

Abstract

In this work, inorganic-organic hybrid perovskite (ABX_3 ; A: Ammonium derivatives and Cs^+ , B: Pb^{2+} , X: Br^- , I^-) solar cells (PSCs) were developed and the suitability of binary and ternary metal oxides (TiO_2 , U_3O_8 , CeO_2 , Ta_2O_5 , $LaNbO_4$) as electron transport materials (ETMs) in perovskite solar cells was evaluated. The liquid processable PSCs, with demonstrated efficiencies of 25%, lack long-term stability, due to the tendency of ABX_3 to react with atmospheric humidity and its photodecomposition by catalytic metal oxides. Firstly, a standard process for the fabrication of multilayer perovskite solar cell was established, to evaluate the stability and efficiency of above-mentioned metal oxides as ETMs in perovskite solar cells. Through systematic variation of electron and hole transfer materials, perovskite absorber layers and contact material, PSCs in different configurations were developed. For this purpose, various thin film techniques such as spin coating, spray pyrolysis, atomic layer deposition and plasma enhanced chemical vapor deposition, were used to deposit functional layers in desired architecture. A range of semiconductor metal oxide, such as TiO_2 , Ta_2O_5 , CeO_2 , U_3O_8 and $LaNbO_4$ were tested in this work, because of their optical and electronic properties, wide band gaps and n-type semiconductor behaviour. Compared to prototype ETM TiO_2 , other compositions, explored in this work, have not been reported in literature as electron transport material in perovskite solar cells and could potentially improve the device efficiency and stability, due to a better band alignment and the lack of photocatalytic activity. The fundamental electron transfer dynamics of the used metal oxides in PSCs were investigated by steady-state and transient photoluminescence spectroscopy. The type of band alignment was determined via ultraviolet photoelectron spectroscopy and Tauc plots. Besides the replacement of the ETM, a superhydrophobic encapsulant, ($SiO_xC_yH_z$), was deposited by plasma-enhanced chemical vapour deposition, which delayed the degradation of the perovskite absorber as successfully demonstrated by long-term stability studies.

Kurzzusammenfassung

In dieser Arbeit wurden anorganisch-organische hybride Perowskitsolarzellen (ABX_3 ; A: Ammoniumderivate und Cs^+ , B: Pb^{2+} , X: Br^- , I^-) entwickelt und die Eignung von binären und ternären Metalloxiden (TiO_2 , U_3O_8 , CeO_2 , Ta_2O_5 , $LaNbO_4$) in Perowskitsolarzellen als Elektronentransportmaterialien untersucht. Die flüssig prozessierte anorganisch-organische hybride Perowskitsolarzelle, mit demonstrierten Wirkungsgraden von 25%, mangelt es an langfristiger Stabilität aufgrund der Neigung des ABX_3 Materials mit Luftfeuchtigkeit zu reagieren und seiner Photozersetzung durch katalytische Metalloxide. Um die Stabilität und Effizienz der Solarzellen in Verbindung mit den zuvor genannten Metalloxiden als Elektronentransportmaterial zu bewerten, wurde zunächst ein Standardprozess zur Herstellung der mehrschichtigen Perowskitsolarzelle etabliert. Durch systematische Variation der Elektronen- und Lochtransportmaterialien, der Perowskitabsorberschichten und Kontaktmaterialien, konnten anorganisch-organisch hybride Perowskitsolarzellen in verschiedenen Konfigurationen entwickelt werden. Für diesen Zweck wurden verschiedene Dünnschichtverfahren, wie die Schleuderbeschichtung, Sprühpyrolyse, Atomlagenabscheidung und plasmaunterstützte chemische Gasphasenabscheidung genutzt, um funktionelle Schichten in gewünschter Architektur abzuscheiden. Eine Fülle an Metalloxidkandidaten, wie TiO_2 , Ta_2O_5 , CeO_2 , U_3O_8 und $LaNbO_4$, wurde in dieser Arbeit getestet, aufgrund ihrer optischen und elektrischen Eigenschaften, großen Bandlücken und n-Halbleiterverhalten. Im Vergleich zum Elektronentransportmaterialprototyp TiO_2 , weitere Materialzusammensetzungen, welche hier in dieser Arbeit sondiert wurden, wurden in der Literatur noch nicht als Elektronentransportmaterial für Perowskitsolarzellen genutzt. Dennoch könnten sie potentiell, aufgrund einer besseren Bänderlage und fehlender photokatalytischer Aktivität, die Effizienz und Stabilität der Solarzellen verbessern. Die grundlegende Elektronentransferdynamik der verwendeten Schwermetalloxide in Perowskitsolarzellen wurde durch stationäre und transiente Photolumineszenzspektroskopie untersucht. Die Art der Bänderlage wurde durch Ultraviolettphotoelektronenspektroskopie und Tauc-Plots bestimmt. Neben der Suche nach Elektronenleitermaterialersatz wurde in dieser Arbeit auch ein superhydrophobes Verkapselungsmittel, $(SiO_xC_yH_z)$, über plasmaunterstützte Gasphasenabscheidung hergestellt, welches die Zersetzung des Perowskitabsorbers verzögert. Die verzögerte Zersetzung wurde durch Langzeitstudien bewiesen.