

즉시 / 2022. 7. 27.(수)

연구책임자 이탁희 교수 (02-880-4269), 강기훈 교수 (02-880-7189),
이정재 박사 (02-377-3073), 이태우 교수 (02-880-8021) / 교신저자
연구진 백경운 (02-880-8806), 이우철 연구원 / 제1저자

차세대 디스플레이 소재 페로브스카이트의 발광효율을 극대화하는 기계화학적 합성법 제시

- 세계적 학술지 'Nature Communications' 논문 게재 -

- 차세대 디스플레이 소재로 각광을 받고 있는 페로브스카이트의 발광효율을 극대화 할 수 있는 방법이 국내 연구진에 의해 규명되었다.
- 페로브스카이트 발광체는 합성 및 색조절의 용이성, 높은 색순도 및 발광효율 등의 다양한 장점으로 인해 디스플레이, 태양전지, 광검출기 등의 차세대 광전자 소재로 활발히 연구되고 있다.
- 본 연구결과는 세계 최고 과학전문지인 'Nature' 의 자매지로 자연과학의 모든 분야에 걸쳐 수준 높은 논문이 출판되는 학술지인 'Nature Communications' 에 2022년 7월 23일자로 게재되었다.
- 이 연구는 서울대 물리천문학부 이탁희 교수와 재료공학부 강기훈 교수를 중심으로, 이정재 박사 (서울대 지구환경과학부), 이태우 교수 (서울대 재료공학부)가 공동지도하였으며 한국연구재단의 개인연구사업(중견연구, 리더연구), 서울대학교 기초과학연구원 자율중점연구소, 서울대학교 기초교육원 학부생연구지원프로그램의 지원으로 수행되었다.
- 점점 더 선명하고 생동감 있게 진화하는 최첨단 디스플레이의 발광층으로 활용될 수 있는 물질을 찾는 연구가 활발한 가운데, 금속 할

라이드 페로브스카이트* 발광체가 주목받고 있다.

※ 금속 할라이드 페로브스카이트 : 지구내부에 존재하는 광물인 페로브스카이트 (CaTiO₃)와 동일한 구조를 가지는 ABX₃ (X=염소, 브롬, 요오드) 구조의 화합물

- 하지만 페로브스카이트 소재는 현재 발광효율과 발광지속성이 상대적으로 낮아서 이를 해결하기 위해 세계적으로 연구가 집중되고 있다.
- 발광효율과 지속성의 문제를 해결하기 위해 최근에는 페로브스카이트 단일소재에서 나아가, 페로브스카이트를 다른 물질과 이종구조(heterostructure)의 형태로 혼합하는 방식의 소재개발이 주목을 받고 있다.
- 그러나 기존에 쓰이던 용액 합성법으로는 페로브스카이트 이종구조의 조성 및 구조적 배열의 조절이 어렵다는 단점이 있다.
- 본 연구팀은 용액 합성법의 대안으로 기계화학적 합성법(mechanochemical synthesis)을 적용하여, 발광효율이 극대화된 다차원의 세슘-납-브롬 물질로 이뤄진 페로브스카이트 이종구조의 배열상태를 구현할 수 있는 새로운 합성경로를 제시하였다.
- 특히, 페로브스카이트 이종구조의 형성과정을 합성시간에 따라서 분석한 결과 발광체가 절연체 호스트에 캡슐화되어 있는 구조에서 가장 높은 발광효율을 보였다.
- 이 합성법은 인체 및 환경에 해로운 용매의 사용이 없어 환경친화적이고, 높은 수율을 자랑하며, 대량합성이 가능하므로 산업계에서 활용될 수 있는 높은 발전가능성을 가지고 있다.
- 이 논문의 제 1저자인 백경운 학생은 현재 서울대학교 물리천문학부 학부생이며 이탁희 교수 연구실의 학부인턴으로 연구를 수행하였고 올해 가을 미국 하버드 대학교 물리학과 박사과정 진학을 앞두고 있다.
- 백경운 학생은 “재료공학 분야에서 주목받는 물질에 대해 물리학적 관점에서 근본적인 물성을 탐구하는 연구를 함으로써 물리학의 응용분야

가 광범위하다는 것을 실감했다”고 소감을 밝혔으며 “강의실에서 접할 수 없는 실험 기자재들을 많이 다룰 수 있었던 뜻깊은 경험이었다.”고 덧붙였다.

- 이번 연구를 공동지도한 **강기훈 교수**는 본 연구성과에 대해 “재료, 물리, 화학분야 연구진들의 다양한 전문성과 과학적 시각의 시너지가 돋보인 **다학제간 연구의 표본**이라고 생각한다”며 “포닥연구원 때부터 상대적으로 늦게 페로브스카이트 연구주제에 뛰어들었을 때의 막연한 불안감이 있었지만, 새로운 분야를 공부하는 것이 흥미로워서 재미있게 연구할 수 있었다. 특히, 연구진들과 함께 의미 있는 연구적 성과를 낼 수 있어서 기쁘고 감사드린다”고 소감을 밝혔다.
- **이택희 교수**는 “이번 연구에서 다양한 구조와 조성의 페로브스카이트에 대해 발광효율을 극대화할 수 있는 방법을 제시하였으며 **차세대 디스플레이 소재의 대량생산 가능성을 제시하였다**”고 연구의의를 밝혔다.

[붙임] 1. 연구결과 2. 용어설명 3. 그림설명

연구결과

Mechanochemistry-driven engineering of 0D/3D heterostructure for designing highly luminescent Cs-Pb-Br perovskites

Kyeong-Yoon Baek[†], Woocheol Lee[†], Jonghoon Lee, Jaeyoung Kim, Heebeom Ahn, Jae Il Kim, Junwoo Kim, Hyungbin Lim, Jiwon Shin, Yoon-Joo Ko, Hyeon-Dong Lee, Richard H. Friend, Tae-Woo Lee*, Jeongjae Lee*, Keehoon Kang*, and Takhee Lee*

(Nature Communications, 13, Article number: 4263 (2022),

Open Access Published: 23 July 2022;

<https://www.nature.com/articles/s41467-022-31924-x>)

1. 연구배경 및 목적

- 절연체 내에 페로브스카이트 입자를 캡슐화하여 이종구조를 형성하는 것은 페로브스카이트의 뛰어난 발광성을 효과적으로 발현시킬 수 있는 전략으로 주목을 받고 있다. 그러나 현재까지 이종구조 형성과정의 원리에 대한 정보가 제한되었으므로 이종구조의 구조 및 조성에 대한 정밀한 조절이 불가능하였다.
- 본 연구에서는 기계화학적 합성법을 통해 페로브스카이트의 형성 메커니즘을 체계적 실험법을 통해 분석하였으며 이를 기반으로 페로브스카이트의 발광효율을 극대화 할 수 있는 합성경로를 제시하였다.

2. 연구결과

- 이 연구에서는 기계화학적 합성법(그림 1)을 통해 유사-페로브스카이트 물질인 Cs₄PbBr₆의 형성 메커니즘을 분석하였다. 이 합성과정을 여러 단계로 나누어 구조, 조성 및 광학적 분석을 진행하여 페로브스카이트 형성 및 이종구조의 진화과정을 추적할 수 있다.

- Cs_4PbBr_6 의 합성단계에서 다양한 세슘, 납, 브로민(Cs-Pb-Br)으로 구성된 다형체(polymorph)들을 관찰하였을 때, 합성반응 중간단계에서 초록색 발광이 최고점을 갖는 현상이 발견되었다(그림 2a,b). 연구팀은 이 중간단계에 형성된 다형체의 조성 및 구조 분석을 통해 밝은 초록색 발광성의 원인은 바로 Cs_4PbBr_6 절연체 호스트에 캡슐화되어 형성된 $CsPbBr_3$ 페로브스카이트 발광체 때문이라고 결론짓는 동시에, 기계화학적 합성법을 통해 Cs_4PbBr_6 페로브스카이트의 단계별 형성 메커니즘을 규명할 수 있었다(그림 2c).
- 이 단계별 형성 메커니즘에 대한 이해는 Cs-Pb-Br 페로브스카이트의 발광효율을 향상시키기 위한 기계화학적 합성경로를 설계하는데 결정적인 역할을 하였다(그림 3a,b). 이를 통해, 높은 발광효율의 페로브스카이트 발광체를 합성하기 위해 의도적으로 엔도탁시(endotaxy) 방식으로 0차원 절연체가 3차원 페로브스카이트 표면으로부터 형성되는 것을 촉진시키기 위해 합성경로를 설계할 수 있다는 가능성을 보여주었다(그림 3c).

3. 연구성과 및 기대효과

- 본 연구에서는 기존의 용액 기반 합성법으로 규명되기 어려웠던 페로브스카이트 발광성의 구조적 기원을 기계화학적 합성법으로 제시하였다. 본 연구의 방법론은 다양한 종류의 페로브스카이트 형성 메커니즘을 밝히고, 높은 발광효율의 소재를 개발하는데 넓게 적용될 수 있는 새로운 방향을 제시하였다는 점에 학술적 의의가 높다.
- 본 연구는 다양한 소재의 구조-물성 관계 연구에 활용 가능하여, 차세대 디스플레이에 요구되는 친환경적 대량생산 합성법 기반 소재 원천 기술 개발에 핵심 통찰력을 제공할 것이라고 기대해 볼 수 있다.

1. < 네이처 커뮤니케이션즈 (Nature Communications) >

- 네이처 자매지로 자연과학의 모든 분야에 걸쳐 논문이 출판되며 2021년 기준 JCR Impact Factor가 14.919 이다.

2. 페로브스카이트 (Perovskite)

- ABX_3 의 구조식을 갖는 물질로써 재료공학에서 주로 사용되는 광전 자소자 역할의 금속 할라이드 페로브스카이트의 경우 A 위치에 유/무기 이온, B 위치에 금속 이온, X 위치에 할로젠 이온이 자리한다. 유사-페로브스카이트 구조로는 '0차원'이라는 별칭을 갖는 A_4BX_6 구조 등이 있다.

3. 기계화학적 합성법 (Mechanochemical synthesis; MCS)

- 기계적인 힘을 통해 유도된 마찰에너지로 화학합성을 일으키는 방법을 일컬어 부르는 합성법이다. 볼밀링, 막자사발로 뺨기 등 모두 기계화학적 합성법에 해당하며 다양한 구성의 페로브스카이트 물질을 용이하게 합성할 수 있는 방법으로 부상하고 있다. 용액 합성법과는 다르게 투입된 전구체 대비 반응물의 수득율이 높으며 합성도중에 사용되는 해로운 용매가 없으므로 친환경적인 합성법이다.

4. 발광효율 (Photoluminescence quantum efficiency; PLQE)

- 샘플에 조사된 빛 중 흡수된 광자 대비 방출된 광자의 비율을 %로 나타낸 값이다. 물질에 결함(defect)이 발광효율을 떨어뜨리는 주요 원인 중 하나인데 결함은 페로브스카이트의 표면에 위치하는 경우가 많으므로 표면을 잘 캡슐화하는 것이 발광효율을 증진시키는데 중요하다.

그림 설명

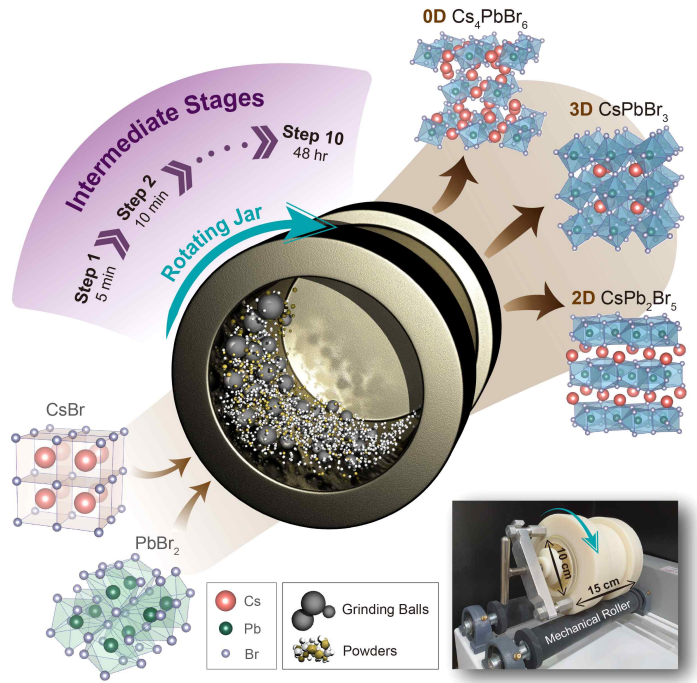


그림 1. 기계화학적 합성법의 과정을 설명하는 모식도. 전구체 파우더와 그라인딩 볼의 충돌로 야기되는 마찰에너지를 통해 화학반응이 유도되는 방식으로 합성과정에 따른 물성의 변화를 관찰하기에 용이하다.

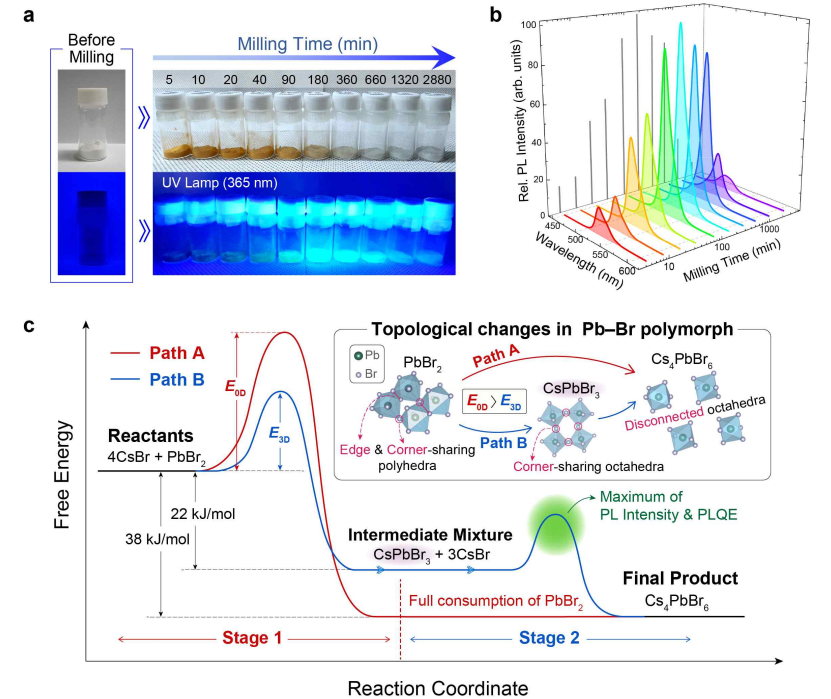


그림 2. Cs_4PbBr_6 페로브스카이트의 합성과정 분석. **a.** 합성 단계별 형광등(위) 및 자외선 램프(아래) 아래 육안으로 관찰한 샘플의 색깔 변화. **b.** 합성 시간에 따른 발광성 세기 변화. **c.** Cs_4PbBr_6 페로브스카이트의 형성 메커니즘 모식도

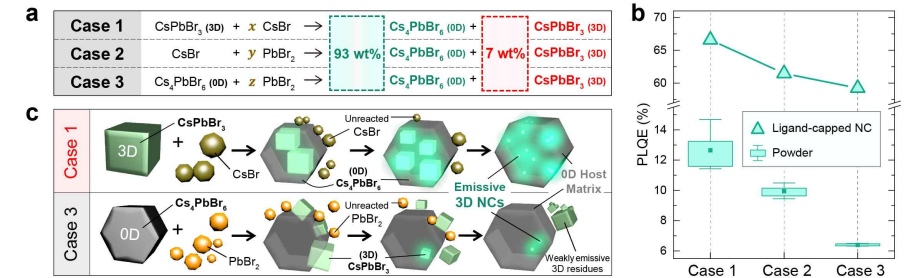


그림 3. 페로브스카이트 발광효율을 극대화 할 수 있는 합성법. **a.** 서로 다른 배열상태를 유도하는 합성경로 3가지. **b.** 3가지 합성경로에 따른 발광효율 비교. **c.** 서로 다른 합성경로에서 발광효율의 차이가 발생하는 원인.