Current Photovoltaic Research 6(3) 74-80 (2018)
DOI:https://doi.org/10.21218/CPR.2018.6.3.074
pISSN 2288-3274
eISSN 2508-125X

반투명 페로브스카이트 태양전지용 투명전극 소재

이필립[1)]* · 고민재[2)]*
[1)]광전하이브리드 연구센터, 한국과학기술연구원, 서울특별시, 02792
[2)]화학공학과, 한양대학교, 서울특별시, 04763

Transparent Electrodes for Semitransparent Perovskite Solar Cells

Phillip Lee[1)]* · Min Jae Ko[2)]*
[1)]Photo-electronic Hybrids Research Center, Korea Institute of Science and Technology, Seoul 02792, Korea
[2)]Department of Chemical and Engineering, Hanyang University, Seoul 04763, Korea

Received July 1, 2018; Revised July 11 , 2018; Accepted July 11, 2018

ABSTRACT: Recently, perovskite solar cells have shown tremendous improvement in power conversion efficiencies. Moreover, they have potential in semitransparent solar cell applications due to their high absorption coefficients. In order to fabricate semitransparent perovskite solar cells with good performance, it is essential to consider the suitability of transparent electrode materials in various aspects, such as transparency, conductivity and fabrication process. In this review, candidate materials for transparent electrodes in perovskite solar cells including carbon-based nanomaterials, conductive polymers and metallic nanostructures are discussed.

Key words: Transparent electrode, Semitransparent solar cell, Perovskite solar cell

1. 서 론

유가 불안정, 이산화탄소 및 미세먼지 배출로 인한 환경 문제, 기후변화 협약 규제에 따른 리스크 증가 및 탄소비용 이슈는 현재 전기 에너지 발전의 큰 비중을 차지하는 화력 발전의 한계를 보여준다. 이에 대하여 지속 가능하면서도 무한한 신재생 에너지에 대한 중요성과 필요성에 대한 인식이 높아지고 있다. 또한 원전의 단계적 감축 및 청정 에너지의 확대를 핵심으로 하는 현 정부의 탈원전 에너지전환 정책은 이러한 흐름을 가속화 시킬 것으로 전망된다. 이러한 가운데 태양전지는 에너지 수요 증가 및 탄소저감의 미래에너지 이슈 측면에서 중추적인 역할을 할 것이라는 기대감이 크다.

태양전지가 기존 발전 시스템을 대체하기 위해서는 최우선적으로 태양전지 성능 향상이 이루어져야 한다. 성능이라 함은 높은 광전변환효율, 고내구성, 대면적 모듈 공정 적합성, 탠덤화 가능성, 유연성 등 다양한 인자를 포함한다. 일조량이 좋은 사막 혹은 초원에 대규모로 설치하던 초기 태양발전시스템의 경우 광전변환효율, 내구성 등 태양광 발전이라는 소자 본연의 목적에 충실한 인자가 중요했던 반면, BIPV (Building Integrated Photovoltaic System) 및 VIPV (Vehicle Integrated Photovoltaic System)로 대표되는 도심형 발전시스템에서는 투광성, 다채로운 컬러 제어 가능성 등의 인자들이 새롭게 주목을 받고 있다. 또한 휴대용 IT기기 보급과 관련된 이동형 에너지에 대한 수요 증가는 웨어러블 소자화를 위한 태양전지의 유연성, 투광성 인자에 대한 관심으로 이어지고 있다.

우리나라의 경우, 지리적 한계를 극복하기 위한 도심형 발전 시스템에 대한 관심이 높아지고 있다. 이는 넓은 대지를 필요로 하던 초기 발전 시스템과 비교하였을 때, 전기부하 발생 지점에서 전력생산이 이루어지기 때문에, 태양광발전설비 설치의 높은 비율을 차지하는 별도 부지 활용 비용 및 구조물 설치가 따로 필요하지 않다는 장점을 갖는다. 이에 따라 도심형 발전 시스템의 핵심인 태양전지 투광성을 확보하는 기술이 주목을 받고 있다. 투광성이 확보된 태양전지는 창호형 태양전지로써 건물 외벽, 자동차 창문 등에 적용하여 한정된 공간의 제약을 극복할 수 있을 뿐만 아니라, 기존에 설치되어있는 실리콘 태양전지 발전 시스템에 탠덤 형태로 집적함으로써, 추가적인 발전이 가능하다는 점에서 장점이 많은 기술이다.

*Corresponding author: phillip@kist.re.kr; mjko@hanyang.ac.kr

ⓒ 2018 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.

2. 반투명 페로브스카이트 태양전지

페로브스카이트 태양전지는 2009년 처음 보고된 이후, 광전변환효율의 급격한 신장을 이루었으며, 최근 23.3%의 효율이 미국재생에너지연구소(NREL) 차트에 공식 등재되었다. 페로브스카이트는 AMX_3 분자식을 가지며, A 사이트에는 유무기 양이온, B 사이트에는 금속 양이온, X 사이트에는 할로겐 음이온으로 구성된다. 페로브스카이트 물질은 높은 개방 전압, 높은 유전율 및 흡광계수, 낮은 엑시톤 결합 에너지, 전하의 긴 확산거리 등의 특성으로, 고성능의 태양전지 제작이 가능하며, 용액공정에 따른 양산 적합성 및 가격 측면에서 경쟁력을 갖는다. 특히 높은 흡광계수로 인하여 박막화가 가능하다는 점은 투명 태양전지로써의 가능성을 높이는 부분이다.

페로브스카이트 태양전지가 투과도를 갖기 위해서는 각 층의 투과도를 확보하는 것이 중요한데, 특히 기존의 불투명한 금속전극을 투명전극으로 대체하는 것이 중요하다. 전도성 물질을 활용한 투명전극 적용시에는 투과도, 전도도, 내구성, 전극 표면 거칠기 및 계면 물성 제어, 공정 적합성 등 다양한 요소에 대한 고려가 필요하다. 본론에서는 반투명 페로브스카이트 태양전지에 적용 가능한 투명전극 물질 및 활용예에 대해서 논의하고자 한다.

3. 반투명 페로브스카이트 투명전극 소재

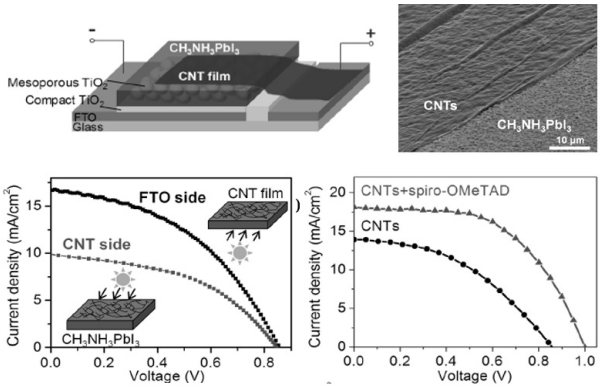
기존 반투명 페로브스카이트 태양전지 연구는 기존에 투명 하부전극으로 종종 활용되는 FTO (Fluorine- doped Tin Oxide) 혹은 ITO (Indium Tin Oxide) 전극은 그대로 활용하면서, 불투명한 상부전극을 투명전극 소재로 대체하는 방식이 다양한 연구그룹에서 제안되었다. 투명 전도성 산화물, 탄소나노물질, 전도성 폴리머, 금속 기반 투명전극 등 다양한 물질이 투명한 상부전극으로써 활용이 시도되고 있다.

3.1 탄소 나노물질

탄소 나노물질은 전기 전도성, 투과성, 안정성 측면에서 우수한 물성값을 보이며, 나노구조에 따른 다양한 투명화 전략이 가능하기 때문에 투명전극 분야에서 높은 관심을 받고 있다. 또한 기계적 굽힘 하에서 인가되는 인장에 대한, 탄소 나노구조체의 효율적인 응력 분산은 고유연소자 적용에 유리하다.

3.1.1 탄소나노튜브

CNT는 발견당시에 높은 전하 mobility와 전기 전도성으로 큰 주목을 받았으며, 이후 다양한 공정기술이 제안되었다. CNT는 용액 분산이 가능하기 때문에, 스프레이코팅, 바코팅, 스크린 프린팅, 스핀코팅, 딥코팅, 여과법 등 다양한 용액공정 활용이 가능하다. 또한 탄소 계열 물질이 가지는 높은 내열성, 내화학성을



ACS Nano **2014**, *8*, 6797

Fig. 1. Perovskite solar cell with carbon nanotubes film electrode

기반으로 한 고내구성 소자 측면에서 장점이 크며, 높은 기계적 유연성을 갖는다. CNT를 활용한 전도체 구조물은 pre-stain 없이도 150%의 strain을 버틸 수 있음이 보고되었으며[1], 정렬된 CNT의 경우 더 우수한 인장성을 갖는 것으로 알려져 있다. 하지만 CNT를 용액에 분산시키기 위해서는 분산제 혹은 계면 활성제가 필요한데, 이러한 물질들은 필름 형성 이후, CNT 간 전류 흐름을 방해하는 요소로 작용하는 이슈가 있다. 이로 인하여, CNT 랜덤 메쉬 네트워크로 만들어진 투명전극 필름은 CNT간의 높은 컨택 저항으로 인하여, 기대에 미치지 못하는 투명도 대비 전도성을 보이는 경우가 많다. 이를 해결하기 위한 다양한 합성법 및 열처리/산처리 등의 후처리 공정이 제안되었으며, 이는 상당부분 전도성 및 필름 편평도 측면에서 효과를 보인다. SWCNT를 활용할 경우 90% 투과도에 30 Ω/sq의 낮은 면저항 값을 갖는 투명전극의 제조가 가능하나[2], SWCNT는 낮은 수율로 인한 높은 단가의 제약이 따르기에 상용화 측면에서 경쟁력이 낮다.

Mhaisalkar 그룹에서는 Fig. 1에서와 같이 CNT를 페로브스카이트 층에 직접 올리는 접근법을 활용한 반투명 페로브스카이트 태양전지를 제작하였다[3]. 공정상 CNT 전극과 페로브스카이트 층과의 좋은 contact을 위하여, CNT 박막층을 톨루엔으로 적셔주었으며, 이후 톨루엔 증발시 나타나는 표면장력을 활용하여 접촉효과를 높였다. FTO에 비하여 CNT 전극의 전도성 대비 투과도가 떨어지기 때문에, CNT 전극쪽에서 빛이 조사될 경우, FTO에 조사될 경우에 비하여 낮은 광전변환효율을 보인다. FTO 전극쪽에서 빛이 조사된 경우에는 6.29%, CNT 쪽에서 빛이 조사된 경우에는 3.88%의 광전변환효율을 보인다. CNT와 페로브스카이트 층 사이에 spiro-OMeTAD층을 삽입하여 홀전도체 복합체로 활용하는 경우에는 광전변환효율은 9.90%로 증가한다.

3.1.2 그래핀

탄소원자 단일층 구조를 갖는 그래핀은 높은 투명도, 우수한

전기전도성, 기계적 유연성 등 투명전극으로 활용되기에 유리한 성질을 갖는다. 또한 탄소소재의 특성상 높은 안정성을 가지며, gas barrier로써 소자 수명에 영향을 미칠 수 있는 환경 요소로부터 차단막 역할을 할 수 있다. CVD (Chemical Vapor Deposition) 방식으로 성장된 그래핀은 연속된 하나의 시트로써 대면적 제작이 가능하기 때문에, CNT 메쉬 네트워크에서 나타나는, 탄소 나노물질간 높은 접촉 저항에 따른 필름 전도성 저하문제가 없다. 하지만, 대면적에 대하여 우수하고 균일한 그래핀 막질을 얻기 위한 공정 가격이 높고, 투명도 대비 전도성 향상을 위한 고온 공정 혹은 도핑 산처리 공정이 필요하다는 점은 양산 측면에서 부담이 되는 부분이다.

이와 더불어, 용액내 박리법 및 산화그래핀 환원법 등 용액공정이 가능한 접근법 역시 제안되었는데, 이 경우에는 CNT 메쉬 네트워크와 마찬가지로 탄소 나노물질간 높은 컨택 저항으로 인한, 필름의 전도성 저하 현상이 나타난다. 이렇게 형성된 투명전극은 CVD 방식으로 제작된 전극에 비해 우수한 성능의 투명전극을 기대하기가 어렵다.

Yan 그룹에서는 Fig. 2와 같이 CVD 성장된 그래핀 시트와 전도성 폴리머 PEDOT:PSS를 복합체 투명전극 형태로 활용한 반투명 페로브스카이트 연구를 선보였다[4]. 한 장의 그래핀 시트를 단독으로 활용할 경우 1000 Ω/sq 이상의 면저항 값을 갖는데 반하여, PEDOT:PSS와 복합체로 함께 활용하면, 면저항 값이 260 Ω/sq로 급격히 향상된다. 이러한 효과는 전도성 향상을 위해 그래핀 시트 개수를 늘렸을 때에도 마찬가지이며, 해당 연구에서는 2장의 그래핀 시트와 PEDOT:PSS를 적용한 경우, 제작된 소자 중 가장 높은 광전변환효율을 보였다. 태양전지가 제대로 작동되기 위해서는 PEDOT:PSS층과 spiro-OMeTAD 층과의 접촉이 중요한데, D-sorbitol 물질을 활용하여 PEDOT:PSS의 접착성을 높였다. 그래핀 투명전극의 투과성이 워낙 좋기 때문에, 광전변환효율이 빛이 조사되는 방향에 크게 의존하지 않으며, 빛 조사방향에 따라, 각각 12.02% (FTO 전극), 11.65% (그래핀 시트)의 값을 보였다.

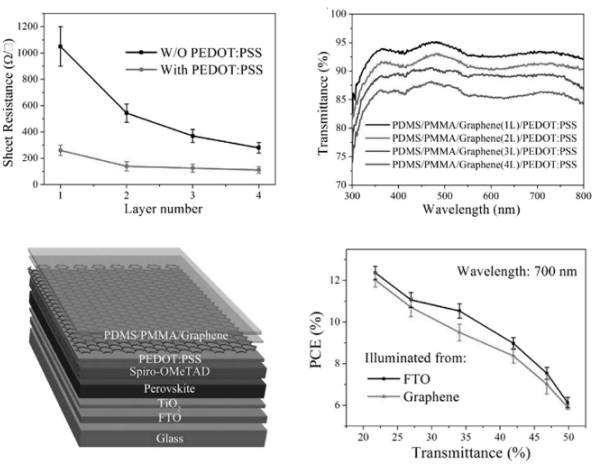
3.2 전도성 폴리머

PEDOT:PSS는 높은 유연성, 투광성, 전기 전도성으로 인하여 투명전극으로 활발하게 활용되는, 대표적인 전도성 폴리머이다. PEDOT:PSS는 용액 공정이 가능하고, 다른 유기층과의 우수한 접촉성을 가지기 때문에, 앞서 거론된 그래핀의 경우처럼 다른 전도성 재료와 복합체로써 투명전극으로 활용되는 예가 많다. 특히, 전도성 나노물질은 도포 이후, 표면 평탄화 혹은 전도성 물질이 덮이지 않은 부분에서의 전하 손실 이슈가 있는데, PEDOT:PSS는 두가지 이슈에 대한 보완이 가능하다. 개발 초기 당시에는 ITO와 비교하여 투명전극 특성이 좋지 않았으나, 다양한 물질과의 혼합 및 후처리 공정을 통해 전도성 측면에서도 큰 향상을 이루었다. 특히 상용화된 고전도성 PEDOT:PSS (Celvios PH1000)는 높은 투과도 대비 전도성 특성을 갖기 때문에, 단독으로 투명전극으로 활용되기도 한다. 하지만, 수분 베이스의 PEDOT:PSS 용액을 소자에 활용할 때, 일반적으로 소수성을 갖는 유기물질층에 도입하기가 쉽지 않다는 점과, 고온 혹은 습한 환경에서 발생하는 안정성 문제는 제조된 투명전극의 상용화에 걸림돌이 되고 있다.

Yang 그룹에서는 normal type의 상부전극을 PEDOT:PSS 투명전극으로 대체한 반투명 페로브스카이트 태양전지를 제작하였다[5]. 150 nm의 PEDOT:PSS 투명전극은 PDMS 기판상에 제조된 이후, Spiro-OMeTAD층 위로 전사공정을 통해 옮겨졌으며, 만들어진 PEDOT:PSS 층은 Fig. 3의 SEM 사진에서처럼 Spiro-OMeTAD 층과 좋은 컨택을 이루고 있다. 해당 태양전지는 23%의 AVT (average visible light transmittance)에서 8.21%의 광전변환효율을 보인다.

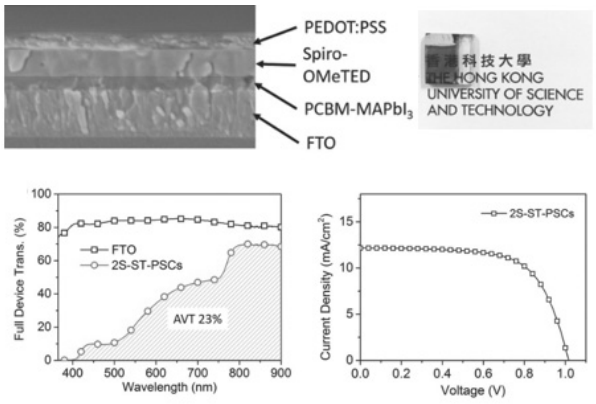
3.3 금속 기반 투명전극

금속은 풍성한 자유전자를 기반으로 높은 전기 전도성을 가



Adv. Mater. **2015**, *27*, 3632

Fig. 2. Perovskite solar cell with graphene electrodes



Adv. Mater. Interfaces **2016**, *3*, 1600484

Fig. 3. Perovskite solar cell with highly conductive PEDOT:PSS

지며, 이를 바탕으로 전극의 주소재 물질로 활용되고 있다. 또한 금속 자체가 가지는 유연성은 유연소자 적용에 적합하다. 이를 투명전극으로 활용하기 위해서는, 기존의 금속 증착과는 다른, 투광성을 확보하는 접근법이 필요하다.

3.3.1 초박막 금속층

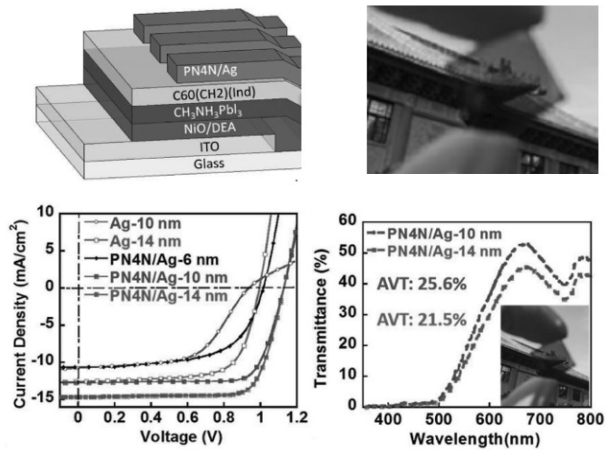
금속을 20 nm 이하의 얇은 박막으로 쌓게 되면, 투광성을 갖는 전극을 만들 수 있다. 금속 박막 두께에 따라 전극의 투과도와 전도성 제어가 가능하며, 증착기술이 기확보된 다양한 금속에 대해서 쉽게 시도할 수 있는 기술이기 때문에, 투명화 접근이 용이하다는 장점이 있다. 우수한 투명전극을 얻기 위해서는 박막내 금속 입자의 균일도 및 두께 측면에서 섬세한 제어가 필요하다. 예를 들어, 투과도를 높이기 위하여 금속박막을 얇게 도포하는 경우, 필름상 금속입자가 균일하지 못하면, 전도성이 확보되지 못하고, 필요한 전도성을 확보하기 위해 금속입자를 추가적으로 도포하게 되면, 투과도가 급격히 저하된다. 균일한 금속입자의 증착을 위해서는, 증착하는 금속물질과 증착 되어지는 기판부 물질간에 표면 에너지와 같은, 영향을 주는 인자에 대한 고려가 필요하다. 이와 더불어 금속층을 얇게 만들수록 주변의 환경에 더 민감하게 반응하기 때문에, 주변 습도 혹은 산소에 영향이 큰 금속은 박막 투명전극 적용에 부담이 있으며, 이에 따른 봉재기술을 요하는 경우가 많다. 또한 투광도가 파장에 따라 다르다는 점은 에너지 소자 활용측면에서 제한적인 요소가 될 수 있다.

Cao 그룹에서는 Fig. 4에서와 같이 은을 초박막 투명전극으로 활용하여 반투명 페로브스카이트 태양전지 연구에 활용하였다[6]. 투명한 금속 박막을 $C_{60}(CH_2)$ 전하수송층 위에 얇게 증착할 경우, 표면에너지가 매칭이 되지 않아 은의 island growth 현상이 발생하는 등, 좋은 막질을 얻기가 어렵다. $C_{60}(CH_2)$ 층과 금속박막 사이에 PN_4N을 삽입하게 되면 은과 amine 사이의 강한 bonding으로 인하여, 얇으면서도 균일한 은 박막을 얻을 수 있게 된다. 제조된 반투명 페로브스카이트 태양전지는 25%, 21%의 AVT에서 각각 11%, 12.6%의 광전변환효율 성능을 보였다.

3.3.2 DMD (Dielectric/thin–metal/ dielectric) 다층 박막 전극

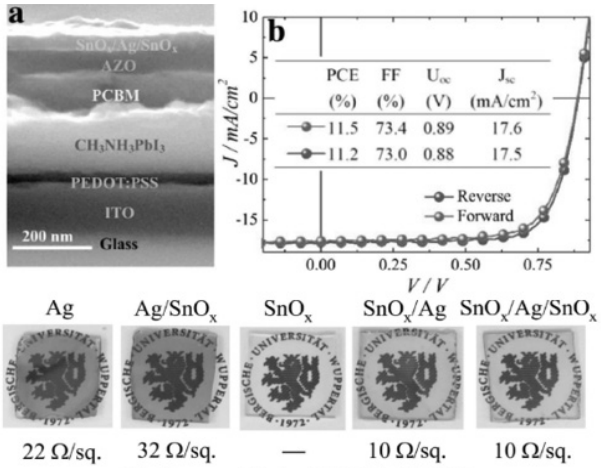
상기 언급된 초박막 전극이 갖는 한계를 극복하는 방법으로써, DMD (Dielectric–Metal–Dielectric) 다층 박막 전극 접근법이 제안되었다. Dielectric 물질로는 산화물이 많이 활용되기 때문에, 이 경우에는 OMO (Oxide-Metal- Oxide)로 명명하기도 한다. 초박막 금속층이 두 개의 dielectric 층으로 쌓여있는 구조로 이루어져 있으며, 금속층은 투명전극의 전기전도성을 결정짓고, dielectric 층은 층상 구조간 광학간섭 및 표면 플라즈몬 효과에 따른 투광도 향상 역할을 한다. 이러한 접근법은 초박막 금속단일층을 투명전극으로 활용하는 경우에 비하여, 투명도 향상 효과가 있다. dielectric 층에는 MoO3, ZnO, WO3, V2O5, ZnS, ITO, PEDOT:PSS 등 다양한 물질이 쓰이고 있으며, 얇은 박막층은 금, 은, 구리, 알루미늄 등이 활용되고 있다. 은의 경우, 가시광선 영역에서 흡수도가 작아 자주 활용되는 물질 중 하나이며, 구리를 활용하면 단가측면에서 경쟁력을 갖는다. Oxide 혹은 dielectric 물질의 두께는 대략 60 nm 이하의 값을 가지며, 중간에 위치하는 금속층은 10~20 nm 두께로 활용되는 경우가 많다. 또한 얇게 만들어진 DMD 전극은 ITO와 비교하여 향상된 유연성을 가진다. 하지만, 각층의 두께 및 균일성이 제작된 투명전극의 성능에 직결되며 진공 증착방식에 의존한다는 점은 대면적 공정 및 단가 측면에서 불리한 점이다.

Riedl 그룹에서는 Fig. 5와 같이 반투명 페로브스카이트 태양전지를 위한 DMD 투명전극으로써 SnO_X-Ag-SnO_X 전극을 활용하였다[7]. 해당 전극은 DMD 구조의 다층 박막 간섭에 따른 투과도 향상 효과를 보이며, 전기적으로도 향상된 면저항 값을 보인다. AZO 혹은 유리기판 위에 Ag를 얇게 증착하는 경우에는 Ag 입자 분포가 불균일하여 면저항값이 상대적으로 높은데, 저



Adv. Energy Mater. **2017**, *7*, 1602333

Fig. 4. Perovskite solar cell using an ultrathin transparent Ag as cathode



Adv. Energy. Mater. **2017**, *7*, 1602599

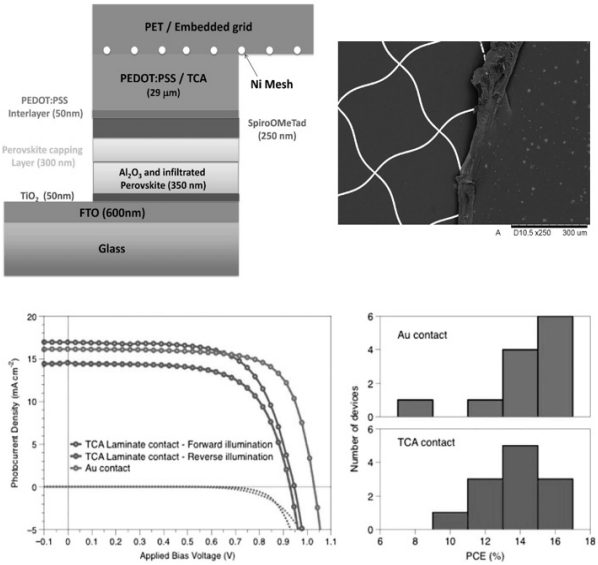
Fig. 5. Perovskite solar cell employing a dielectric-thin metal-dielectric multilayer electrode

온 ALD (Atomic Layer Deposition) 공정으로 만든 SnO_X층 위에 균일하고 매끈하게 증착된 Ag는 우수한 투과도와 우수한 전도성을 보였다. 즉, 7 nm의 은 전극은 평균투과도 59%, 22 Ω/sq의 면저항값을 갖는데 반해, SnOx위에 증착된 후, 다시 SnO_X 층으로 덮여진 은 전극은 평균투과도 81%, 10 Ω/sq의 면저항값으로 성능이 향상된다. SnO_X 층은 전기적 전도성을 띄면서도, 핀홀이 없는 습기 차단제 역할을 하기 때문에 안정성을 크게 향상시킨다. 또한, 페로브스카이트층으로부터 은의 할로겐화를 방지함으로써, 부식을 방지한다. 만들어진 반투명 페로브스카이트 태양전지는 17% AVT에 대하여, 11.8%의 광전변환효율을 갖는다.

3.3.3 금속 격자

금속 격자 구조 투명전극은 격자구조를 이루는 불투명한 금속층의 전도성을 활용하면서, 격자구조 사이에 비어있는 윈도우 부분을 투과도 측면에서 활용하는 공리적 접근법을 취한다. 금속 격자는 두께에 따라서 전도성을 조절할 수 있으며, 윈도우가 차지하는 비율이 투과도를 결정짓게 된다. 해당 방식으로 만들어진 투명전극은 투과도 대비 우수한 전도성을 보이나, 전도성 향상을 위하여 두꺼운 금속층을 쌓게 되면, 소자 혹은 투명전극 필름의 편평도 및 컨택 이슈가 있기 때문에, 이를 해결하기 위하여 PEDOT:PSS와 같은 투명전극 소재와 함께 복합체로써 활용되곤 한다. Guo 그룹에서는 나노임프린팅을 활용하여, 나노스케일의 격자구조를 만드는 기술을 선보였으며, 제조된 투명전극은 뛰어난 전도성 및 투과도를 보인다. 하지만 나노임프린팅 공정상, 넓은 면적에 대하여 균일한 격자 형성 난이도가 높다는 점이 상용화에 어려움으로 지적되고 있다. 최근에는 진공공정을 필요로 하지 않는, 메탈 나노파티클 전도성 잉크를 활용하여 금속 격자를 만드는 접근법이 선보여지고 있으며, 다양한 가능성을 보여주고 있다.

Worsley 그룹에서는 Fig. 6에서와 같이 PET 기판내 함침되어있는 니켈 격자 투명전극을 활용하여 반투명 페로브스카이트 태양전지를 구현하였다[8]. 해당 니켈 격자 투명전극은 1.2 Ω/sq의 우수한 lateral conductivity를 가질 뿐만 아니라, 니켈은 물질자체가 페로브스카이트 적용시 안정성이 뛰어나다는 장점을 갖는다. 니켈 격자 자체로도 높은 전도성을 갖기는 하지만, 전기적 접촉성 향상 및 페로브스카이트 층으로부터의 효율적인 hole extraction을 위해 PEDOT:PSS 기반의 TCA (Transparent Conducting Adhesive)를 코팅하여 복합체 구조로 활용하였다. 해당 전극은 normal type에서 상부전극으로 활용되었으며, 하부층의 손상을 최소화하기 위하여, 압력에 의해 접착성을 갖는 TCA를 라미네이트 공정을 통해 붙이는 방식으로 제조되었다. 해당 페로브스카이트 태양전지는 15.5%의 광전변환효율을 가지며, 상부전극을 금 전극으로 대체하는 경우 갖게되는 16.7%의 광전변환효율과 비교해도 큰 차이없는 성능을 보였다. 활용



Adv. Mater. **2014**, *26*, 7499

Fig. 6. Perovskite solar cell combining a metal grid with a transparent conducting contact adhesive

된 니켈 격자구조 PET 기판은 Epigem사의 Epimesh 300 제품을 활용하였으며, 해당제품의 가격이 ITO/PET 기판 대비 절반이라는 점은 향후, 반투명 페로브스카이트 태양전지 분야에서 금속격자 전극의 다양한 가능성을 기대하게 한다.

3.3.4 금속 나노와이어

금속 나노와이어를 활용한 전극은 높은 투과도 대비 전도성을 바탕으로 투명전극 분야에서 최근 많은 기대를 받고 있는 물질 중 하나이다. 은, 구리, 금 나노와이어가 대표적으로 쓰이고 있으며, 물 혹은 유기용매에 분산된 형태로 활용이 된다. 따라서 용액공정에 적합한 다양한 공정접근이 가능하며, 다양한 도포방식을 통해 만들어지는 랜덤 메쉬 구조는 우수한 전도성, 투과도, 기계적 유연성을 갖는다. 하지만 금속 나노와이어의 분산을 위해 나노와이어 표면에는 일반적으로 폴리머물질로 capping이 되어있기 때문에, 필름형성 이후 나노와이어간 연결부에서의 접촉 저항을 높이는 원인이 되고 있다. 이에 따라, 이러한 연결부 의 전기적 특성을 향상시키기 위한 열처리, 기계적 프레스 공정, 무전해 welding, 광학소결법 등의 다양한 후처리 공정이 제안되었다. 또한 연결부의 높은 접촉 저항을 최소화하기 위하여, 나노와이어의 종횡비를 높임으로써, 면저항값을 낮추기 위한 접근법도 활용이 되고 있다. 즉, 나노와이어의 직경 대비 길이를 늘이기 위한 다양한 합성법이 제안되었으며, 긴 나노와이어를 활용하여 만들어진 유연 전극은 투과도 대비 전도성 뿐만 아니라, 유연성 측면에서도 응력분산에 더 효율적인 특성을 보인다[9].

금속 나노와이어를 이용한 접근법은 투명도 대비 전도성 측면에서 기존 ITO와 경쟁할만한 성능을 보여주고, 용액공정 및 저온소성이 가능하다는 측면에서 강점이 많은 재료이다. 하지

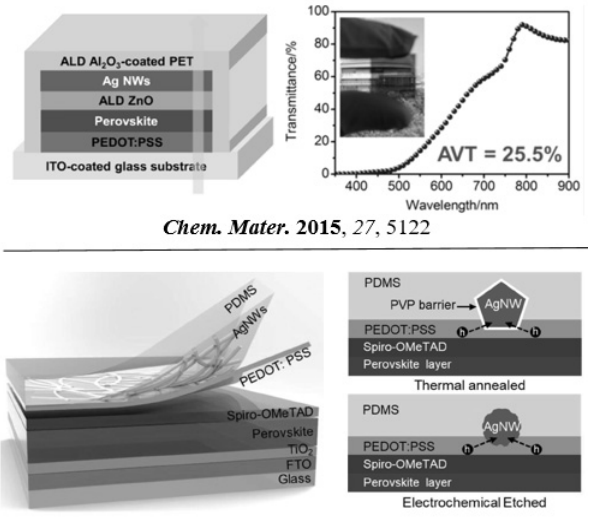


Fig. 7. Perovskite solar cell employing silver nanowires as transparent top electrode

만 migration 현상을 포함하여, 연결부 상태가 균일하지 않은 경우 국소적인 나노와이어를 통해 흐르는 전류에 쉽게 전극이 망가지는 현상은 극복해야할 이슈 중 하나이다. 또한 금속 격자구조와 마찬가지로 유기물질층과의 접촉 이슈가 있으며, 앞서 소개한 타 나노물질과 비교하였을 때, 투명전극 표면의 거칠기가 매우 높다. 이러한 특성은 특히 에너지소자에서 전하수송 능력을 현저히 떨어뜨리기 때문에, 이를 극복하기 위한 접근법이 필요하다.

Fig. 7에서와 같이 은 나노와이어를 반투명 페로브스카이트에 적용하고자 하는 다양한 시도가 있었는데, 그중에서 은 나노와이어를 ZnO층 위에 도포하는 접근법은 태양전지의 안정성, 효율성 측면에서 좋은 효과를 나타냈다. ZnO층은 은 나노와이어 도포시 하부층의 손상을 줄일 수 있고, 전자수송을 원활하게 하는 에너지레벨 및 옴 접촉을 제공한다.

Chang 그룹에서는 치밀한 ZnO 구조를 위해 ALD ZnO를 활용하였으며, 25.5%의 AVT에서 각각 10.8%의 광전변환효율을 보였다[10]. 해당 태양전지는 ALD Al_2O_3 encapsulation 막을 추가적으로 생성하여, 산소 및 수분 안정성을 확보하였다.

Hu 그룹에서는 전도성, 투광성, 헤이즈를 극대화한 은 나노와이어 메쉬 네트워크 전극을 개발하였으며, 이를 normal type의 페로브스카이트 태양전지 상부전극에 적용하였다[11]. 높은 헤이즈 값을 갖는 투명전극에서 유도되는 빛 산란은 태양전지의 빛 흡수측면에서 유리하게 활용될 수 있기 때문에, 헤이즈에 대한 고려는 중요하다. 해당 그룹에서는 전기화학에칭기술을 활용하여, 은 나노와이어 전극의 효율적인 헤이즈 제어를 선보였다. 또한 에칭공정에 따른 은 나노와이어 표면의 PVP capping layer 제거는 전극의 전도성 향상 효과로 이어졌다. 해당 태양전지는 금속 나노와이어 전극이 제작된 후에 후처리 공정에 따른 투명전극 물성의 효율적인 제어가 가능하다는 점에서 다양한 가능성을 시사하는 연구이다.

4. 결 론

앞서 살펴본바와 같이, 반투명 페로브스카이트 태양전지 구현을 위한 투명전극은 다양한 소재 및 구조체로써 접근이 가능하다. 투명전극물질로써 소개된 탄소나노물질, 전도성 고분자, 금속기반 물질은 각각 투과성, 전도성, 안정성, 공정적합성 등의 측면에서 서로 다른 강점과 약점을 가지며, 두 개 이상의 물질을 복합구조체로써 활용하는 방법은 각 물질들의 약점을 보완해줄 수 있는 접근법으로 활용되고 있다. 일례로 우수한 투명전극 성능을 갖지만 다른 층과의 국소적 접촉이 문제인, 금속 나노와이어의 경우, 금속 박막의 인가를 통해 해결이 가능하며, 그래핀의 계면 접촉 문제와 전도성 이슈는 PEDOT:PSS와 혼용함으로써 효과적인 해결이 가능하다.

페로브스카이트 태양전지는 높은 광전변환효율, 용액공정을 활용한 단가경쟁력 측면에서 많은 장점을 가지고 있으나, 상용화 측면에서 기존 실리콘 태양전지와 경쟁하기 위해서는 해결되어야할 이슈가 많다. 이에 반해, 반투명 페로브스카이트 태양전지는 탠덤화 기술을 통해 기존 실리콘 태양전지와의 공존이 가능하고, 또한 BIPV, VIPV, 웨어러블 소자 등 넓은 활용 스펙트럼을 바탕으로 새로운 시장에 대한 잠재력이 크다. 이에 따라 페로브스카이트 태양전지의 광전변환효율 감소를 최소화하면서도 높은 투광도를 가능케 하는 페로브스카이 태양전지에 적합한 투명전극 연구는 매우 중요하며, 다양한 연구가 진행될 필요가 있다.

후 기

본 연구는 한국산업기술평가관리원의 섬유스트림간협력기술개발사업 (10052064)「드레이프성이 우수한 텍스타일 염료감응 태양전지 소재 및 아웃도어 응용제품 개발」의 일환으로 수행되었습니다.

References

1. D. J. Lipomi, M. Vosgueritchian, B. C. Tee, S. L. Hellstrom, J. A. Lee, C. H. Fox, Z. Bao, "Skin-like pressure and strain sensors based on transparent elastic films of carbon nanotubes," Nat. Nanotechnol., Vol. 6, No. 12, pp. 788-792, 2011.
2. Z. Wu, Z. Chen, X. Du, J. M. Logan, J. Sippel, M. Nikolou, A. G. Rinzler, "Transparent, Conductive Carbon Nanotube Films," Science, Vol. 305, No. 5688, pp. 1273-1276, 2004.
3. Z. Li, S. A. Kulkarni, P. P. Boix, E. Shi, A. Cao, K. Fu, N. Mathews, "Laminated carbon nanotube networks for metal

electrode-free efficient perovskite solar cells," ACS Nano, Vol. 8, No. 7, pp. 6797-6804, 2014.

4. P. You, Z. Liu, Q. Tai, S. Liu, F. Yan, "Efficient semitransparent perovskite solar cells with graphene electrodes," Adv. Mater., Vol. 27, No. 24, pp. 3632-3638, 2015.
5. S. Xiao, H. Chen, F. Jiang, Y. Bai, Z. Zhu, T. Zhang, Y. Qu, "Hierarchical Dual-Scaffolds Enhance Charge Separation and Collection for High Efficiency Semitransparent Perovskite Solar Cells," Adv. Mater. Interfaces, Vol. 3, No. 17, pp. 1600484-1600490, 2016.
6. Q. Xue, Y. Bai, M. Liu, R. Xia, Z. Hu, Z. Chen, H. L. Yip, "Dual Interfacial Modifications Enable High Performance Semitransparent Perovskite Solar Cells with Large Open Circuit Voltage and Fill Factor," Adv. Energy Mater., Vol. 7, No. 9, pp. 7499-7504, 2017.
7. J. Zhao, K. O. Brinkmann, T. Hu, N. Pourdavoud, T. Becker, T. Gahlmann, B. Cheng, "Self-Encapsulating Thermostable and Air-Resilient Semitransparent Perovskite Solar Cells," Adv. Energy Mater., Vol. 7, No. 14, pp. 1602599-1602606, 2017.
8. D. Bryant, P. Greenwood, J. Troughton, M. Wijdekop, M. Carnie, M. Davies, D. Worsley, "A transparent conductive adhesive laminate electrode for high-efficiency organic-inorganic lead halide perovskite solar cells," Adv. Mater., Vol. 26, No. 44, pp. 7499-7504, 2014.
9. P. Lee, J. Lee, H. Lee, J. Yeo, S. Hong, K. H. Nam, S. H. Ko, "Highly stretchable and highly conductive metal electrode by very long metal nanowire percolation network," Adv. Mater., Vol. 24, No. 25, pp. 3326-3332, 2012.
10. C. Y. Chang, K. T. Lee, W. K. Huang, H. Y. Siao, Y. C. Chang, "High-performance, air-stable, low-temperature processed semitransparent perovskite solar cells enabled by atomic layer deposition," Chem. Mater., Vol. 27, No. 14, pp. 5122-5130, 2015.
11. Y. Fang, Z. Wu, J. Li, F. Jiang, K. Zhang, Y. Zhang, B. Hu, "High-Performance Hazy Silver Nanowire Transparent Electrodes through Diameter Tailoring for Semitransparent Photovoltaics," Adv. Funct. Mater., Vol. 28, No. 9, pp. 1705409-1705416, 2018.