

Kurzzusammenfassung

Halogenid Perowskite zeichnen sich durch verschiedene vorteilhafte Eigenschaften aus, die diese hybride organische/anorganische Materialklasse sehr interessant für Solarzellenapplikationen macht. Innerhalb weniger Jahre haben Halogenid Perowskite bewiesen, dass sie das Potenzial haben, Bauteil-Effizienzen anderen Dünnschichttechnologien zu übertreffen. Durch die Verwendung von Perowskiten gelang es, Solarzellen-Effizienzen von 20% zu überschreiten. Allerdings gibt es weit verbreitete Schwierigkeiten, diese Materialien mit ausreichender Reproduzierbarkeit herzustellen. Diese Problematik führt in der Literatur zu einer großen Variation der berichteten Bauteil-Effizienzen und grundlegenden physikalischen Eigenschaften.

Entsprechend befasst sich der erste Teil dieser Arbeit mit einer detaillierten Untersuchung der elektronischen Struktur einer großen Anzahl an $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ (MAPbI₃) Perowskit Filmen, die mit unterschiedlichen Präparationstechniken unter Verwendung verschiedener Verhältnisse der Präkursor-Materialien hergestellt wurden. Kombinierte Untersuchungen mit Ultraviolettphotoelektronenspektroskopie (engl.: *Ultraviolet photoelectron spectroscopy*; UPS) und Röntgenphotoelektronenspektroskopie (engl.: *X-ray photoelectron spectroscopy*; XPS) zeigten, dass Variationen der Film-Stöchiometrie sowohl zu einer Änderung der besetzten Zustandsdichte (engl.: *density of states*; DOS) in der Nähe des Valenzbandes (VB) als auch zu einer Änderung der Ionisierungsenergie (IE) führen. Letztere kann dadurch um bis zu 1 eV variiert werden. Mittels Röntgendiffraktometrie (engl.: *X-ray diffraction*; XRD) konnte gezeigt werden, dass Variationen der Film-Stöchiometrie nicht zur Bildung separater Phasen führen, sondern die Zwischengitteratome homogen im Material verteilt sind. Ferner wurde MAPbI₃, welches mit verschiedenen PbI₂ zu MAI Stöchiometrien hergestellt wurde, als aktive Schicht in organischen Solarzellen eingesetzt. Es konnte eine eindeutige Korrelation zwischen der Änderung der DOS und dem Wirkungsgrad (engl.: *Power conversion efficiency*; PCE) der Bauteile festgestellt werden.

In den letzten Jahren rückte die Untersuchung des Effekts der Zugabe von zu Blei heterovalenten und isovalenten Kationen auf den Perowskit Film vermehrt in den Fokus der Forschung. Die kontrollierte Modifikation von Perowskit Filmen durch Dotierung und/oder Legierung kann potentiell eine Schlüsselrolle für den zukünftigen Erfolg dieser Materialklasse für verschiedene Anwendungen, beispielsweise in der Photovoltaik, in Licht emittierenden

Dioden (LEDs), Lasern und Fotodetektoren führen. Allerdings besteht noch eine Herausforderung darin, die Rolle der extrinsisch eingebrachten Ionen grundlegend zu verstehen.

Daher wird im zweiten Teil dieser Arbeit die Inkorporation verschiedener, zu Blei heterovalenter und isovalenter Metallsubstituenten (Sr, Bi, Cd, Cu, Sb, Co, Mn, Al und In) in MAPbI₃ Filme untersucht. Es wird dabei sowohl auf den Effekt der Substituenten auf die elektronischen Zustände und Eigenschaften als auch optischen und strukturellen Eigenschaften der MAPbI₃ Filme eingegangen. Photoelektronenspektroskopie Messungen zeigten, dass In, Bi, Sb und Sr erfolgreich in verschiedenen Oxidationsstufen inkorporiert wurden. Allerdings führte die Inkorporation dieser Metalle nicht zu offensichtlichen Dotiereffekten. Kombinierte Untersuchungen zeigten jedoch, dass die Inkorporation von In und Bi zur Bildung von ausgeprägten Oberflächendipolen führt (ca. 1000 meV bzw. 400 meV). Diese Oberflächendipole lassen sich auf die Bildung von InI und BiI₃ Schichten auf der Oberfläche der Perowskit Filme zurückführen. Die Inkorporation von heterovalenten Metallen führte zur prägnantesten Änderung der Leitfähigkeit. Durch die Verwendung von Indium konnte die Leitfähigkeit um ca. eine Größenordnung und durch die Verwendung von Bi um ca. den Faktor vier gesteigert werden.