인공지능 기반 무인 실험실을 통한 페로브스카이트 태양전지 개발

Development of Perovskite Solar Cells through Artificial Intelligence-Based Unmanned Laboratories

김수아¹ · 박성환^{1,2} · 김범수¹ │ Sooah Kim · Sung Hwan Park · Beom-Soo Kim

¹Division of Advanced Materials, Korea Research Institute of Chemical Technology (KRICT), 141 Gajeong-Ro, Yuseong-Gu, Daejeon 34114, Koera ²New Radiance (NR), 9-43, Gajwa Shinsong-ro, Nami-myeon, Seowon-Gu, Cheongju, Chungbuk 28181, Koera E-mail: bkim@krict.re.kr

1. 서론

최근 컴퓨터 공학과 기계공학의 발달로 인해 인공지능(artificial intellegence, AI) 기반 무인 자동화 실험실을 통한 소재 개발이 가속화 되며 주목을 받고 있다. 이에 따라 페로브스카이트 태양전지 개발에도 역시 이러한 무인 자동화 실험을 도입하는 연구가 현재 활발히 진행되고 있다. 페로브스카이트 태양전지 제작 연구에 많이 사용되는 스핀 코팅 공정을 예로 들면, 용액을 배출하는 피펫의 높이, 배출 속도, 용매의 적하량 등 인간이 정확히 제어하기 어려운 실험 결과에 영향을 끼치는 공정 변수가 많다. 또한 다양한 공정 과정 중에, 연구자 개인의 직관 및 경험적 결정에 따라 실험마다 공정의 세부 요인이 달라질 수 있는 요소가 있다. 이러한 용액 공정에 로봇이나 자동 피펫팅 장비와 같은 자동화 장치를 사용하면 지속적인 정확성을 확보하여 실험 결과의 오차를 줄이는 결과가 발표된 바 있다.¹ 또한 실험 데이터의 포괄적인 수집을 통한 빅데이터 인공지능 플랫폼을 이러한 자동화 공정에 도입하여, 실험 결과 해석 및 효율적인 실험 설계가 가능한 AI 모델을 개발하여 연구 및 상용화를 가속화할 수 있다. 본 리뷰 논문에서는 이와 같이 페로브스카이트 태양전지 개발에 사용되는 AI 모델과 자동화 공정에 관한 연구 동향을 논의하고자 한다.

2. 본론

2.1 AI와 ML의 원리

AI라는 용어는 인간의 지적 능력을 필요로 하는 작업을 수행하는 기계 또는 시스템을 의미한다. 이러한 능력을 활용하여 주변 상황을 감지하고 상호 작용하며, 판단을 내리고, 어려운 작업을 수행하게 된다. 이 때 ML (machine learning)은 작업을 수행하는 물체를 프로그래밍된 알고리즘을 통하여 데이터를 학습시키면서 시간이



지남에 따라 나아지는 능력을 제공하게 된다. 이 과정에서 음성 인식, 물체 감지와 같은 작업을 위해 다층 신경망을 통해 처리하도록 DL(deep learning)이 적용된다.²

2.2 AI를 활용한 페로브스카이트 태양전지 소재 개발 모델

태양광 산업과 관련된 인프라의 발전을 이끌어 내기 위해서는 고효율 태양전지 소재를 개발하는 것은 중요하다. 이를 위해서 재료 과학 분야에서 새로운 재료의 발견을 가속화 하는 것이 핵심 과제이다. 이를 위해서 로봇 시스템과 머신 러닝을 통합한 자동화된 실험 시스템에 관한 연구가 활발히 진행되고 있다(그림 1).

2.2.1 Neural Network 모델

Neural network는 입력 데이터를 처리하고 예측 값을 출력하는 계층적 모델로, 비선형 함수를 사용하여 복잡한 패턴을 학습한다. 이는 입력된 데이터를 뉴런이 비선형 형태의 활성화 함수에 값을 대입하여 학습시키는 과정을 거친다. 이 때, 출력 값에서 오류가 계산되면 알고리즘을 통해 이를 역방향으로 분석하여 최적의 가중치를 찾아낸다. 이러한 과정을 여러 번 반복하게 되며 예측 값과 실제 값



그림 1. PSC 연구 개발을 위한 ML 워크플로우.³

사이의 오차가 줄어들게 되어 모델의 정확도가 높아진다. ANN(artificial neural network), CNN(convolutional neural network), DNN(deep neural network) 등과 같이 입력 데이터의 문제와 성격에 따라 적용하는 모델이 다양하다. ANN은 온도, 압력, 풍속, 습도와 같은 환경 요인에 따른 최대 전력 출력을 예측할 수 있도록 학습하는 용도로 사용되고 CNN은 이미지와 같은 그리드 데이터의 공간적 구조를 고려하고 특정 시간 간격마다 수집된 일사량, 풍속과 같은 기후 관련 데이터를 분석하여 태양광 발전을 예측하는 용도로 사용된다. DNN은 ANN의 확장된 형태이며, 더 복잡한 문제를 다룰 수 있어 MPPT(maximum power point tracking)와 같이 예측 기간이 길어지고 PV(photovoltaic) 시스템의 정교한 제어가 필요한 경우에 사용된다.⁴

2.2.2 XGBoost 모델

XGBoost는 정규화 기법을 통해 매개변수들을 설정하고 대규모 데이터 셋을 병렬 및 분산 컴퓨팅 처리하여 모델의 속도와 성능 향상을 가속화한다. 이는 gradient boosting framework를 기반으로 하여 복잡하고 잡음이 많은 데이터 셋을 다루는 강력하고 유연하게 작업을 하는 도구로써 활용된다 (그림 2). 특히, 이는 페로브스카이트 재료의 주요 특성을 예측하는 데 있어 높은 정확도를 나타내었다. Y. Liu *et al.*은 페로브스카이트의 밴드 갭, J_{sc}, V_{oc} 뿐만 아니라 태양전지의 전기적 특성을 예측하는 데 XGBoost가 효과적이라고 밝혔다. 연구진들은 페로브스카이트의 5가지 화학적 구성을 기반으로 11가지의 변수(FA, MA, Cs, Pb, Sn, Br, Cl, I, 밴드 갭, △ LOMO, △HOMO)를 선택 및 비교하였다. 여기서 △LOMO, △HOMO는 페로브스카이트와 ETL, HTL 사이의 에너지 레벨 장벽이다. 결과적으로는 효율에 가장 큰 영향을 미치는 요인이 FA 함량에 있음을 확인하였다.⁵

2.2.3 HTRobot 모델

HTRobot 모델은 고처리량 실험을 수행할 수 있는 로봇



그림 2. XGBoost 모델을 활용한 페로브스카이트 태양전지 광전변환효율 최적화 과정.5

시스템으로, 다양한 재료 및 조건을 자동으로 조합하고 테스트하여 신속하게 데이터를 수집하고 분석한다. 샘플 준비, 처리 및 특성화 과정의 자동화가 이루어져 있어 실험 효율성이 크게 향상되어 있으며 실시간 분석을 통해 신뢰성 높은 최적의 조건을 찾아낼 수 있다. Y. Zhao *et al.*은 HTRobot 시스템 기반 머신 러닝을 통해 다양한 조건에서 혼합 양이온 페로브스카이트의 광열 안정성을 평가했다. 시스템은 크게 재료 합성 및 특성화, 안정성 테스트, 자동화 과정으로 구성되어 있다.⁶

2.2.4 ESCALATE 모델

특히 페로브스카이트 결정화에 대한 대규모 실험 매개 변수를 효율적으로 탐색하는 연구에도 robot-accelerated 페로브스카이트 조사 및 발견(RAPID) 플랫폼을 도입하는 추세이다. 박막 형태의 금속 할로겐화물 페로브스카이트의 합성 접근법 중 반용매 증기를 이용한 결정화 공정으로 생산된 단결정 생산에 고처리량 접근법을 적용하려면, 머신 러닝과 액체 처리 로봇과의 호환이 필요하다. Z. Li *et al*.은 45개의 화학 시스템에 걸쳐 총 8,172개의 개별 결정화 반응을 수행하였고 데이터 관리는 ESCALATE(실험 사양, 캡처 및 실험실 자동화 기술)를 통해 활성화하였다.⁷

2.3 AI 기반 페로브스카이트 태양전지 자동 공정 2.3.1 페로브스카이트 태양전지 자율 주행 실험실

페로브스카이트 물질을 광흡수층으로 사용하는 페로브스 카이트 태양전지와 같은 다층 박막 구조의 광전지 장치는 다층 스택의 계면에서 발생하는 복잡한 물리적 상호 작용을 포함하는 정교한 절차를 통해 형성된다. 따라서 로봇 자동 증착 시스템은 이러한 장치 제작의 효율성을 크게 향상시킨다. 로봇 공학 및 컴퓨터 공학과 재료 공학의 공동 연구로, 재료과학 분야에 자율 주행 연구소(self-driving laboratories, SDL) 개념이 도입되었고 이는 인간의 개입 없이 로봇 기반 자동 실험을 진행하여 데이터를 분석 및 해석하며 머신러닝 기반 AI를 통해 다음 실험 설계까지 수행한다. 이는 사람이 실험하는 것에 비해 속도를 10배까지 높이고, 생산성을 30배 향상시키는 잠재력을 가지고 있다. 이를 구현하기 위해서는 하드웨어 및 소프트웨어 모듈을 통합하여야 한다. 하드웨어적으로는 크게 재료, 시약 준비를 위해서는 액체 및 고체의 로봇식 취급, 교반, 가열 및 탈기가 필요하고 서로 다른 모듈 사이의 시료 전달을 위해서는 고정식 로봇 또는 이동식 로봇이 사용된다. 공기나 습도에 민감한 화학 화합물을 다룰 때에는 SDL을 불활성 대기에 두면 시료 처리 및 데이터의 재현성이 향상된다.8 소프트웨어 관점에서는 서로 다른 SDL 모듈 간의 데이터 흐름은 폐쇄 루프 작업의 포인트 역할을 한다. 실험실 자동화를 달성하려면 데이터를 전달하고 공유하는 것이 가능해야 한다. 플랫폼을 활용하여 SDL에 표준화된 데이터를 갖추고 그와 다르거나 동일한 SDL에서 수행된 이 전 실험의 메타 데이터에 접근하면 복잡한 유기 회합물 합성의 문제점인 재현 불가능성을 해결할 수 있다.⁹

2.3.2 페로브스카이트 소재 합성

AI 고처리량 플랫폼은 구조-특성 관계 등 현재까지 알려지지 않은 페로브스카이트의 화학적/물리적 상호의존성을 파악하기에 적합하다.¹ Y. zhao *et al.*은 다양한 ageing 조건에서 혼합 양이온 페로브스카이트의 광열 안정성을 평가하기 위해 고처리량 로봇(HTRobot) 시스템을 활용하였다(그림 3).



그림 3. (A) 자동 합성 및 특성화를 위한 HTRobot의 작업 흐름 모식도. 하단 패널의 빨간색 원은 각 샘플에 대해 테스트한 5개의 다른 위치를 나타냄. (B) 페로브스카이트 안정성 평가를 위한 고처리량 작업의 상세 작업 흐름도.⁶

ABX3 구조에서 A는 1가 양이온, B는 납 양이온, X는 할로겐 화물을 나타내는데, 이 연구에서는 메틸암모늄(MA), 세슘 (Cs), 루비듐(Rb) 및 칼륨(K)을 조합 양이온으로 포함하는 FAPbI3를 페로브스카이트 host 물질로 사용하여 혼합 양이온 요오드화 납페로브스카이트의 64개 조성 조건에서 태양전지의 수명을 분석했다. 그 결과, Cs 첨가는 고온(>100 ℃)에서 페로브스카이트를 안정화하지만 저온(<100 ℃)에서는 해롭고 MA 첨가는 전반적으로 안정성에 중립적인 영향을 끼치지만 저온에서 더욱 긍정적인 영향을 끼친다는 것을 알게 되었다. 결론적으로 페로브스카이트 격자 구조에 최소 10 mol%의 유기 양이온 MA와 최대 5 mol% 무기 양이온 (Cs/Rb)을 도입한 경우 100 ℃ 미만의 온도에서 태양전지의 안정성이 향상되었다. 이 전 연구에서는 주로 소수의 샘플에서 열 안정성을 비교했지만, 이 논문은 고처리량 플랫폼을 이용해 64개의 다양한 조성에서의 열 안정성을 비교하였다. 또한 페로브스카이트 precursor 준비 및 spin-coating은 N₂ 분위기의 글로브박스 내에서 로봇이 진행 하였으므로 조성 및 열처리 온도 외의 변수를 통제할 수 있었다.6

2.3.3 페로브스카이트 광흡수층 박막 제작

페로브스카이트 태양전지를 용액 공정 방법으로 제작할

때. 서로 밀접하게 연관된 처리 매개변수를 동시에 최적화 하기는 어렵다. 따라서 J. Zhang et al.은 실험 제어를 통해 수백 개의 샘플을 사람 없이 제작할 수 있는 spin-coating 플랫폼 SPINBOT을 적용하였다(그림 4). SPINBOT은 Bayesian optimization (BO) 알고리즘으로 반복적인 최적화 과정을 통해 페로브스카이트 박막의 재현성을 향상시켰다. 4개 축 (X, Y, Z 및 R축)을 따라 이동하는 데 사용되는 SPINBOT 은 빠른 속도, 유연성 및 강성을 갖춘 SCARA(선택적 준수 조립 로봇 팔)로 이루어져있다. 이 연구에서는 ITO/SnO2-PEIE(polyethylenimine)/perovskite/PDCBT(poly[2,2 ""-bis [[(2-butyloctyl)oxy]carbonyl][2,2':5',2'':5'',2'''quaterthiophene]-5.5"-divl])/PTAA-BCF((tris(pentafluorophenvl)) borane-doped poly(triarylamine))/Au 구조의 n-i-p 페로브스 카이트 태양전지 성능을 최적화하고자 페로브스카이트 용액 공정 시 팁 높이, 회전 속도, 반용매 적하량 및 분배 타이밍(1~5단계) 조건에 따른 박막의 성능을 PL 측정값으로 비교했다. 그 결과, 페로브스카이트 precursor를 22초 동안 4.660 rpm으로 코팅한 후. 그 위에 150 uL의 CB를 디스펜스 높이 2.6 mm에서 속도 165 µL s⁻¹로 6초간 떨어뜨리고 공기 중에서 100 ℃ 10분, 150 ℃ 5분 열처리하였을 때 광전 변환효율(PCE) 21.6%, VOC 1.13 V, JSC 24.5 mA cm⁻²,



그림 4. SPINBOT 플랫폼과 단계별 최적화 워크플로우. (A) SPINBOT 플랫폼 사진. 1. 4개의 이동 축(X, Y, Z 및 R축)이 있는 로봇 팔. 2. 액체 취급 피펫. 3. 기판 처리 그리퍼. 4. 미니 스핀 코터. 5. 피펫 팁. 6. 용액 보관 및 반용매용 용액 용기로 사용되는 96-well 마이크로플레이트. 7. 캐리어 홀더. 8. 핫 플레이트. (B) SPINBOT 플랫폼을 통해 제작된 샘플에 대한 높은 처리량(HT) 특성화의 도식과 특성화 방법에 포함되는 정상 상태 PL, UV-vis 흡수 및 시간 분해 PL(TRPL) 스펙트럼. (C) BO-guided 실험 워크플로우의 개요. 워크플로우에는 고품질의 재현 가능 페로브스카이트 샘플을 달성하기 위한 반복적인 최적화 작업이 포함됨.¹¹



그림 5. (A) Step 2에서 팁 높이 별 제작한 박막의 PL 강도 분포(13점, P1-13)를 나타내는 등고선 지도 (B) 최적의 절차를 통해 제작한 밀봉되지 않은 장치의 금속-할라이드 램프(83 mW cm⁻²) 아래 N2 충전 챔버 60~65 ℃에서 역방향으로 테스트한 장기 안정성.¹⁰

Fill factor 78%로 최적의 소자 성능을 보였고, 60-65 ℃에서 금속-할라이드 램프 조사 1,100시간 후에도 초기 효율의 90%를 유지하는 안정성을 나타내었다(그림 5).¹⁰

2.3.4 전하수송층 제작

B. P. MacLeod et al. 은 Ada 플랫폼을 활용하여 페로브스 카이트 태양전지의 정공 수송층을 최적화하였다. 정공 수송층인 Spiro-OMeTAD는 Co 도펀트, 4-tert-butylpyridine 첨가제의 비율 및 spin-coating 후 처리에 매우 민감하므로 이러한 각 요인이 정공 이동성에 어떤 영향을 미치는지 모델링하기 어려운 특성이 있다. 이 연구에서는 회전 가능한 공압 그리퍼와 플랫폼과 상호 작용하여 작업할 수 있는 피펫 마운트가 장착된 다목적 로봇을 사용하여 실험을 진행하였고, Ada 프로그램을 이용한 4 point probe 전도도와 UV-vis-NIR 분광학 측정을 통해 정공 이동도에 비례하는 유사 이동성을 분석하였다. 이는 사람이 진행하는 일반적 연구에서보다 더 넓은 범위의 도핑 및 열처리 조건을 탐색하는 자율 플랫폼을 사용했으므로 단기간에 최적의 조건을 찾을 수 있었다. 결과적으로 녹는점이 189 ℃인 Co 도펀트를 충분히 첨가한다면 Spiro-OMeTAD의 정공 이동성이 향상될 뿐 아니라 열 안정성 감소를 극복한다는 결론을 도출하였다.11

3. 결론

태양전지와 같은 적층형 박막 소자 제작에는 매우 다양한 공정 변수가 존재하므로, 이를 통제하여 더 정확한 연구 결과를 도출하기 위해서는 로봇 기반 자동화 공정이 유리하다. 이 뿐만 아니라 이러한 시스템을 최적화 하면 많은 실험 데이터를 생성할 수 있는 high throughput system(HTS) 구현이 가능하며, 이를 통해 양질의 빅데이터를 생성할 수 있다. 이를 기반으로 태양전지의 소자 효율, 안정성 및 기타 상용화에 필요한 다양한 파라미터를 예측하고 개선할 수 있는 AI 모델을 개발한다면, 전자, 에너지, 광전자공학을 포함한 다양한 분야에 큰 기여를 할 것으로 예상된다.¹⁰

감사의 글

이 논문은 정부(과학기술정보통신부)의 재원으로 한국 연구재단(디지털연구혁신선도기관육성사업)의 지원을 받아 수행된 연구임(RS-2023-00283597).

참고문헌

- J. Wagner, C. G. Berger, X. Du, T. Stubhan, J. A. Hauch, and C. J. Brabec, *J. Mater. Sci.*, **56**, 16422 (2021).
- 2. I. H. Sarker, SN Comput. Sci., 2, 160 (2021).
- N. K. Bansal, S. Mishra, H. Dixit, S. Porwal, P. Singh, and T. Singh, *Energy Technol.*, **11**, 2300735 (2023).
- 4. S. Datta, A. Baul, G. C. Sarker, P. K. Sadhu, and D. R. Hodges, *IEEE Access*, **11**, 77750 (2023).
- W. Yan, Y. Liu, Y. Zang, J. Cheng, Y. Wang, L. Chu, X. Tan, L. Liu, P. Zhou, W. Li, and Z. Zhong, *Nano Energy*, **99**, 107394 (2022).
- 6. Y. Zhao, J. Zhang, Z. Xu, S. Sun, S. Langner, N. T. P. Hartono, T. Heumueller, Y. Hou, J. Elia, N. Li, G. J. Matt, X. Du, W. Meng, A. Osvet, K. Zhang, T. Stubhan, Y. Feng, J. Hauch, E. H. Sargent, T. Buonassisi, and C. J. Brabec, *Nat. Commun.*, **12**, 2191 (2021).
- Z. Li, M. A. Najeeb, L. Alves, A. Z. Sherman, V. Shekar, P. C. Parrilla, I. M. Pendleton, W. Wang, P. W. Nega, M. Zeller, J. Schrier, A. J. Norquist, and E. M. Chan, *Chem. Mater.*, **32**, 5650 (2020).
- 8. M. Abolhasani and E. Kumacheva, Nat. Synth, 2, 483 (2023).
- J. Bai, L. Cao, S. Mosbach, J. Akroyd, A. A. Lapkin, and M. Kraft, *JACS Au*, 2, 292 (2022).
- J. Zhang, J. Wu, S. Arnold, T. Osterrieder, J. A. Hauch, Z. Wu, J. Wagner, C. G. Berger, F. Schmitt, M. Sytnyk, T. Heumueller, I. M. Peters, and C. J. Brabec, *Adv. Energy Mater.*, 13, 2302594 (2023).
- B. P. MacLeod, F. G. L. Parlane, T. D. Morrissey, F. Hase, L. M. Roch, K. E. Dettelbach, R. Moreira, L. P. E. Yunker, M. B. Rooney, J. R. Deeth, V. Lai, G. J. Ng, H. Situ, R. H. Zhang, M. S. Elliott, T. H. Haley, D. J. Dvorak, A. Aspuru-Guzik, J. E. Hein, and C. P. Berlinguette, *Sci. Adv.*, 6, eaaz8867 (2020).