

# 페로브스카이트 태양전지 대면적 모듈 연구 동향

## Recent Advancements in Large-area Perovskite Solar Cells and Modules

유소민 · 김영운 | So-Min Yoo · Young Yun Kim

Division of Advanced Materials, Korea Research Institute of Chemical Technology (KRICT),  
141 Gajeong-ro, Yuseong-gu, Daejeon 34114, Korea  
E-mail: yykim@kRICT.re.kr

### 1. 서론

기후변화의 영향이 실제 삶의 위협으로 다가오고 있는 현재, 늘어나는 에너지 수요 감당을 위해 2050 탄소 중립 실현이 전세계에서 정책적으로 실현 중이며, 이에 따라 2050년까지 태양광을 통한 전력 생산이 38% 이상을 차지해야 할 것으로 예상되고 있다.<sup>1</sup> 태양광 발전의 보급량 확대는 기존 실리콘 태양전지 외에도 페로브스카이트를 포함한 차세대 태양전지를 활용하여 진행될 것으로 기대되고 있다. 페로브스카이트 태양전지는 높은 흡광 계수와 우수한 광학 및 전하 수송 특성, 결함 용인성, 유연 및 경량화 가능성, 밴드갭 조절, 높은 효율 등으로 인해 각광받고 있다.<sup>2,3</sup> 10여 년간의 연구 개발 노력을 통해 소면적에서는 실리콘에 육박하는 효율(26.7%, 2024, USTC, 중국)을 달성할 수 있었으나 대면적 효율은 그에 비해 아직 부족한 실정이다(20.6%, 2024, 한국화학연구원, 대한민국).<sup>4,5</sup>

페로브스카이트 태양전지의 일상 생활에서의 활용을 위해서는 대면적화를 통한 충분한 발전량 확보가 필수적이다. 일례로 실리콘 태양전지 또한 현재 M12(210×210 mm<sup>2</sup>) 크기까지 셀 하나의 크기가 커지며 셀 여러 개를 연결하여 모듈화 후 600~700 W까지 높은 발전량을 보이고 있다.<sup>6</sup> 이에 따라 페로브스카이트 태양전지 또한 고성능/고내구성의 대면적 셀을 구현하여 양산화하려는 노력이 진행중이며, 실리콘 셀에 비해 매우 큰 크기의 단일 셀 패널((예) 2×1 m<sup>2</sup>) 기반으로 패널 프로토타입이 구현된 바 있다.<sup>7</sup> 이러한 노력을 바탕으로 현재 다양한 기업에서 단일/다중 접합 페로브스카이트 태양전지에 대한 양산화 노력을 진행중이며, 2~3년 안에 구체적인 양산화 제품들이 출시될 것으로 예상된다. 페로브스카이트 관련 양산화 관련 정보는 표 1에 정리하여 나타내었다.

본 총설에서는 현재 활발하게 연구중인 페로브스카이트 대면적 모듈화 관련 기술에 대해 소개하고, 현재 연구 현황에 대해 소개하고자 한다. 페로브스카이트 대면적 모듈화를 위한 각 층의 대면적 박막화 기술, 페로브스카이트 상변화 기술, 모듈 구조화 기술 등을 구체적으로 설명하고 이에 대한 최신 연구를 예시로 제시하여 향후 모듈화 기술의 연구 방향에 대해 고찰해보고자 한다.

Author



유소민

2007~2012 전북대학교 화학과 (학사)  
2014~2016 전북대학교 화학과 (석사)  
2016~2019 전북대학교 화학과 (박사)  
2019~2020 전북대학교 화학과 (Post-Doc.)  
2020~2021 École Polytechnique  
Fédérale de Lausanne  
(Post-Doc.)  
2022~현재 한국화학연구원  
화학소재연구본부 (Post-Doc.)



김영운

2006~2010 한국과학기술원 생명화학공학과 (학사)  
2010~2012 한국과학기술원 생명화학공학과 (석사)  
2012~2016 한국과학기술원 생명화학공학과 (박사)  
2012~2013 University of Michigan, Visiting  
Scholar  
2016~2017 한국과학기술원 응용과학연구소  
(Post-Doc.)  
2017~2020 한국화학연구원 화학소재연구본부  
(Post-Doc.)  
2020~현재 한국화학연구원 화학소재연구본부  
선임연구원

표 1. 페로브스카이트 관련 기업 양산 현황<sup>8)</sup>

| 기업명                  | 양산 시기              | 양산 형태                           | 양산 정보                                                                               |
|----------------------|--------------------|---------------------------------|-------------------------------------------------------------------------------------|
| Oxford PV            | 2024               | 실리콘 탠덤                          | 100 MW 생산 라인 완공                                                                     |
| Saule Technologies   | 2023               | 플렉서블, 경량 단일                     | 초기 4만제곱미터/년, 향후 100 MW 계획                                                           |
| Power Roll           | 2024               | 0.3 mm 유연 단일                    | 1 MW 생산 가능, 향후 유연, 부착형 필름으로 활용                                                      |
| Perovskia Solar      | N/A                | IoT용 저조도 단일                     | 100만개 양산 용량 확보(2024) 계획                                                             |
| CubicPV              | 2024(탠덤 라인 착공)     | 실리콘 탠덤                          | 웨이퍼 생산 라인 탠덤 라인으로 교체                                                                |
| Swift Solar          | 2027               | 실리콘 탠덤                          | 2026-2027 생산 예정                                                                     |
| Tandem PV            | N/A                | 실리콘 탠덤                          | \$6m 편딩                                                                             |
| Active Surfaces      | N/A                | 플렉서블 롤투롤 단일                     | \$5.6m 편딩                                                                           |
| First Solar          | R&D 시설 착공          | 단일/실리콘 탠덤                       | R&D에 370만달러 투자. 2023년 Evolar 인수                                                     |
| WattByWatt           | N/A(이미 파일럿 라인은 보유) | 저조도 단일/실리콘 탠덤                   | 파일럿 라인 운영중                                                                          |
| Solaires Enterprises | 2024               | 단일 및 solar Ink                  | 파일럿 라인 가동중. Solar Ink 또한 양산 준비중                                                     |
| Rayleigh Solar Tech  | 2026               | 플렉서블 단일                         | 파일럿 라인 보유. 2026까지 생산 계획                                                             |
| Phenosolar           | N/A(파일럿 라인 보유)     | 단일(고출력, 반투명), 실리콘 탠덤            | 이미 1200 m <sup>2</sup> 파일럿 라인에서 400 cm <sup>2</sup> 모듈 생산. 파일럿 구축중                  |
| Halocell Energy      | N/A                | 저조도 단일                          | 초기 연간 100 MW, 향후 500 MW 목표                                                          |
| GCL                  | 2024               | 단일 (2.4x1.2 m <sup>2</sup> )    | 2 GW 생산라인 착공(2023년 우주 탑재)                                                           |
| JinkoSolar           | N/A                | 실리콘 탠덤                          | N-Topcon 탠덤 33.24% 최고 효율 달성. R&D 단계                                                 |
| Microquanta          | 2024 라인 착공         | 단일                              | 2022년 12 MW급 지상 프로젝트 수행<br>2023년 Fish farming 위에 설치 후 그리드 연결<br>GW급 라인 착공(진공 장비 도입) |
| Wuxi Utmolight       | 2027               | 단일                              | 2023년 1 GW 급 라인 착공                                                                  |
| LONGi Solar          | N/A                | 실리콘 탠덤                          | 탠덤 34.6% 최고 효율 달성. R&D 단계                                                           |
| Mellow Energy        | 2024               | 단일 (1.2x1.6 m <sup>2</sup> )    | 100 MW 파일럿 라인 구축 예정                                                                 |
| SolaEon              | N/A                | 단일 및 페로브-페로브 탠덤                 | 200 MW, 1 GW 생산 라인 구축 예정                                                            |
| Renshine Solar       | 2024               | 페로브-페로브 탠덤                      | 150 MW 연간 생산 용량 구축 예정                                                               |
| Hanwha Solutions     | 2026               | 실리콘 탠덤                          | 파일럿 라인 건설 중                                                                         |
| UniTest              | 2024               | 단일(반투명)                         | ESL 기반 초기 상용화 준비중                                                                   |
| Panasonic            | 2026               | 단일 BIPV (1x1.8 m <sup>2</sup> ) | 2024년 생산 라인 건설중                                                                     |
| Sekisui Chemical     | 2025               | 단일(필름형)                         | 2023년 빌딩 외벽 1 MW 이상 급 패널 설치<br>2024년 국제 크루즈터미널에 설치/검증.<br>페로브스카이트 플랜트 착공            |

## 2. 본론

### 2.1 대면적 모듈 연구 개요

2009년 이래로 페로브스카이트 태양전지 연구는 연구실 기반 작은 면적의 소자에서 효율을 극대화하여 잠재력을 확인 및 확장하는 방식으로 연구가 진행되어 왔다.<sup>9)</sup> 현재 보고되고

있는 연구실 기반 소면적 고성능 페로브스카이트 태양전지는 페로브스카이트 광흡수층과 층간 소재를 코팅하기 위해 주로 스핀 코팅을 사용하고 있으며, 페로브스카이트의 완전한 상변환 및 결정화를 위해 비용매 드리핑(antisolvent dripping) 방법을 주로 사용하는 것이 일반적이다.<sup>10)</sup>

이러한 스핀 코팅 및 드리핑 방법은 소면적에서는 유효하나 대면적에 그대로 적용하기는 어려운데, 이는 용액 사용량이 과다할 뿐만 아니라 기판 면적이 넓어짐에 따라 균일한 두께를 부분별로 얻기가 힘들기 때문이다. 특히 주로 사용하는 비용매의 인체/환경 유해성을 고려할 경우 해당 방법은 특히 사용이 곤란하다. 따라서 페로브스카이트 대면적 모듈\* 구현 시 스핀 코팅 법을 코팅/프린팅 등의 다른 용액 기반 인쇄 공정으로 대체해야 하며, 드리핑 방법 또한 다른 방법으로 대체가 필수적이다(\*참고: 실리콘 셀과 비슷한 크기의 대면적 단일 셀을 페로브스카이트 태양전지에서는 일반적으로 모듈로 통칭함. 이러한 대면적 모듈을 연결한 것도 마찬가지로 모듈이 됨).

대면적 박막화 자체 및 페로브스카이트 상변환 문제 외에도 면적이 커짐에 따라 생기는 문제는 또 존재한다. 페로브스카이트 태양전지는 빛을 전기로 전환해야 하므로 필수적으로 기판 면에서 빛을 받을 수 있도록 투명 전극을 활용하게 된다. 주로 ITO(인듐 주석 산화물; indium tin oxide) 혹은 FTO(불소 도핑된 주석 산화물; fluorine-doped tin oxide) 등의 투명 전극이 사용되는데, 해당 전극의 경우 상대적으로 Au, Ag 등의 금속에 비해서는 전도도가 수천배 가량 떨어지게 된다. 이에 따라 대면적으로 면적이 넓어지면서 전하가 수송되어야 하는 거리가 길어짐에 따라 이러한 상대적으로 낮은 전도도/높은 표면저항이 걸림돌이 되어 전하 수송(charge transport) 및 수집(charge collection)이 저해되고 쌓여있는 전하에 의한 내부 공간 전하(space charge) 형성 및 비발광재결합(non-radiative recombination)이 발생하여 결과적으로 최종 소자의 개방전압(open-circuit voltage,  $V_{oc}$ ) 및 최종 광전변환효율(power conversion efficiency, PCE)이

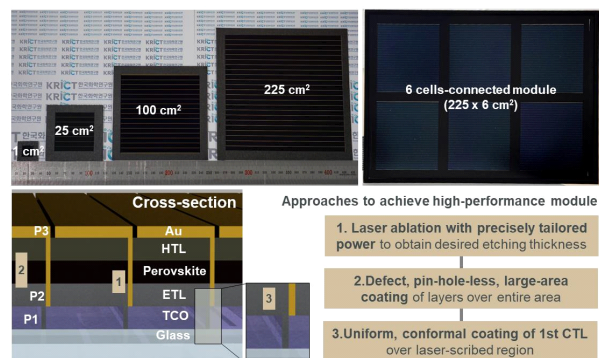


그림 1. 한국화학연구원에서 개발한 대면적 셀/모듈 이미지 및 고성능 모듈 개발 전략과 모식도.

감소하게 된다. 선행 연구 결과 대략 0.5 cm 이상으로 최소 축방향 길이가 길어지는 경우 충전율(fill factor, FF)이 급격하게 떨어짐에 따라 PCE 또한 감소하게 된다. 이를 극복하고 대면적에서도 소면적과 유사한 성능을 얻기 위해서는 단순 기판 크기를 키우는 것이 아닌, 표면 저항 이슈를 극복할 수 있는 새로운 형태의 모듈 디자인이 필수적이다.<sup>11</sup>

현재 일반적으로 대면적 모듈에서는 박막 형성 방법으로 블레이드 코팅, 슬롯-다이 코팅, 잉크젯 프린팅 등이 대체로 사용되며, 상변환 방법으로 기체 분사법 및 진공 플래시법, 모듈 구조로서 직렬 셀 연결 구조가 표준적으로 사용되고 있다. 자세한 내용은 다음 단락에서 소개하기로 한다. 한국 화학연구원에서도 다양한 코팅/프린팅 법을 통해 전 층 박막을 제작하고, 직렬 연결 구조 모듈을 구현하여 성공적으로 200 cm<sup>2</sup> 이상의 모듈을 제작하고 있으며, 이러한 대면적 모듈을 여러 개 연결한 모듈 또한 구현하고 있다(그림 1).

이러한 직렬 연결 구조의 모듈에서는 그림 1의 모식도에 표시된 대로 각 셀이 레이저 식각을 통해 연결된다. 이러한 직렬 연결 모듈에서 각 셀의 분리 및 연결을 위해 레이저 식각공정(laser scribing)이 일반적으로 활용된다. 고성능의 모듈을 재현성있게 확보하기 위해서는 1) 각 레이저 공정의 정밀한 제어를 통한 저항의 최소화 및 셀간 확실한 분리/연결, 2) 대면적에서의 고품질 균일 박막 형성, 3) 식각되어 100 nm 이상의 단차를 갖는 투명 전극 패턴 위에 올라가는 첫 번째 전하수송층의 균일한 도포가 필수적이다.

이하 본론에서는 대면적 모듈 제작을 위해 필요한 요소 기술들의 선행 연구 결과에 대해 소개하고, 향후 연구 방향을 논의해보고자 한다.

## 2.2 용액 인쇄 공정 연구 동향

페로브스카이트 태양전지를 구성하는 광흡수층과 증간 소재의 경우 다양한 용액 인쇄 공정을 통해 형성할 수 있다는 장점을 가진다. 특히 증간소재의 경우 다양한 유/무기 반도체 단분자/고분자가 이미 유기 반도체 광전 소자 연구 시 많이 개발되어 온 바 있기 때문에 해당 기술을 그대로 확장하는 것이 가능하다.<sup>12</sup> 페로브스카이트 층은 같은 방식으로 페로브스카이트 전구체(precursor) 습윤 필름(wet-film)을 형성한 후 다양한 상변환 공정을 통해 결정화를 거쳐 최종 필름을 얻을 수 있게 된다.

용액 인쇄 공정은 크게 나누어 코팅(coating) 법과 프린팅(printing) 법으로 나눌 수 있다. 코팅 법은 일반적으로 용액 도포를 통해 용액 액적(droplet)이나 습윤 필름을 형성한 후 이를 물리적 수단으로 고르게 분산/도포하여 균일한 박막을 형성하는 방법이다. 일반적으로 코팅 속도가 빠르나 패턴 형성이 매우 제한적이거나 불가능한 단점이 존재하게 된다. 프린팅 법은 미리 형성한 용액 패턴이나 액적을 특정

위치에 직접 옮겨 적어내는 방법으로써 세밀한 패턴 형성이 가능하나, 용액의 유변학적 특성에 대한 세밀한 제어가 필요하고, 경우에 따라 속도가 느릴 수 있다는 단점이 존재한다.

현재 스핀코팅 외의 다양한 용액 인쇄 공정 법으로도 20% 이상의 고성능이 많이 보고되고 있다(그림 2). 블레이드 코팅법(blade coating; shearing coating, meniscus coating)은 전구체 용액 메니스커스(meniscus)를 형성하고, 이를 다양한 각도의 블레이드로 전단 응력(shear stress)을 통해 일정 속도로 밀거나 끌고 감에 따라 균일한 박막을 형성하는 방법으로 용액 특성에 상대적으로 관계 없이 쉽고 빠르게 박막 형성이 가능하여 가장 널리 사용되고 있다. 예를 들면 Huang *et al.*은 블레이드 코팅 시 메니스커스에 직접 바람을 불어주는 방법을 도입하여 균일한 박막을 형성하고 소면적 25.31%, 대면적 모듈 23%(12.6 cm<sup>2</sup>)의 고성능을 보고하였다.<sup>13</sup> Feng *et al.*은 블레이드 코팅 시 첨가제로써 *N*-aminoethylpiperazine hydroiodide를 도입하는 방법으로 (100)으로 강하게 정렬된 페로브스카이트 박막을 형성하여 역구조(p-i-n; inverted) 페로브스카이트 태양전지 소면적에서 24.16%의 효율을 달성하였다.<sup>14</sup>

스프레이 코팅(spray coating) 또한 사용된 바 있다. 스프레이 코팅은 액적을 직접 기판에 도포하므로 기판의 거칠기 등의 형태와 관련없이 쉽게 박막을 만들 수 있으나, 기판과의 접합성(adhesion)과 용매 액적의 유해성 등을 고려해야 한다. 일반적으로 TiO<sub>2</sub>를 형성하기 위해 염료감응형 태양전지 연구에서부터 널리 사용해오던 방식이나, 이를 이용하여 페로브스카이트 박막 또한 형성한 바 있다. 대체로 페로브스카이트 전구체 액적 분무 시 기판과의 접합성 향상을 위한 표면 개질을 하거나,<sup>15</sup> 도포하는 용매의 조절을 통해 액적 특성 개선 및 박막 품질 개선을 도모하는 편이다.<sup>16</sup>

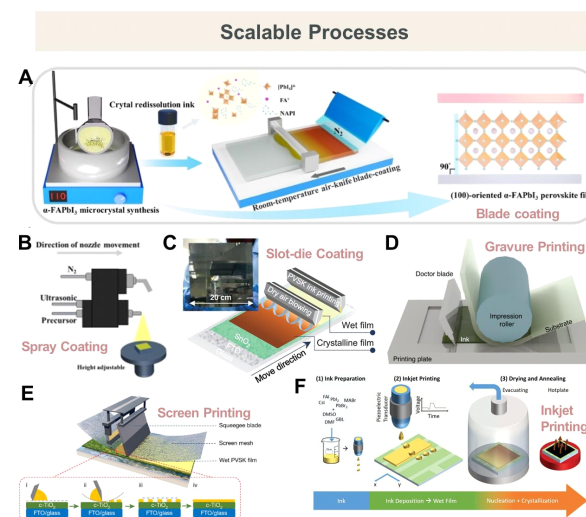


그림 2. 스핀코팅 외의 용액 인쇄 공정 기반 페로브스카이트 형성 법.<sup>14,15-17,20,22,23</sup>

슬롯 다이 코팅(slot-die coating)은 블레이드 코팅과 흡사하게 용액의 메니스커스를 전단 응력을 통해 끌고가는 방식이나, 용액의 외부 노출 및 코팅 진행 중 용액 양 변화를 막기 위해 슬롯 다이 헤드(slot-die head)에 용액을 일정한 속도로 꾸준히 주입하여 메니스커스의 용액 양을 일정하게 유지할 수 있으면서도 용액 자체의 외부 노출을 최소화할 수 있는 방식이다. 특히 롤투롤 공정 적용도 간단하며 헤드 내부 shim의 패턴 형성을 통해 스트라이프 등의 패턴 박막 형성이 가능하다는 장점을 가진다.

이에 따라 초기 단계의 연구부터 페로브스카이트 박막 형성에 응용되어온 바 있다. 최근에는 상안정성 및 박막 품질 개선을 위해 용매로써 NMP(2-methyl-1-pyrrolidone)을 사용하고 첨가제로써 KPF<sub>6</sub> 분자를 같이 도입하여 가스 블로잉을 통한 페로브스카이트 대면적 박막 형성 시 모듈에서 20.4% (17.1 cm<sup>2</sup>)의 높은 성능이 보고된 바 있다.<sup>17</sup> 또한 캐나다의 QD Solar(현재 SunDensity Solar Canada) 사는 슬롯 다이 코팅 기반 23.2%의 고성능 페로브스카이트 태양전지 효율을 보고한 바 있다.<sup>18</sup>

프린팅 방법의 한 종류로써 그라비아 프린팅(gravure printing)은 패턴이 세밀하게 새겨진 프린팅 롤 혹은 플레이트(printing plate/roll)에 미리 용액을 블레이드를 통해 채워넣고 압력을 가해 용액이 채워진 패턴 플레이트/롤을 기판에 찍어냄에 따라 박막을 형성하는 방법이다. 미리 형성된 패턴을 찍어내므로 세밀한 패턴 해상도와 빠른 인쇄 속도를 동시에 얻을 수 있다는 장점을 가지기 때문에 유기 광전소자에 많이 활용된 바 있으며 이에 따라 페로브스카이트 태양전지에도 활용되었다.

Kim 등은 페로브스카이트의 전구체 중 PbI<sub>2</sub>를 그라비아 프린팅을 통해 인쇄하고 이를 2스텝 배싱(bathing) 방법을 통해 상변환하는 방법을 보고한 바 있으며,<sup>19</sup> 이후 후속 연구를 통해 페로브스카이트 전구체(FAPbI<sub>3</sub>)를 그라비아 프린팅 후 친환경 비용매(3차 부틸 알코올, tert-butyl alcohol)에 접촉시키는 방식을 사용하고 나머지 전하수송층 또한 모두 그라비아 프린팅함에 따라 유연 페로브스카이트 태양전지에서 19.1%의 효율을 보고한 바 있다.<sup>20</sup> 특히 해당 기술을 롤투롤 공정에 적용하여 최초로 파일럿 스케일 롤투롤 공정으로 전 층(전극 제외)을 형성하여 13% 이상의 높은 성능을 보고한 바 있다.

스크린 프린팅(screen printing)은 용액을 스퀴지(squeeze)로 긁어내어 스크린 메쉬(screen mesh)를 통해 인쇄시키는 방법으로 빠르게 세밀한 패턴 인쇄가 가능하나, 용액의 고점도가 요구되는 방법이다. 주로 스크린 프린팅은 고점도의 금속 산화물 전하수송층인 TiO<sub>2</sub>, ZrO<sub>2</sub> 및 전극으로써 탄소 등을 차례로 인쇄하고 페로브스카이트 층을 함침(infiltration)시켜 형성하는 방법으로 상대적으로 효율은 낮으나 저가격, 고내구성의 태양전지를 구현하는 방향으로 연구가 활발하게

진행되어 왔다. 최근에는 Chen *et al.*이 페로브스카이트 층에 methylamine acetate 이온성 액체(ionic liquid)를 도입하여 20% 이상의 높은 효율을 보고한 바 있으며,<sup>21</sup> 공용매로써 methylammonium propionate를 추가로 도입 시 전극 포함 전층 스크린 프린팅에도 17%의 효율을 보일 수 있음을 보고하였다.<sup>22</sup>

마지막으로 잉크젯 프린팅(inkjet printing)은 잉크젯 카트리지(cartridge)로 구성된 헤드를 통해 극소량의 액적을 원하는 위치에 정확히 인쇄하는 방법으로 가장 높은 해상도를 가지고 박막을 형성할 수 있으며, 멀티 노즐 헤드(multi nozzle head)를 사용 시 상대적으로 빠른 속도로 인쇄도 가능하나, 사용하는 용매가 카트리지의 내화학성 범위에 맞아야 하며 유변학적 특성의 제어 또한 중요한 편이다. 상대적으로 빠른 속도로 정밀하게 제어할 수 있으므로 페로브스카이트 박막 형성을 위해 여러 번 시도된 바 있으나, 주로 학계보다는 산업계에서 활용되고 있다. Eggers *et al.*은 잉크젯 프린팅 후 진공 플래시(vacuum flash) 방법으로 상변환 시 수직 방향으로 잘 정렬되어 성장한 그레인 및 결정 구조를 얻을 수 있어 21.6% 이상의 고성능 페로브스카이트 태양전지를 구현할 수 있음을 보였고,<sup>23</sup> 일본의 Panasonic 사는 804 cm<sup>2</sup>에서 18.1%의 고효율 대면적 모듈 구현 시 잉크젯 프린팅을 활용했음을 보고한 바 있다.<sup>24</sup>

## 2.3 페로브스카이트 대면적 상변환 공정 연구

유무기 하이브리드 페로브스카이트 물질은 기존 유기 반도체 박막과 달리 단순 전구체 도포 후 열처리 시 결정화 속도가 비균일하고 매우 빠르기 때문에 박막이 아닌 바늘(needle-like)과 같은 형태로 불균질하게 형성된다. 따라서 광전특성을 활용하여 태양전지로 구현하기 위해서는 균질한 박막 구현이 중요했으며, 이를 위해 빠른 상변환을 강하게 결합하는 용매(중간자; mediator, 예를 들면 dimethyl sulfoxide)를 통해 불균일한 성장을 방지해 놓고 생성된 복합체 중간상(intermediate phase)에 중간자를 선택적으로 제거하는 비용매(antisolvent)를 순간적으로 도포(드리핑; dripping)하는 방법이 개발되었다.<sup>10</sup> 드리핑 시 순간적 용해도 감소를 통해 전구체 농도가 과포화도 한계(supersaturation limit)를 돌파하여 다수의 핵이 순간적으로 형성되고(burst nucleation) 동시다발적으로 성장(growth)하여 균일 박막을 형성할 수 있다(그림 3).

대면적에서는 드리핑 적용이 어려우므로, 기존 연구에서는 이러한 순간적 용해도 증가에 따른 높은 과포화도 달성(high level of supersaturation)을 대신 물리적 수단을 통해 달성하고자 연구가 진행된 바 있다. 다만 이 때 용해도 감소가 천천히 일어나거나 용해도 감소 정도가 크지 않은 경우, 불균일하게 핵이 생성(nucleation)되고 핵의 개수가 적게 생성되어 성장 시 불균일하게 다분산된(polydisperse) 결정립으로 자라나

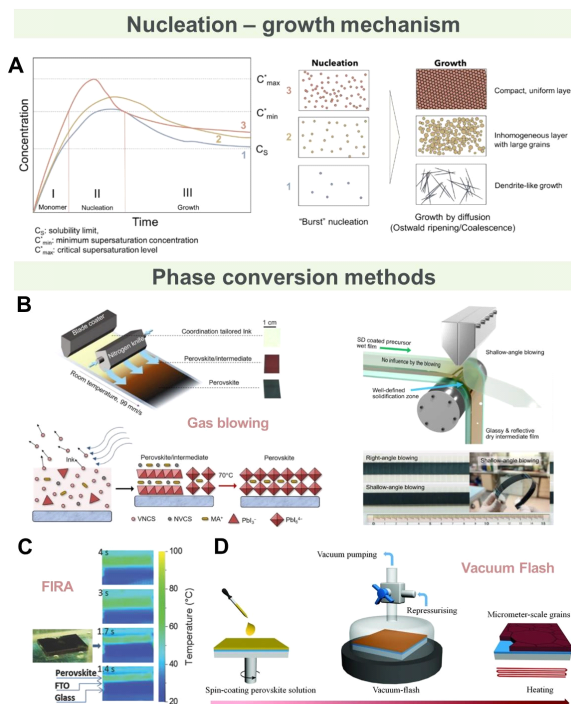


그림 3. (A) 핵생성 메커니즘 모식도,<sup>25</sup> (B-D) 드리핑 외의 상변환 방법 예시.<sup>27-30</sup>

결국 불균일한 박막이 형성되게 된다. 따라서 물리적 수단을 통해 빠르게, 효과적으로 용매 제거를 통한 용해도 감소를 일으키는 것이 가장 중요한 요소라고 할 수 있다.

이 때 사용되는 물리적 수단은 열, 바람, 진공 등으로 순간적 용매 제거를 목적으로 물리적 에너지를 가해 용해도 감소를 일으키는 것이 공통 목적이다. 초기에는 기판에 열을 가하는 핫 캐스팅(hot casting) 방법이 주로 활용되어 왔으나, 해당 방법은 기판 자체의 열에 의한 변형과 하부층 데미지 등 다양한 고려 요소가 많으며 상변환을 위한 에너지 소모가 심하므로 에너지 소모를 줄이기 위해 낮은 온도에서 박막을 형성하는 것을 지향함에 따라 점차 사용되지 않고 있다.<sup>26</sup> 이 외에 사용될 수 있는 방법은 용액을 열로 증발시키되, 해당 열을 핫 플레이트(hot plate)나 대류 오븐(convection oven) 등 대류/전도로 직접 가하는 것이 아닌 적외선을 통해 순간적으로 짧은 시간에 주는 방식이 있다. 해당 방식은 FIRA(flash infra-red annealing)으로 불리우며 몇몇 성공적 보고가 있어왔으나, 향후 대면적 사용 가능성과 역시 기판 및 하부층 데미지를 고려할 때 많이 사용되고 있지는 않다.<sup>27</sup>

가스 블로잉(gas blowing) 법은 용매 증발을 강한 압력의 기체(질소, 아르곤 등의 비활성 기체나 수분이 제거된 건조 공기)를 순간적으로 불어줌에 따라 유도하여 용해도의 순간적 감소를 이끌어내는 방법이다. 에어 나이프(air knife) 등 산업계에서 기존에 많이 사용되는 기구/장비를 통해 쉽게 강한 압축 공기를 불어 용매를 제거할 수 있으며, 물투물

공정 또한 적용이 가능하기 때문에 현재 널리 활용되고 있는 방법이다.<sup>28</sup> 가스 블로잉으로 성공적 박막을 구현하기 위해서는 휘발도가 높은 주 용매와 강하게 결합하는 중간자/공용매의 조합을 사용하여 가스 블로잉 후 남은 중간상 박막을 열처리를 통해 최종 결정화시키는 방법이 사용되며, 이 때 중간상에 남아있는 중간자 양에 따라 최종 박막의 균일도 및 품질이 좌우된다. 따라서 주 용매와 중간자/공용매의 물리화학적 특성을 고려하여 정밀하게 제어된 용매 조성을 도입하는 것이 필수적이다. 이러한 공정은 최근 물투물 공정에도 성공적으로 적용되어 17% 이상의 전층 물투물 페로브스카이트 태양전지가 보고되었다.<sup>29</sup>

마지막으로 많이 사용되는 방법은 진공 플래시(vacuum flash)법으로써 가스 블로잉과 같은 원리이나, 주용매를 제거할 때 압축 공기를 불어내는 대신 진공을 통해 직접 흡입하여 제거하는 방식이다.<sup>30</sup> 다만 진공에 도달하는 속도 조절과 기관의 안정성 문제 등을 고려해야 하는 문제가 아직 존재한다. 진공 흡입 속도가 빠른 경우 순간적 용해도 감소 정도는 커지나, 기관 자체의 손상 및 파괴 위험성이 증가하게 된다. 따라서 사용하는 기관의 특성에 맞춰 진공 챔버와 진공 펌프의 출력 등을 정밀하게 제어할 필요가 있다. 그럼에도 불구하고 가스 블로잉과 함께 가장 많이 활용되고 있는 상변환 방법이다.

## 2.4 페로브스카이트 모듈 구조화 연구 동향

투명전극의 표면 저항에 의한 대면적 모듈 성능 저해를 막기 위해 다양한 구조의 모듈이 기존 실리콘/박막 태양전지에서부터 개발되어 왔다. 대표적인 구조는 크게 3가지로 나눌 수 있다(그림 4). 1) 직렬 연결 구조(series-connected module),<sup>31</sup> 2) 병렬 연결 구조(parallel-connected module),<sup>32</sup> 3) 버스바-핑거 구조(busbar-finger configuration)이다.

직렬 및 병렬 구조는 대면적 기판을 구성하는 모듈에서 저항에 의한 성능 저해가 나지 않는 하나의 셀 크기로 설정하여 제작한 후, 각 셀을 직렬 혹은 병렬로 연결하여 하나의 모듈을 구성하는 방식이다. 두 방법으로 셀을 연결할 때, 연결 부위는 셀처럼 작용하지 못하는 비활성 영역(dead-area)이 되고, 셀 부분만 활성 영역(active-area)이 되며, 이 때 활성 영역과 비활성 영역의 비율인 기하학적 충전율(geometric fill factor)을 최대화하여 같은 면적에서 최대의 발전량을 얻도록 해야한다. 이를 위해 비활성 영역의 폭을 최소화하고자 식각 법으로써 레이저 스크라이빙(laser scribing) 기술이 널리 사용되는 편이다. 레이저 식각을 통해 수십 마이크로미터의 아주 얇은 폭으로 각 셀을 단락시키고, 인접 셀을 연결한다.

직렬 연결 구조 모듈의 경우 최소 3개의 레이저 식각이 필요하다(그림 1 및 그림 4 참조). P1은 첫 번째 전극(아래 전극)을 단락해 셀을 나누는 역할을 하게 되며, P3은 두 번째

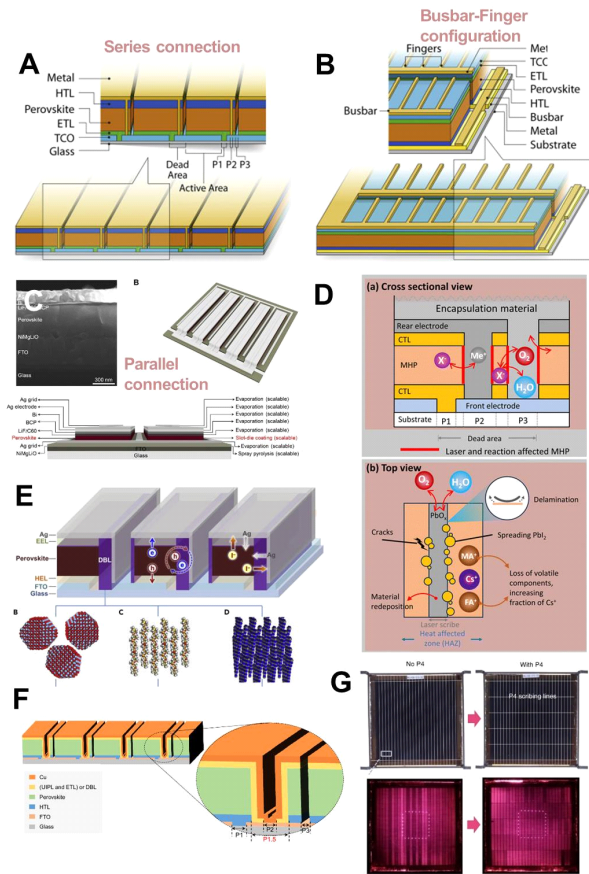


그림 4. (A) 직렬 연결 구조, (B) 버스바핑거 구조, (C) 병렬 연결 구조 모식도, (D) 식각 단면의 데미지 모식도, (E, F) 식각 단면 보호층 도입 연구 (G) P4 패턴 도입.<sup>31-36</sup>

전극(위 전극)을 단락해 셀을 분리하는 역할을 하게 된다. 중간에 위치한 P2는 첫 번째 셀(왼쪽 셀)의 두 번째 전극과 두 번째 셀(오른쪽 셀)의 첫 번째 전극이 맞닿을 수 있도록 두 번째 셀의 첫 번째 전극 바로 위까지 식각하는 역할이다.

레이저 식각 시 목표하는 두께를 정밀하게 조절하여 식각함으로써 1) 셀 간 저항을 최소화하고, 2) 인접 셀 간의 확실한 분리를 보장하여 단락을 방지하며 3) 과도한 세기에 따른 주변 영역 손상을 최소화해야 한다. P1과 P3는 셀 간 단락을 위해 최소한의 세기를 사용하여 미세 먼지(burr) 발생, 박리(delamination), 인접 영역 손상을 방지하도록 해야 하며, P2는 층간 소재까지 정확하게 식각하여 전극 간의 안정적인 접합이 이루어지도록 정밀하게 조정해야 한다. 약한 P2 세기 식각 시 잔여 물질로 인한 저항이 성능 저해를 야기하며, 과도 세기 식각 시에는 하부 전극 자체의 데미지로 인해 저항이 증가하여 성능 저해가 야기될 수 있다.

병렬 연결 구조의 경우에도 P1과 P2 식각 공정이 필요하며, 직렬 연결과 비교했을 때 기하학적 충진율 확보가 다소 어렵지만, 공정 단계가 줄어드는 이점을 갖고 있다. 각 식각 공정 선이 바로 인접해 붙어있지 않아 상대적으로 인접

데미지에 민감하지 않을 수 있다는 가능성이 있다.

버스바-핑거 구조는 투명 전극의 표면 저항을 보완하기 위해 전도도가 높은 금속층을 얇게 형성하여 투과도 저해로 인한 손실을 최소화하면서도 전하가 흐를 수 있는 경로를 제공하는 방식이다. 레이저 식각 공정이 필요없다는 장점은 있으나, 버스바-핑거의 두께가 100 nm 이상으로 두껍기 때문에 그 위에 얇은 박막의 균일 도포가 어려워 단락이나 금속과 페로브스카이트 간 반응 등의 문제점이 존재한다.

현재는 표준적으로 직렬 연결 구조가 페로브스카이트 모듈에 사용되는 편이다. 다만 레이저 식각 단면은 외부와 노출되고 금속 전극과 접하므로 이로 인한 장기 내구성 문제가 제기된 바 있다.<sup>33</sup> 이러한 문제점을 방지하고자 식각 단면을 보호하기 위한 0D, 1D, 2D 형태의 다양한 필러를 포함한 보호층을 도입하여 식각 단면을 통한 이온/금속 이동을 방지하여 안정성을 향상하는 연구가 보고된 바 있다.<sup>34</sup>

또한 레이저 식각 공정을 추가로 도입하여 안정성 및 재현성을 확보하는 연구 또한 보고되고 있다. Zhou *et al.*은 P1 패턴이 된 투명전극 위 페로브스카이트까지 적층 후 한번 식각을 하여(P1.5) 전극 간 연결 단면을 만든 후, 그 위 전하수송층 도포 후 추가로 레이저 식각을 진행하여(P2) 페로브스카이트와 금속 간 직접 반응을 방지하여 안정성을 향상시킨 바 있다.<sup>35</sup> 또한 직렬 연결 모듈에서 각 셀의 단락으로 인한 개방 전압 및 전력 변환 효율의 손실을 막고, 재현성을 확보하고자 전체 모듈을 제작한 후 마지막으로 기존 식각 방향과 수직의 레이저 추가 식각(P4)을 도입함에 따라 결합 부위를 국소적으로 분리시키는 방법 또한 보고되었다.<sup>36</sup> 이러한 P4 식각은 재현성 확보 외에도 부분적으로 투과도 확보 및 시인성/심미성 확보를 위해 응용되기도 한다.

## 2.5 최근 페로브스카이트 모듈 연구 현황

최근 용액 인쇄 공정 및 건식 증착 공정, 고품질 페로브스카이트 박막화 기술, 셀-투-모듈 기술 등이 고도화됨에 따라 높은 성능의 페로브스카이트 모듈이 각각 학계 및 산업계에서 보고되고 있다. 대표적인 몇 개의 보고를 표 2에 정리하였다.

최근 페로브스카이트 모듈은 대체적으로 22~23%까지 높은 효율이 달성되었으며 n-i-p 구조 및 p-i-n 구조 모두 고성능을 보고하고 있다.

2024년 5월, 한국화학연구원의 본 연구진은 200 cm<sup>2</sup> 이상 페로브스카이트 대면적 모듈의 효율을 독일 프라운호퍼 연구소에서 20.6%로 공인 인증 받았으며, 이 성과는 6월 미국 신재생에너지연구소(National Renewable Energy Laboratory, NREL)에서 발행하는 최고 효율 모듈 차트(Champion Module Efficiency Chart)에 포함되었다.<sup>5</sup>

대면적 페로브스카이트 모듈을 상용화하려면, 공정의 양산성뿐 아니라 인체 및 환경에 대한 유해성을 저감하는 방식의

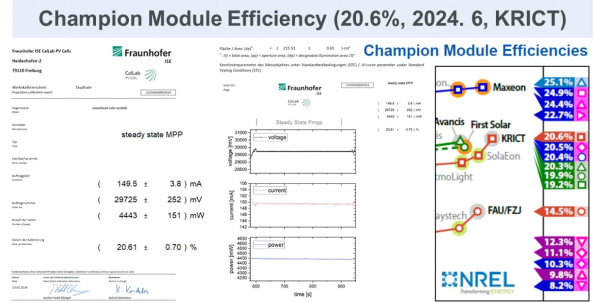
표 2. 대표적 페로브스카이트 모듈 관련 보고

| 기관명                                                                 | 주요 기술                                               | 모듈 효율                                    | 안정성                                                           | 모듈 구조 |
|---------------------------------------------------------------------|-----------------------------------------------------|------------------------------------------|---------------------------------------------------------------|-------|
| SolarEon <sup>37</sup><br>(중국)                                      | 2023년 NREL 모듈 차트 등재                                 | 19.2%<br>( $>800\text{ cm}^2$ )          | -                                                             | -     |
| Chinese Academy of Science <sup>38</sup><br>(중국)                    | E-beam 증착 $\text{NiO}_x$ 와 표면처리                     | 18.6%<br>( $243\text{ cm}^2$ )           | 모듈 보관 안정성 1000시간 효율 80% 유지                                    | PIN   |
| Huazhong University of Science and Technology <sup>39</sup><br>(중국) | 스핀코팅 공정 사용 및 Polymeric p-doping 개발                  | 21.4%<br>( $17.1\text{ cm}^2$ )          | 단위 소자 안정성 1 Sun MPPT 3,265시간 95% 유지                           | NIP   |
| Westlake University <sup>40</sup><br>(중국)                           | 스핀코팅 공정 사용 및 페로브스카이트 용액 개질                          | 21.4%<br>( $27.8\text{ cm}^2$ )          | 단위 소자 안정성 1 Sun MPPT 500시간 효율 82% 유지                          | NIP   |
| University of North Carolina <sup>41</sup><br>(미국)                  | $\text{N}_2$ Blowing 공정을 이용한 Excessive FACS 페로브스카이트 | 18.6%<br>( $29.5\text{ cm}^2$ )          | 1 Sun MPPT 모듈 광안정성 1000시간 효율 90% 유지, 85°C/85%RH 모듈 안정성 85% 유지 | PIN   |
| University of North Carolina <sup>42</sup><br>(미국)                  | CBH 고체 첨가제 도입한 $\text{N}_2$ blowing 공정 기술 개발        | 19.2%<br>( $50.0\text{ cm}^2$ )          | 1 Sun light soaking 모듈 안정성 1000시간 효율 85% 유지                   | PIN   |
| École Polytechnique Fédérale de Lausanne <sup>43</sup><br>(스위스)     | 스핀코팅 공정 사용 및 Single-crystalline $\text{TiO}_2$ 개발   | 22.7%<br>(Active area $24\text{ cm}^2$ ) | AM 1.5G MPPT 1400시간 초기효율 90% 유지                               | NIP   |
| Chinese Academy of Science <sup>44</sup><br>(중국)                    | 저온 진공 추출법 기반 페로브스카이트 성막화 및 P1.5 스크라이빙               | 22.7%<br>( $14.6\text{ cm}^2$ )          | AM 1.5G MPPT 1000시간 초기효율 90% 유지                               | PIN   |
| Chinese Academy of Science <sup>45</sup><br>(중국)                    | I-2PACz 신규 SAM 층 도입 및 FAPbBr <sub>3</sub> 반투명 모듈    | 8.19%<br>(AVT=41.9 8%)                   | AM 1.5G MPPT 1000시간 초기효율 93% 유지                               | PIN   |
| University of North Carolina at Chapel Hill <sup>46</sup><br>(미국)   | PTAA에 entinostat 첨가를 통한 flexible 모듈 구현              | 19%<br>( $9\text{ cm}^2$ , flexible)     | AM 1.5G MPPT 750시간 초기효율 90% 유지                                | PIN   |
| Shanghai Jiao Tong University <sup>47</sup><br>(중국)                 | CHEAI 표면 처리를 통한 고품질 박막 형성                           | 22.46%<br>( $715.1\text{ cm}^2$ )        | AM 1.5G MPPT 1500시간 초기효율 92% 유지                               | NIP   |
| Mellow Energy <sup>48</sup><br>(중국)                                 | -                                                   | 22.86%<br>( $900\text{ cm}^2$ )          | -                                                             | -     |
| SingfilmSolar (싱가포르) <sup>49</sup>                                  | -                                                   | 22.6%<br>( $20.25\text{ cm}^2$ )         | AM 1.5G MPPT 1300시간 초기효율 100% 유지                              | PIN   |
| Microquanta (중국) <sup>50</sup>                                      | -                                                   | 23.65%<br>( $19.38\text{ cm}^2$ )        | IEC61215 기준 UV pre-conditioning(200 kWh) 후 초기효율 95% 유지        | NIP   |

도입이 필요하다. 이를 위해 Kim *et al.*은 페로브스카이트 박막 형성에 gamma-butyrolactone (GBL), methylsulfonemethane (MSM), 및 butyl acetate (BA)와 같은 친환경 용매 및 비용매를 적용해 대면적 박막을 제작한 결과를 발표했으며, 인체/환경 유해성을 최소화한 제작 공정을 통해서도 활성 면적 기준으로 21% 이상의 대면적 모듈 효율을 달성하였다.<sup>51</sup>

페로브스카이트를 유연 기판 위에 적용하여 가볍고 유연한 폼팩터(form factor)를 갖는 발전원으로 쓰고자 하는 연구 또한 진행 중이다. Xu *et al.*은 최근 새로운 유연 페로브스카이트 모듈의 성과를 발표하였는데 이 연구에서는 정공 수송층 poly(triaryl amine) (PTAA)과 페로브스카이트 층의 접합성을

A



Recent work on perovskite solar modules

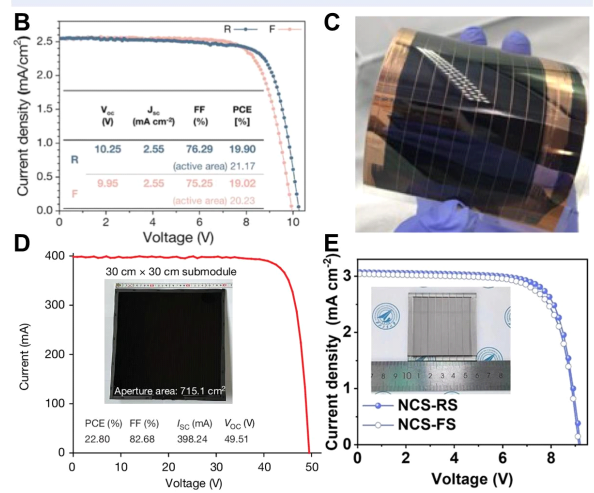


그림 5. (A) 한국화학연구원의 세계 최고 모듈 공인 효율 기록. (B-E) 최근 모듈 관련 보고 동향. 친환경 용매, 플렉서블 모듈, n-i-p 구조 모듈 및 p-i-n 모듈.<sup>5,51-54</sup>

개선하기 위해 OH<sup>-</sup>와 벤젠 고리를 포함한 새로운 첨가제인 ET 분자(entinostat)를 도입하였다.<sup>46</sup> ET의 OH<sup>-</sup> 작용기가 페로브스카이트의 Pb 원자와 결합하고 벤젠 고리는 PTAA 고분자와  $\pi$ - $\pi$  상호작용을 통해 결합함에 따라 접합성을 강화하였다. 이를 통해 소면적 유연 소자에서 23.4%의 효율을, 대면적 유연 모듈에서는 19%의 공인 효율과 20.1%의 랩 효율( $9\text{ cm}^2$ )을 달성하였다.

페로브스카이트 태양전지의 n-i-p 구조는 기판 쪽에 전자 수송층이 먼저 형성되는 형태로, 페로브스카이트 태양전지 모듈 연구시 먼저 정형화되어 자리잡았으며, 여전히 높은 효율이 보고되고 있다. Wang *et al.*은 FAPbI<sub>3</sub>에서 PbI<sub>2</sub> 및 비활성  $\delta$ -FAPbI<sub>3</sub>로 인한 비발광 재결합과 전하 수송 저해를 억제하기 위해 2-(1-cyclohexenyl)ethyl ammonium (CHEAI) 분자를 페로브스카이트 층 표면에 도입하였다.<sup>52</sup> 이를 통해 결합이 감소하고 상안정성을 따라 소면적에서 25.85%의 효율을 달성했고,  $715\text{ cm}^2$ 의 대면적 모듈에서도 초기 효율 22.46% (충진율 81.2%)를 기록하였다. 원자층 증착법(ALD)  $\text{TiO}_2$ 와  $\text{SnO}_2$  나노입자를 이용한 이중 전자 수송층을 사용하였고, 페로브스카이트 층은 진공 플래시 공정과 슬롯다이 코팅을

통해 제조되었으며, 전극은  $\text{MoO}_x/\text{Cu}$ 를 사용하여 저비용으로 제작되었다.

최근에는 탠덤 태양전지의 가능성과 함께 도핑이 필요한 전하 수송층을 적용하여 내구성이 우수한 p-i-n 구조 페로브스카이트 태양전지가 주목받고 있으며, 특히 2021년 이후 효율이 빠르게 개선되어 최근에는 n-i-p 구조를 능가하는 성과를 보여주고 있다.<sup>4</sup> 이와 같은 연구 동향은 대면적 모듈 개발에도 영향을 미쳐, 2023년 이후 p-i-n 구조의 모듈 연구가 활발히 진행되고 있다. Yang *et al.*은  $\text{NiO}_x$  정공 수송층과 페로브스카이트 층 사이에 1,3-dimethyl-benzimidazol-2-thione(NCS) 분자를 도입하여 Ni-S-Pb 브리지 결합을 형성함으로써 계면의  $\text{PbI}_2$ 와 편층 생성을 억제하고, 가전자대 최대값의 차이(VBM offset)를 최소화하여 정공 수송을 개선하였다.<sup>53</sup> 그 결과, 충전율 86% 이상을 달성했으며, 특히  $18\text{ cm}^2$ 의 모듈에서 21.16%, 작은 소자에서는 25%의 효율을 달성하고, 90% 이상의 효율을 1,700시간 동안 연속 광조사에서도 유지하는 안정성을 보고하였다.

### 3. 결론

본 총설을 통해 페로브스카이트 태양전지 모듈의 연구 동향에 대해 살펴보았다. 페로브스카이트 태양전지는 이미 실리콘 태양전지의 효율에 육박하는 높은 성능 및 어느 정도 담보된 우수한 내구성을 확보하였으며, 따라서 단일 접합 혹은 다중 접합의 다양한 형태로써 2-3년 내에 대량생산되어 일상생활에 직접 사용될 예정이다. 이러한 페로브스카이트 태양전지가 미래 탄소중립 실현 및 에너지 수요 맞춤형 에너지원이 되기 위해서는 여전히 고성능, 고내구성 및 높은 재현성의 대면적 페로브스카이트 모듈 기술이 확보되어야 할 것이다.

대면적 페로브스카이트 모듈을 성공적으로 구현하려면 다음과 같은 기술적 요소가 필수적이다: 1) 기존 셀 면적을 초과하는 대형 패널 크기에서 전하 수송층, 전극, 광활성층 고품질 박막을 형성하는 기술, 2) 고결정성과 결합 억제를 통해 안정적인 페로브스카이트 형성과 상변환을 구현하는 기술, 3) 성능 및 내구성 손실을 줄이면서 셀-투-모듈화가 가능한 최적의 구조 설계가 요구된다. 이와 같은 기술은 현재 활발히 연구되고 있으며,  $200\text{ cm}^2$  이상의 대형 셀 크기에서 이미 구현되고 있다.

이러한 기술적 진보 덕분에 학계에서 보고된 페로브스카이트 대면적 모듈의 효율은 n-i-p 및 p-i-n 구조를 가리지 않고 23%를 초과하는 수준에 이르렀다. 여전히 소면적에서의 성능이 향상되고 있으므로 향후 모듈 효율이 추가적으로 높아질 가능성도 기대된다. 특히, 소면적뿐만 아니라 대면적에서도 각광받고 있는 p-i-n 구조가 점차 더 넓은 면적에 걸쳐 22% 이상의 효율로 적용될 수 있을 것으로 보인다.

다만, p-i-n 구조의 모듈에서는 층간 접합성 확보와 얇은 전하 수송층의 레이저 식각 정밀성 유지라는 과제가 여전히 남아있으며, 이를 장기 구동 안정성 측면에서 확인해야 한다.

대면적 효율 향상 외에도 장기적 안정성을 보장할 수 있는 소재 및 소자 기술, 특히 실사용 환경에서의 외부 안정성 확보 기술에 대한 연구는 더욱 필요하다. 20년 이상의 장기 내구성을 목표로 하는 고내구성(열/광/수분) 소재와 소자 기술, 양산 재현성 향상을 위한 소재의 고속 대량 생산 및 소자 제작 공정의 환경 의존성 저감 또한 중요 연구 과제로 남아 있다. 이와 더불어, 공정 과정에서의 유해성 저감, 납 유출 방지, 재활용 기술 등의 친환경 공정 기술도 함께 개발되어야 한다.

이러한 다방면의 노력이 결합된다면 페로브스카이트 태양전지 모듈이 일상생활에 빠르게 적용될 것으로 기대되며, 페로브스카이트 모듈 연구의 남은 과제 해결을 통해 이 시기를 앞당길 수 있기를 기대해 본다.

### 참고문헌

1. H. Kim, H. McJeon, D. Jung, H. Lee, C. Bergero, and J. Eom, *Energy and Climate Change*, **3**, 100075 (2022).
2. H. S. Jung and N. G. Park, *Small*, **11**, 10 (2015).
3. M. S. de Holanda, R. F. Moral, P. E. Marchezi, F. C. Marques, and A. F. Nogueira, *EcoMat*, **3**, e12124 (2021).
4. *NREL Best Research-Cell Efficiency Chart*, retrieved from <http://www.nrel.gov/pv/cell-efficiency.html>, Accessed: Nov. 2024.
5. *NREL Champion Module Efficiency Chart*, retrieved from <http://www.nrel.gov/pv/module-efficiency.html>, Accessed: Nov. 2024.
6. M. Mittag, A. Pfreundt, J. Shahid, *Proceedings of 30<sup>th</sup> PV Solar Energy Conference* (2020).
7. *GCL Perovskite Hits High Conversion Efficiency on Single-junction Perovskite Modules*, retrieved from <https://www.pvtime.org/19-04-gcl-perovskite-hits-high-conversion-efficiency-on-single-junction-perovskite-modules-1000mmx2000mm/>, Accessed: Nov. 2024.
8. *Perovskite-info*, retrieved from <https://www.perovskite-info.com>, Accessed: Nov. 2024.
9. A. Kojima, K. Teshima, Y. Shirai, and T. Miyasaka, *J. Am. Chem. Soc.*, **131**, 6050 (2009).
10. N. J. Jeon, J. H. Noh, Y. C. Kim, W. S. Yang, S. Ryu, and S. I. Seok, *Nat. Mater.*, **13**, 897 (2014).
11. Y. Galagan, E. W. C. Coenen, W. J. H. Verhees, and R. Andriessen, *J. Mater. Chem. A*, **4**, 5700 (2016).
12. X. Gu, L. Shaw, K. Gu, M. F. Toney, and Z. Bao, *Nat. Commun.*, **9**, 534 (2018).
13. C. Huang, S. Tan, B. Yu, Y. Luo, D. Li, Q. Meng, D. Li, and Q. Meng, *Joule*, **8**, 2539 (2024).
14. X. Feng, X. Liu, G. Liu, G. Yang, Y. Fang, J. Shen, B. Jin, X. Chen, Y. Huang, X. Wang, C. Wu, S. Yang, and W. Wu, *Angew. Chem. Int. Ed.*, **63**, e202403196 (2024).

15. F. Cassella, R. D. J. Oliver, T. Thornber, S. Tucker, R. Goodwin, D. G. Lidzey, and A. J. Ramadan, *J. Mater. Chem. C*, **12**, 13332 (2024).
16. X. Xu, Y. Li, Z. Liu, M. Zhang, and Q. Chen, *Solar Energy*, **272**, 11246 (2024).
17. T. Bu, J. Li, H. Li, C. Tian, J. Su, G. Tong, L. K. Ono, C. Wang, Z. Lin, and F. Huang, *Science*, **372**, 1327 (2021).
18. QD Solar Inc. (2023), retrieved from <https://www.businesswire.com/news/home/20230214005803/en/qd-solar-report-cells-developed-for-large-scale-manufacturing>, Accessed: Nov. 2024.
19. Y. Y. Kim, T. Y. Yang, R. Suhonen, M. Välimäki, T. Maaninen, A. Kemppainen, N. J. Jeon, and J. Seo, *Adv. Sci.*, **6**, 1802094 (2019).
20. Y. Y. Kim, T. Y. Yang, R. Suhonen, A. Kemppainen, K. Hwang, N. J. Jeon, and J. Seo, *Nat. Commun.*, **11**, 5146 (2020).
21. C. Chen, J. Chen, H. Han, L. Chao, J. Hu, T. Niu, H. Dong, S. Yang, Y. Xia, Y. Chen, and W. Huang, *Nature*, **612**, 266 (2022).
22. C. Chen, C. Ran, C. Guo, Q. Yao, J. Wnag, T. Niu, D. Li, L. Chao, Y. Xia, and Y. Chen, *Adv. Energy Mater.*, **13**, 2302654 (2023).
23. H. Eggers, F. Schackmar, T. Abzieher, Q. Sun, U. Lemmer, Y. Vaynzof, and U. W. Paetzold, *Adv. Energy Mater.*, **10**, 1903184 (2020).
24. Panasonic press release (2024), retrieved from <https://news.panasonic.com/global/stories/14656>, Accessed: Nov. 2024.
25. N. Kwon, J. Lee, M. J. Ko, Y. Y. Kim, and J. Seo, *Nano Convergence*, **10**, 28 (2023).
26. J. Cheng, F. Liu, Z. Tang, and Y. Li, *Energy Technol.*, **9**, 2100204 (2021).
27. S. Sanchez, X. Hua, N. Phung, U. Steiner, and A. Abate, *Adv. Energy Mater.*, **8**, 1702915 (2018).
28. Y. Deng, C. V. Brackley, X. Dai, J. Zhao, B. Chen, and J. Huang, *Sci. Adv.*, **5**, aax7537 (2019).
29. H. C. Weerasinghe, N. Macadam, J. Kim, L. J. Sutherland, D. Angmo, L. W. T. Ng, A. D. Scully, F. Glenn, R. Chantler, N. L. Chan, M. Dehghanimadvar, L. Shi, A. W. Y. Ho-Baillie, R. Egan, A. S. R. Chesman, M. Gao, J. J. Jasieniak, T. Hasan, and D. Vak, *Nat. Commun.*, **15**, 1656 (2024).
30. X. Li, D. Bi, C. Yi, J. Decoppet, J. Luo, S. M. Zakeeruddin, A. Hagfeldt, and M. Gratzel, *Science*, **353**, 58 (2016).
31. D. H. Kim, J. B. Whitaker, Z. Li, Maikel F. A. M. Van Hest, and K. Zhu, *Joule*, **2**, 1437 (2018).
32. Z. Yang, W. Zhang, S. Wu, H. Zhu, Z. Liu, Z. Liu, Z. Jiang, R. Chen, J. Zhou, and W. Chen, *Sci. Adv.*, **7**, abg3749 (2021).
33. S. Baumann, G. E. Eperon, A. Virtuani, Q. Jeangros, D. B. Kern, D. Barrit, J. Schall, W. Nie, G. Oreski, M. Khenkin, C. Ulbrich, R. Peibst, J. S. Stein, and M. Köntges, *Energy Environ. Sci.*, **17**, 7566 (2024).
34. E. Bi, W. Tang, H. Chen, X. Yang, M. Gratzel, and L. Han, *Joule*, **3**, 2748 (2019).
35. H. Zhou, K. Cai, S. Yu, Z. Wang, Z. Xiong, Z. Chu, X. Chu, Q. Jiang, and J. You, *Nat. Commun.*, **15**, 6679 (2024).
36. E. Aydin, T. G. Allen, M. D. Bastiani, A. A. Razzaq, L. Xu, E. Ugur, J. Liu, and S. De Wolf, *Science*, **383**, adh3849 (2024).
37. NREL Champion Module Efficiency Chart, retrieved from <http://www.nrel.gov/pv/module-efficiency.html>, Accessed: Jan. 2024.
38. M. Du, S. Zhao, L. Duan, Y. Shi, K. Wang, and S. Liu, *Joule*, **6**, 1931 (2022).
39. S. You, H. Zeng, Y. Liu, B. Han, M. Li, L. Li, X. Zheng, R. Guo, L. Luo, and X. Li, *Science*, **379**, 288 (2023).
40. P. Shi, Y. Ding, B. Ding, Q. Xing, T. Kodalle, C. M. Sutter-Fella, I. Yavuz, C. Yao, W. Fan, J. Xu, Y. Tian, D. Gu, K. Zhao, S. Tan, X. Zhang, L. Yao, P. J. Dyson, J. L. Slack, D. Yang, J. Xue, M. K. Nazeeruddin, Y. Yang, and R. Wang, *Nature*, **620**, 323 (2023).
41. Y. Deng, S. Xu, S. Chen, X. Xiao, J. Zhao, and J. Huang, *Nat. Energy*, **6**, 633 (2021).
42. S. Chen, X. Dai, S. Xu, H. Jiao, L. Zhao, and J. Huang, *Science*, **373**, 902 (2021).
43. Y. Ding, B. Ding, H. Kanda, O. J. Usiobo, T. Gallet, Z. Yang, Y. Liu, H. Huang, J. Sheng, C. Liu, Y. Yang, V. I. E. Queloz, X. Zhang, J. Audinot, A. Redinger, W. Dang, E. Mosconi, W. Luo, F. De Angelis, M. Wang, P. Dorflinger, M. Armer, V. Schmid, R. Wang, K. G. Brooks, J. Wu, V. Dyakonov, G. Yang, S. Dai, P. J. Dyson, and M. K. Nazeeruddin, *Nat. Nanotechnol.*, **17**, 598 (2022).
44. H. Zhou, K. Cai, S. Yu, Z. Wang, Z. Xiong, Z. Chu, X. Chu, Q. Jiang, and J. You, *Nat. Commun.*, **15**, 6679 (2024).
45. H. Zhu, Z. Xu, Z. Zhang, S. Lian, Y. Wu, D. Zhang, H. Zhuan, L. Wang, L. Han, and C. Qin, *Adv. Mater.*, **36**, 2406872 (2024).
46. W. Xu, B. Chen, Z. Zhang, Y. Liu, Y. Xian, X. Wang, Z. Shi, H. Gu, C. Fei, N. Li, M. A. Uddin, H. Zhang, L. Dou, Y. Yan, and J. Huang, *Nat. Photon.*, **18**, 379 (2024).
47. H. Wang, S. Su, Y. Chen, M. Ren, S. Wang, Y. Wang, C. Zhu, Y. Miao, C. Ouyang, and Y. Zhao, *Nature*, **634**, 1091 (2024).
48. Mellow Energy, Retrieved from <https://www.solarbeglobal.com/mellow-energy-achieves-record-22-86-efficiency-in-large-area-perovskite-solar-modules/>, Accessed: Nov. 2024.
49. Singfilm Solar, Retrieved from <https://www.perovskite-info.com/singfilm-solar-announces-226-efficiency-perovskite-solar-module>, Accessed: Nov. 2024.
50. Microquanta, retrieved from <https://www.pvtime.org/23-65-microquanta-achieves-high-pce-on-perovskite-module/>, Accessed: Nov. 2024.
51. Y. Y. Kim, S.-M. Bang, J. Im, G. Kim, J. J. Yoo, E. Y. Park, S. Song, N. J. Jeon, and J. Seo, *Adv. Sci.*, **10**, 2300728 (2023).
52. H. Wang, S. Su, Y. Chen, M. Ren, S. Wang, Y. Wang, C. Zhu, Y. Miao, C. Ouyang, and Y. Zhao, *Nature*, **634**, 1091 (2024).
53. Y. Yang, R. Chen, J. Wu, Z. Dai, C. Luo, Z. Fang, S. Wan, L. Chao, Z. Liu, and H. Wang, *Angew. Chem. Int. Ed.*, **63**, e202409689 (2024).