

Zusammenfassung

Das Interesse an Perowskit-Solarzellen nimmt aufgrund ihrer vielseitigen Anwendbarkeit für Energiegewinnungssysteme rasant zu. In den letzten Jahren haben Wissenschaftler die Dünnschichteigenschaften dieser Solarzellen für flexible Geräte erforscht und ausgenutzt. Während sich die meisten Forschungsarbeiten immer noch auf die Methoden der Dünnschichtabscheidung konzentrieren, werden faserartige Geometrien jedoch weitestgehend vernachlässigt. Da eine 1D-Struktur im Vergleich zu planaren Systemen eine größere Flexibilität bietet, sind Anwendungen möglich die von sogenannten „smarten Textilien“ und „Wearables“ bis hin zum Leichtbauapplikationen reichen. Das Elektrosponnen, als vielseitiges und hochskalierbares Verfahren, ermöglicht die Bildung hochflexibler Faserstrukturen, die für optoelektronische Anwendungen geeignet sind. Eine intensive Untersuchung gängiger Perowskit-Solarzellenkomponenten, einschließlich Loch- (CuI, CuSCN, NiO, PEDOT:PSS) und Elektronentransportmaterialien (TiO_2 , SnO_2 , ZnO), sowie photoabsorbierender Perowskite (MAPbI_3 , FAPbI_3 , CsPbI_3 , $(\text{MA})_3\text{Bi}_2\text{I}_9$), hat zu einer Vielzahl neuartiger Verbundfasern geführt, die in dieser Arbeit vorgestellt werden. So wurden umfangreiche Untersuchungen der funktionellen Eigenschaften, insbesondere von MAPbI_3 - und CsPbI_3 -Perowskit-Fasern, durchgeführt. Dazu gehörten stationäre und zeitaufgelöste Photolumineszenz (PL)-Messungen, Leitfähigkeitsmessungen einzelner Fasern mittels leitfähiger Rasterkraftmikroskopie (AFM) und Röntgenphotoelektronenspektroskopische (XPS)-Analysen. So konnte beispielsweise der photoelektrische Effekt einzelner MAPbI_3 -Fasern direkt nachgewiesen werden, während γ - CsPbI_3 eine bemerkenswerte Langzeitstabilität von über einem halben Jahr zeigte.

Die angestrebte Struktur für die hier vorgeschlagene Perowskit-Solarzellenfaser besteht aus einem lochleitenden Kern, einer photoabsorbierenden Perowskit-Zwischenschicht und einer elektronenleitenden Hülle. Durch eine Kern-Schale-Elektrosponntechnik unter Verwendung von Spinndüsen mit mehreren Kanälen konnten erste Materialzusammensetzungen ($\text{PEDOT:PSS}/\text{MAPbI}_3$ und $\text{CuSCN}/\text{MAPbI}_3$) in koaxialer Geometrie realisiert und durch Transmissionselektronenmikroskopie (TEM) mit gekoppelter energiedispersiver Röntgenspektroskopie (EDX) im Detail untersucht werden. Eine direkte Beobachtung des unterschiedlichen Kern- und Schalenmaterials wurde durch den Einsatz eines fokussierten Ionenstrahl (FIB), gekoppelt mit der Rasterelektronenmikroskopie (REM) ermöglicht. Fluoreszenzaufnahmen mit einem konfokalen Laser-Scanning-Mikroskop sowie Röntgenbeugungsexperimente vervollständigten den analytischen Umfang dieser Arbeit.

Da über elektrogesponnene triaxiale Fasern in der Literatur noch kaum berichtet wird, können die hier vorgestellten triaxialen $\text{CuSCN}/\text{MaPbI}_3/\text{Zn}(\text{OAc})_2$ -Kompositfasern als ein wichtiger Forschungshöhepunkt dieser Arbeit angesehen werden, welcher den Weg für die Realisierung von elektrogesponnenen Perowskit-Solarzellen ebnet. Auch

hier konnten durch sorgfältige Anwendung von FIB-SEM-Techniken sowie durch TEM-Bildgebung eindeutige Kern-, Zwischen- und Schalenbereiche validiert werden.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass die in dieser Arbeit vorgestellten Ergebnisse den Grundstein für elektrogesponnene Perowskit-Solarzellen, hergestellt in einem einzigen Prozessierungsschritt, legen, indem sie eine Reihe von optimierten funktionalen Materialfasern, sowie erste Umsetzungen von ko- und triaxialen Fasergeometrien in erheblichem Umfang ermöglichen. Weitere Prozessoptimierungen werden jedoch notwendig sein, um den postulierten erheblichen Nutzen dieses neuen Bereichs der Perowskit-Solarzelltechnologie zu bestätigen.

Abstract

The interest in perovskite solar cells is growing rapidly due to their versatile applicability for energy harvesting systems. In recent years, scientists have been exploring and exploiting thin film characteristics of these solar cells for flexible devices. While most of the research still focuses on thin film deposition methods, fibrous geometries are largely neglected. Since a 1D structure provides a greater flexibility in comparison to planar systems, applications ranging from smart garment and wearables to lightweight construction are feasible. Electrospinning, as a versatile and up scalable method, enables the formation of highly flexible fiber structures, suitable for optoelectronic applications. An intense screening through common perovskite solar cell components, including hole- (CuI, CuSCN, NiO, PEDOT:PSS) and electron transport materials (TiO₂, SnO₂, ZnO), as well as photo-absorbing perovskites (MAPbI₃, FAPbI₃, CsPbI₃, (MA)₃Bi₂I₉), has led to a variety of novel composite fibers presented in this thesis. For example, extensive investigations of functional properties, especially of MAPbI₃ and CsPbI₃ perovskite fibers were conducted and included steady-state and time-resolved photoluminescence (PL) measurements, conductivity measurement of single fibers by a conductive atomic force microscopy (AFM) approach and X-ray photoelectron spectroscopy (XPS) analysis. It was therefore possible, to directly show the photoelectric effect of single MAPbI₃ fiber stands, while γ -CsPbI₃ showed remarkable long-term stability of over half a year.

The targeted structure for a here proposed perovskite solar cell fiber consists of a hole conducting core, a photoabsorbent perovskite interlayer, and an electron conducting shell. Achieved through a core-shell electrospinning technique utilizing multi channelled spinnerets, first realizations of material compositions (PEDOT:PSS/MAPbI₃ and CuSCN/MAPbI₃) in coaxial geometry were possible and studied in detail by transmission electron microscopy (TEM) with coupled energy-dispersive X-ray spectroscopy (EDX). A direct observation of distinct core and shell material was enabled by a focused ion beam (FIB) coupled scanning electron microscopy (SEM) approach. Further, fluorescence imaging by a confocal laser scanning microscope, as

well as X-ray diffraction experiments finalized the analytical scope provided in this thesis.

Since electrospun triaxial fibers are still scarcely reported in literature, the here presented triaxial $\text{CuSCN}/\text{MaPbI}_3/\text{Zn(OAc)}_2$ composite fibers can be considered as a major research highlight of this work, paving the way for a realization of electrospun perovskite solar cells. Again, distinct core-, inter-, and shell regions could be validated by careful application of FIB-SEM techniques, as well as by TEM imaging.

In summary, the presented results in this thesis lay the foundation for single-step electrospun perovskite solar cells, by providing a range of optimized functional material fibers and first realizations of co- and triaxial fiber geometries to a significant extent. However, further process optimization will be necessary to confirm the assumed strong benefit of this new branch of perovskite solar cells.