 같이  $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}$ 의 농도가 증가할수록 빛전지의 효율은 증가하였으며  $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}$ 의 농도가  $10\text{mg/mL}$ 일 때 효율이 12.45%로서 최대값을 나타내고 그 이상의 농도에서는 감소하였다. 이것은  $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}$ 의 농도가 증가할수록  $\text{PbI}_2$ 과  $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}$ 가 반응하여 페

로브스카이트로 전환되는 속도가 빨라지기때문이다. 10%이상의 농도에서 빛전지의 효율이 감소하는것은 파인된  $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}$ 와 다공성층표면의  $\text{PbI}_2$ 이 반응하여 다공성층표면에 치밀한 페로브스카이트층이 형성되는것으로 하여 용액속의  $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}$ 가 다공성층의 안쪽으로 확산되기 힘들어지기때문에  $\text{PbI}_2$ 이 완전히 페로브스카이트로 전환되지 못하기때문[5]이라고 볼수 있다.

선구체용액을  $80^\circ\text{C}$ 의 다공성층우에 침적시키고 이 전극을 농도가  $10\text{mg/mL}$ 인  $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}$ 의 이소프로필알콜용액에 각이한 시간동안 잠그어 제작한 빛전지의 효율을 검토하였다.  $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}$ 용액에 잠그는 시간에 따르는 빛전지의 효율은 그림 4와 같다.

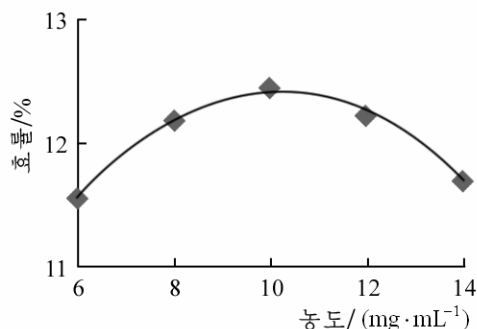


그림 3.  $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}$ 용액의 농도에 따르는 빛전지의 효율

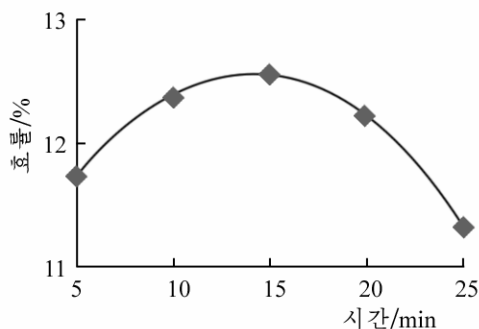


그림 4.  $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}$ 용액에 잠그는 시간에 따르는 빛전지의 효율

그림 4에서 보는바와 같이  $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}$ 용액에 잠그는 시간이 길수록 빛전지의 효율은 증가하였는데 시간이 15min일 때 빛전지의 효율이 12.55%로서 최대로 되고 그 이상에서는 감소하였다. 이것은 잠그는 시간이 길수록  $\text{PbI}_2$ 이 페로브스카이트로 충분히 전환되기때문이다. 잠그는 시간이 더 길어지면 빛전지의 효율이 감소하는것은  $\text{PbI}_2$ 과  $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}$ 의 반응에 의하여 형성된 페로브스카이트가 시간이 지남에 따라 분해되기때문[6]이라고 볼수 있다.

## 맺는 말

2단계연속침적법을 리용하여  $\text{PbI}_2$ 과  $\text{PbCl}_2$ 이 혼합된 선구체용액으로 페로브스카이트형 빛전지를 제작할 때 선구체용액의 침적온도가  $80^\circ\text{C}$ ,  $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}$ 용액의 농도가  $10\text{mg/mL}$ , 잠그는 시간이 15min일 때 빛전지의 효율이 최대로 된다.

## 참고 문헌

- [1] Cheng Bi et al.; J. Mater. Chem., A 2, 18508, 2014.
- [2] Lingling Zheng et al.; Nanoscale, 6, 8171, 2014.
- [3] P. F. Ndione et al.; J. Mater. Chem., A 3, 21940, 2015.
- [4] A. G. Martin et al.; Adv. Energy Mater., 6, 15021041, 2016.
- [5] Wen Wang et al.; Nanoscale Research Letters, 11, 3161, 2016.
- [6] Yi Luo et al.; Journal of Power Sources, 311, 130, 2016.

## **Influence of Some Factors for Perovskite Solar Cell Fabrication using Sequential Deposition Method**

*Paek Chung Song, Kim Pyol, Ko Song Guk and Ryu Kwon Il*

When we prepared the perovskite solar cell from a precursor solution mixed with  $\text{PbI}_2$  and  $\text{PbCl}_2$  using two-step sequential deposition method, the deposition temperature of precursor solution is  $80^\circ\text{C}$  and a concentration of  $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}$  solution is 10mg/mL, dipping for 15min into a solution of  $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}$ . In this case the performance of solar cell is the highest.

Key words: perovskite, sequential deposition method, perovskite solar cell