

CH₃NH₃PbI₃形貌对钙钛矿电池性能的影响研究

李 毅^{1,2}, 朱 俊², 张旭辉², 戴松元^{2,3}

(1. 兰州空间技术物理研究所, 真空技术与物理重点实验室, 兰州 730000; 2. 中国科学院合肥物质科学研究院, 应用技术研究所以, 新型薄膜太阳能电池重点实验室, 合肥 230031; 3. 华北电力大学, 新能源电力系统国家重点实验室, 北京 102206)

摘 要: 研究不同CH₃NH₃bI₃钙钛矿形貌对钙钛矿太阳能电池光伏性能的影响。采用传统的一步法和三步法制备出不同CH₃NH₃bI₃钙钛矿形貌对电池的光伏性能有重要影响。结果表明, 钙钛矿在TiO₂电子传输材料表面的覆盖程度对钙钛矿太阳能电池的开路电压和填充因子有重要影响。三步法制备的钙钛矿太阳能电池获得1.03 V的开路电压和20.25 mA/cm²短路电流密度, 而一步法只有0.72 V和18.42 mA/cm²。同时, 三步法制备的钙钛矿太阳能电池的填充因子高达77.2%, 相比一步法只有64.5%。2种方法制备的钙钛矿电池分别获得17.36%和8.55%的光电转换效率。利用电化学阻抗谱进一步分析一步法和三步法制备的钙钛矿太阳能电池的内部电荷复合动力学过程, 解释三步法制备的钙钛矿太阳能电池获得更高开路电压的原因。

关键词: 太阳能电池; 钙钛矿; 形貌; 阻抗谱

中图分类号: O649

文献标识码: A

0 引 言

由于有机无机卤素铅钙钛矿(CH₃NH₃PbX₃, X=Cl, Br, I)材料具有出色的光吸收系数、合适的禁带宽度、高电荷迁移率和较长的扩散长度等优点, 被广泛应用于薄膜太阳能电池当中^[1-6]。此外, 钙钛矿材料的组成元素在地球上含量丰富且其容易采用简单的低温溶液法制备。自2009年Miyasaka研究组^[7]首次将钙钛矿材料应用到太阳能电池当中, 近几年来钙钛矿太阳能电池得到快速发展, 其光电效率高达25.2%^[8]。当初钙钛矿被作为敏化剂引入到染料敏化太阳能电池当中时, CH₃NH₃PbI₃钙钛矿以量子点或超薄层的形式沉积到介孔TiO₂表面^[7,9], 这种方法制备的CH₃NH₃PbI₃薄膜可使空穴传输材料渗透到金属氧化物的孔隙当中, 例如常见的空穴传输材料有spiro-MeOTAD、P3HT等。采用这种方法制备的钙钛矿太阳能电池的光伏性能严重依赖于空穴传输材料的填充情况。随后研究发现用钙钛矿CH₃NH₃PbI₃填充到金属氧化物的孔隙中, 钙钛矿太

阳电池的效率可提高到12%^[10]。当在介孔TiO₂薄膜上形成致密的钙钛矿帽子层时, 钙钛矿太阳能电池效率更高。在众多制备CH₃NH₃bI₃钙钛矿填充介孔金属氧化物孔隙的方法中的三步法是实现重复性好、高效率钙钛矿太阳能电池的有效方法之一^[2,11,12]。值得一提的是, 一步法制备的钙钛矿形貌不可控, 会导致钙钛矿形貌变化性大, 最终导致钙钛矿电池的光电转换效率不均。如果在旋涂一步法制备钙钛矿溶液时, 旋涂时滴甲苯^[13]或者吹气法^[14], 可有效改变钙钛矿的形貌、结晶程度及在介孔金属氧化物表面的覆盖程度都能获得超过16%的光电转换效率。本文采用传统的一步法^[1,15]和三步法^[2]制备CH₃NH₃bI₃钙钛矿, 研究CH₃NH₃bI₃钙钛矿形貌对钙钛矿太阳能电池光伏性能的影响。同时采用电化学阻抗谱研究钙钛矿形貌差异对钙钛矿太阳能电池中电荷复合动力学的影响。

1 实 验

1.1 实验试剂和部分材料合成

碘化铅(99%)、异丙醇醇钛(97%)、双三氟甲磺

收稿日期: 2017-03-21

基金项目: 国家重点基础研究(973)发展计划(2015CB932201); 国家自然科学基金(51572080); 纳米专项(2016YFA0202400); “111”引智(B16016)

通信作者: 戴松元(1967—), 男, 博士、研究员, 主要从事太阳能材料方面的研究。sydai@ipp.ac.cn

酰亚胺锂(99.95%)、四叔丁基吡啶(96%)、N, N-二甲基甲酰胺(99.9%)、氢碘酸(质量分数 57% in water)从 Sigma-Aldrich 公司购买;甲胺(40% in Methanol)从 TCI 公司购买;商用纳米 TiO_2 浆料(Dyesol 18NRT)从 Dyesol 公司购买;其他未说明试剂来自国药集团化学有限公司或实验室自制。

$\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}$ 的合成: $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}$ 的合成按照文献报道的方法^[9]。30 mL 氢碘酸和 27.8 mL 甲胺在冰浴条件下搅拌反应 2 h 之后,在 50 °C 下真空旋转蒸发,得到白色粉末。用乙醚洗涤,然后抽滤,重复 3 次,最后真空干燥即得 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}$ 白色粉末。

1.2 器件制备

1.2.1 基底准备

1.5 cm×2.0 cm 尺寸的 FTO 导电玻璃(15 Ω/□)使用锌粉和 2 mol/L 盐酸刻蚀掉部分导电层,以防止电池短路。用水和洗涤剂清洗,随后分别在超纯水、丙酮和无水乙醇超声 20 min,冲洗干净。干燥后在 510 °C 下煅烧 30 min。 TiO_2 致密层(bl- TiO_2)按照文献报道的方法制备^[16]。简单地说,一层 50 nm 厚 bl- TiO_2 采用旋涂法制备(旋涂速度 2000 r/min,时长 30 s),旋涂溶液为 0.013 mol/L 异丙氧钛的乙醇溶液。随后 500 °C 烧结 FTO/bl- TiO_2 30 min。介孔 TiO_2 膜的制备:商用 TiO_2 浆料(Dyesol 18NRT)用乙醇稀释(稀释质量比例为 1.0:3.5,充分搅拌超声)。将稀释好的 TiO_2 浆料旋涂到 FTO/bl- TiO_2 基底上,旋涂速度 5000 r/min,时长 30 s,500 °C 烧结 30 min,用 40 mmol/L TiCl_4 水溶液处理介孔 TiO_2 薄膜,处理温度为 60 °C,时间为 1 h,再次 500 °C 烧结 30 min。

1.2.2 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ 钙钛矿制备

$\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ 采用 2 种方法制备:

1)一步法^[1](未有气体^[14]或甲苯溶液^[13]辅助),①将 2.385 g $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}$ 和 1.391 g PbCl_2 (物质的量之比 3:1)溶解到 5.663 g DMF(质量分数 40%)中,60 °C 加热搅拌一晚上,用 0.22 μm 聚四氟乙烯油系过滤嘴过滤一次。②将钙钛矿溶液旋涂到制备好的介孔 TiO_2 薄膜上。旋涂速度 3000 r/min,时长 30 s,100 °C 加热 30 min,形成钙钛矿层。

2)三步法^[2],①将浓度为 40 mg/mL 的 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}$ 的异丙醇溶液旋涂到介孔 TiO_2 膜上(转速 3000 r/min,时长 30 s),将 PbI_2 DMF 溶液(1 mol)旋涂到 $\text{TiO}_2/\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}$ 膜上(转速 3000 r/min,时长 30 s)。②再

次旋涂 50 mg/mL 的 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}$ 异丙醇溶液到介孔 $\text{TiO}_2/\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}/\text{PbI}_2$ 膜上(转速 3000 r/min,时长 30 s),105 °C 加热 1 h,反应生成 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ 膜。

Spiro-MeOTAD 空穴传输材料组成包括:每毫升氯苯中含有 72.3 mg spiro-MeOTAD、28.8 μL LiBP 和 17.5 μL LiTFSI 的乙腈溶液(520 mg/mL)。空穴传输材料旋涂到钙钛矿表面的旋涂为 4000 r/min,时长 30 s;对电极采用热蒸发蒸镀 60 nm 金完成电池制备。太阳电池的有效面积为 0.09 cm²(0.3 cm×0.3 cm 的黑色掩膜)。

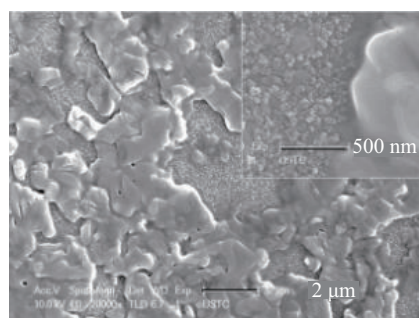
1.3 表征和测试方法

薄膜表面形貌用场发射扫描电子显微镜表征(FE-SEM, sirion200, FEI Corp., Holland);采用紫外可见分光光度计(U-3900H 型,日本)测试材料的光吸收谱;单色光光电转换效率(IPCE)测试采用 300 W 氙灯(69911, Newport 公司,美国)发射的白光经过单色仪(74125 Oriel Cornerstone 260, Newport 公司,美国)后变为单色光(光谱范围 300~900 nm)先后照射到标准硅探头和样品上,单色光光强和样品光电流通过双通道光功率/电流计(2931-C, Newport 公司,美国)和标准硅探头测量。采样波长间隔为 10 nm,采样时间为 2 s。电池测试的光强由标准单晶硅电池标定。测试中所使用的光强为 AM 1.5(100 mW/cm²)。在光态下,电池的 $J-V$ 曲线测试采用 3A 级标准光源(94043A, Newport 公司,美国)与数字源表(2420, Keithley 公司,美国)进行测量,测试过程和数据输出通过 Testpoint 软件自动完成。利用电化学工作站(Autolab 320, Metrohm 公司,瑞士)测量不同电池的电化学阻抗谱。阻抗谱是在暗态条件和在偏压为 -0.8 V 测试,测量频率范围为 1 Hz~1 MHz,正弦扰幅 20 mV,阻抗谱数据用 Z-View 软件拟合(v2.8b, Scribner Associates, USA)。

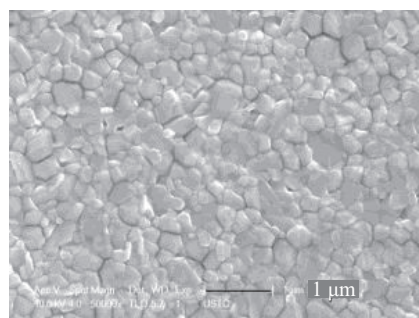
2 结果与讨论

用一步法和三步法制备的 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ 形貌完全不同。图 1 所示为采用一步法和三步法制备在 FTO/ TiO_2 基底上形成 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ 薄膜表面的扫描电子显微镜(SEM)图。从图 1 可明显看出这 2 种方法制备的 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ 形貌是完全不同的。一步法制备在介孔 TiO_2 薄膜上的 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ 形貌是无定型的(图 1a)。而三步法制备在介孔 TiO_2 薄膜上的

$\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ 形貌成平整、致密、无空隙和针孔状 (图 1b)。除了形貌上的差别,一步法制备的 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ 钙钛矿未完全覆盖住介孔 TiO_2 薄膜表面,部分 TiO_2 表面裸露在外边 (见图 1a 中的放大图)。钙钛矿在 TiO_2 表面上不完全覆盖可能与溶液的湿润性有关,由于较强的离子键 (1.25 mol/L 的 CH_3NH_3^+ 和 Pb^{2+} 及 3.75 mol/L 的 I^-)^[17],或是 CH_3NH_3^+ 和 Pb^{2+} 正离子之间的相互排斥。相反,三步法制备的 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ 晶形尺寸在 200~500 nm 之间,完全覆盖在介孔 TiO_2 薄膜表面 (图 1b 放大图)。此外,三步法制备的 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ 钙钛矿在介孔 TiO_2 薄膜表面形成一层非常致密 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ 的帽子层,厚度大于 200 到 300 nm 后。众所周知, PbI_2 呈层状结构,吡啶和甲胺这类基于路易斯 (Lewis) 分子会与层状 PbI_2 发生插层反应^[18],嵌入到层状 PbI_2 间中形成夹层结构。值得一提的是,这种反应并非通过电子转移形成离子键来完成的,而是通过共用电子对来实现的。刘易斯的偶极矩分子或氢通过 N—H 键结合是发生插层反应的必要条件。因此, PbI_2 和 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}$ 之间的反应可被看作是“伪”插层反应。因为 I^- 在 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}$ 盐中作为电子给体存在。通过 I_2 和



a. 一步法



b. 三步法

图1 采用一步法和三步法制备的 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ 薄膜SEM图

Fig. 1 Surface SEM images of one-step deposition of $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ and three-step deposition of $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$

I^- 反应, PbI_2 和 I^- 之间形成假定的 $(\text{PbI}_3)^-$, 随后与 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}$ 反应生成 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ 。当空穴传输材料制备到钙钛矿覆盖不充分的 FTO/ TiO_2 薄膜表面时,导致空穴传输材料与 TiO_2 之间接触,从而导致严重的复合^[19]。但是三步法制备的致密的 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ 帽子层阻碍了 spiro-MeOTAD 与 TiO_2 过多接触,减小电荷的复合过程。

图 2 所示为一步法和三步法制备的 $\text{TiO}_2/\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ 薄膜的紫外可见吸收光谱。从图 2 可看出,不管是一步法还是三步法制备钙钛矿, $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ 的吸收光谱都只能到 800 nm,这是由 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ 钙钛矿本身的光学带隙 (1.57 eV) 决定的。除此之外,一步法制备的钙钛矿在 600~800 nm 之间吸收比三步法强。相比,三步法制备的钙钛矿在 300~600 nm 之间吸收比一步法强。原因可能是一步法和三步法制备的钙钛矿在 TiO_2 表面形成的形貌不同而造成的。

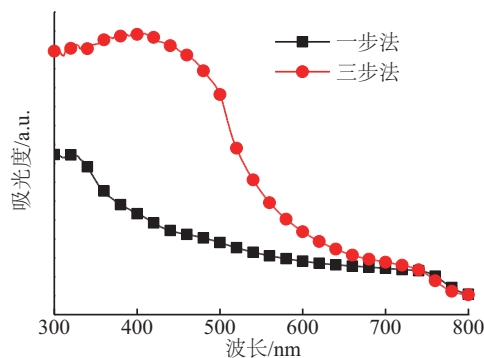
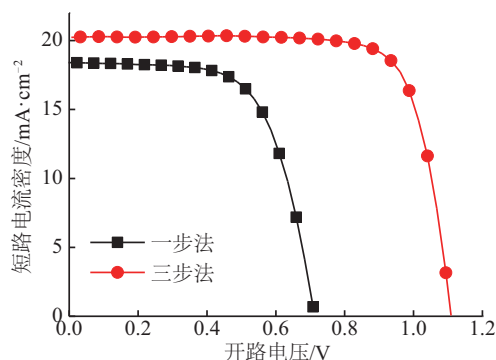


图2 一步法和三步法制备 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ 的吸收光谱

Fig. 2 Absorption spectra of $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ made by one-step and three-step process

采用一步法和三步法制备制备 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ 钙钛矿作为光吸收材料, spiro-MeOTAD 作为空穴传输材料,制备结构为 FTO/ TiO_2 / $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ (一步法和三步法)/spiro-MeOTAD/Au 全固态钙钛矿太阳能电池。图 3 和表 1 所示为一步法和三步法方法制备的不同钙钛矿形貌对钙钛矿太阳能电池光伏性能的影响。从图 3 中可看出,钙钛矿不同形貌对钙钛矿电池的性能有很显著的影响。三步法制备的钙钛矿太阳能电池的光伏性能明显优于一步法制备的钙钛矿太阳能电池的性能。获得 18.94 mA/cm^2 的短路电流密度 (J_{sc}),类似一步法制备的钙钛矿电池的。然而,开路电压 (V_{oc}) 和填充因子 (FF) 有很大的差

别。相比一步法,三步法制备的钙钛矿太阳电池的光电转换效率(PCE)明显从 8.55% 提高到 17.36%。主要是由于开路电压(V_{oc})从 0.72 V 升至 1.11 V,短路电流密度(J_{sc})从 18.42 mA/cm^2 增至 20.25 mA/cm^2 ,填充因子(FF)从 64.5% 增至 77.2%。



注:电池结构为FTO/介孔 $\text{TiO}_2/\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3/\text{spiro-MEOTAD}/\text{Au}$

图3 一步法和三步法制备钙钛矿太阳电池的 J - V 曲线

Fig. 3 J - V curves of perovskite solar cells based on one-step and three-step process

表1 一步法和三步法制备钙钛矿太阳电池的光伏性能参数

Table 1 Photovoltaic performance parameter values of perovskite solar cells based on one-step and three-step process SILAR cycles

制备 方法	开路电压 V_{oc}/V	短路电流 密度 $J_{sc}/\text{mA} \cdot \text{cm}^{-2}$	填充 因子 FF	转换 效率 $\eta/\%$
一步法	0.72	18.42	64.5	8.55
三步法	1.11	20.25	77.2	17.36

测试一步法和三步法制备的钙钛矿太阳电池的入射单色光电转换效率(IPCE)如图4所示。2种方法制备的钙钛矿电池的IPCE光谱响应范围都在300~800 nm,这与 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ 带隙相对应。从图4可看出一步法和三步法制备的钙钛矿电池的IPCE在400~600 nm 范围内IPCE都超过70%。通过积分各自的IPCE,得到一步法和三步法的IPCE积分电流密度分别为 17.56 和 19.45 mA/cm^2 ,这与 J - V 测试所得地钙钛矿电池的 J_{sc} 相符合。

为解释一步法和三步法制备的钙钛矿太阳电池获得不同电压的原因,采用电化学阻抗谱(IS)研究钙钛矿太阳电池中的电荷复合动力学过程,如图5所示。复合电阻(R_{rec})可通过拟合阻抗谱得到,

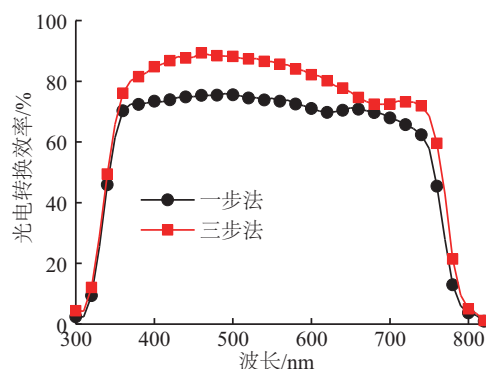


图4 一步法和三步法制备钙钛矿太阳电池的IPCE

Fig. 4 IPCE spectra for perovskite solar cells based on one-step and three-step process

在阻抗谱中,高频区第1个圆弧指电荷在空穴传输层的传输过程,第2个圆弧代表 TiO_2 和空穴传输层之间的复合过程。从图5可看出,在相同偏压下,一步法的 R_{rec} 比三步法制备的小,这说明一步法制备的钙钛矿电池电荷复合过程比三步法制备的快。因此,可看出一步法情况下的钙钛矿电池内部复合更严重,从而导致该方法制备的电池开路电压较低。相反,三步法制备的钙钛矿复合较小,这是因为三步法制备的钙钛矿在 TiO_2 表面形成一层紧密的钙钛矿层,有效阻挡了空穴传输材料与 TiO_2 之间过多的接触,从而减少了它们之间的复合过程。所以三步法制备的电池开路电压比一步法情况的高390 mV。这说明三步法制备的致密钙钛矿帽子层抑制了 TiO_2 与空穴传输材料之间的复合,有效提高了电池的开路电压。

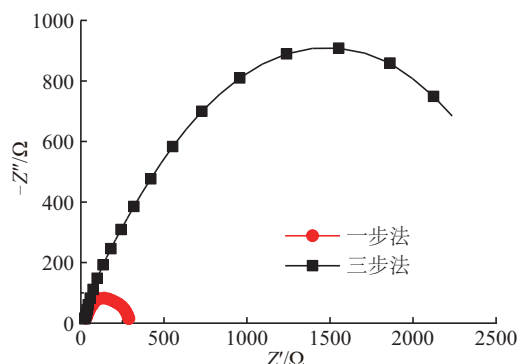


图5 在暗态下一步法和三步法制备的钙钛矿电池的奈奎斯特图

Fig. 5 Nyquist plots for perovskite solar cells based on one-step and three-step process under dark conditions

3 结 论

本文采用传统的一步法和三步法制备不同的 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{bI}_3$ 钙钛矿, $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{bI}_3$ 形貌对电池的光电转换效率有重要影响。三步法制备的钙钛矿太阳能电池获得 1.11 V 的开路电压和 77.2 % 的填充因子, 而一步法只有 0.72 V 和 64.5%。采用电化学阻抗谱分析一步法和三步法制备的钙钛矿太阳能电池的内部电荷复合动力学过程, 结果表明: 三步法制备的钙钛矿在 TiO_2 表面形成一层紧密的钙钛矿层, 阻挡了空穴传输材料与 TiO_2 之间过多的接触, 有效抑制了 TiO_2 与空穴传输材料之间的复合, 从而获得更高的开路电压。

[参考文献]

- [1] Kim Hui-Seon, Lee Chang-Ryul, Im Jeong-Hyeok, et al. Lead iodide perovskite sensitized all- solid- state submicron thin film mesoscopic solar cell with efficiency exceeding 9% [J]. Scientific Reports, 2012, 2 (8) : 591—598.
- [2] 戴松元, 李兆乾, 桃李, 等. 一步法合成微纳结构 TiO_2 及在染料敏化太阳能电池中的应用[J]. 安徽师范大学学报: 自然科学版, 2015, 38(4): 307—315.
- [2] Dai Songyuan, Li Zhaoqian, Tao Li, et al. Symbiosis of TiO_2 microspheres and nanoparticles via a one- pot process and its application in dye- sensitized solar cell [J]. Journal of Anhui Normal University: Natural Science, 2015, 38(4): 307—315.
- [3] 王福芝, 谭占鳌, 戴松元, 等. 平面异质结有机-无机杂化钙钛矿太阳能电池研究进展[J]. 物理学报, 2015, 64(3): 39—56.
- [3] Wang Fuzhi, Tan Zhanao, Dai Songyuan, et al. Recent advances in planar hetero junction organic- inorganic hybrid perovskite solar cells [J]. Acta Physica Sinica, 2015, 64(3): 39—56.
- [4] 周 立, 朱 俊, 徐亚峰, 等. 绝缘氧化物包覆对钙钛矿太阳能电池性能及界面电荷复合动力学的影响[J]. 物理化学学报, 2016, 32(5): 1207—1213.
- [4] Zhou Li, Zhu Jun, Xu Yafeng, et al. Influence of insulating oxide coatings on the performance of perovskite solar cells and the interface charge recombination dynamics [J]. Acta Physico- Chimica Sinica, 2016, 32(5): 1207—1213.
- [5] 刘西成, 王德强, 博 田, 等. D-a 型三芳胺空穴传输材料的合成及其在钙钛矿电池中的应用[J]. 太阳能学报, 2015, 36(6): 1522—1527.
- [5] Liu Xicheng, Wang Deqiang, Tian Bo, et al. D-A type, triarylamine, hole-transport material, perovskite, solar cell [J]. Acta Energetica Solaris Sinica, 2015, 36 (6) : 1522—1527.
- [6] 姚 鑫, 丁艳丽, 张晓丹, 等. 钙钛矿太阳能电池综述[J]. 物理学报, 2015, 64(3): 145—152.
- [6] Yao Xin, Ding Yanli, Zhang Xiaodan, et al. A review of the perovskite solar cells [J]. Acta Physica Sinica, 2015, 64(3): 145—152.
- [7] Kojima A, Teshima K, Shirai Y, et al. Organometal halide perovskites as visible- light sensitizers for photovoltaic cells [J]. Journal of the American Chemical Society, 2009, 131(17): 6050—6051.
- [8] NREL. Best research-cell efficiencies [EB/OL]. <https://www.nrel.gov/pv/assets/pdfs/best-research-cell-efficiencies.20190802.pdf>, 2019-08-02.
- [9] Im Jeong-Hyeok, Lee Chang-Ryul, Lee Jin-Wook, et al. 6.5% efficient perovskite quantum- dot- sensitized solar cell [J]. Nanoscale, 2011, 3(10): 4088—4093.
- [10] Heo Jin Hyuck, Im Sang Hyuk, Noh Jun Hong, et al. Efficient inorganic-organic hybrid heterojunction solar cells containing perovskite compound and polymeric hole conductors [J]. Nat Photon, 2013, 7 (6) : 486—491.
- [11] Im Jeong- Hyeok, Jang In- Hyuk, Norman P, et al. Growth of $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ cuboids with controlled size for high- efficiency perovskite solar cells [J]. Nature Nanotechnology, 2014, 9(11): 927—932.
- [12] 董 巧, 夏 昕, 张 兵, 等. ABX₃型太阳能电池材料结构掺杂与优化的DFT研究[J]. 太阳能学报, 2016, 37(12): 3086—3090.
- [12] Dong Qiao, Xia Xin, Zhang Bing, et al. DFT modeling of ABX₃ type perovskite doping structures [J]. Acta Energetica Solaris Sinica, 2016, 37(12): 3086—3090.
- [13] Jeon Nan Joong, Noh Jun Hong, Kim Young Chan, et al. Solvent engineering for high-performance inorganic-organic hybrid perovskite solar cells [J]. Nat Mater, 2014, 13(9): 897—903.
- [14] Huang Fuzhi, Dkhissi Yasmina, Huang Wanchao, et al. Gas- assisted preparation of lead iodide perovskite films consisting of a monolayer of single crystalline grains for high efficiency planar solar cells [J]. Nano Energy, 2014, 10: 10—18.
- [15] Ball J M, Lee M M, Hey A, et al. Low- temperature

- processed meso-superstructured to thin-film perovskite solar cells[J]. *Energy & Environmental Science*, 2013, 6(3): 1739—1743.
- [16] Eperon G E, Stranks S D, Menelaou C, et al. Formamidinium lead trihalide: A broadly tunable perovskite for efficient planar heterojunction solar cells [J]. *Energy & Environmental Science*, 2014, 7 (3) : 982—988
- [17] Steitz R, Jaeger W, Klitzing R V. Influence of charge density and ionic strength on the multilayer formation of strong polyelectrolytes [J]. *Langmuir*, 2001, 17 (15) : 4471—4474
- [18] Coleman C C, Goldwhite H, Tikkanen W. A review of intercalation in heavy metal iodides[J]. *Chemistry of Materials*, 1998, 10(10): 2794—2800.
- [19] Im Jeong-Hyeok, Kim Hui-Seon, Park Nam-Gyu. Morphology-photovoltaic property correlation in perovskite solar cells: One-step versus two-step deposition of $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ [J]. *APL Materials*, 2014, 2 (8): 081510.

INVESTIGATION ON MORPHOLOGY-PHOTOVOLTAIC PROPERTY CORRELATION IN PEROVSKITE SOLAR CELLS

Li Yi^{1,2}, Zhu Jun², Zhang Xuhui², Dai Songyuan^{2,3}

(1. *Science and Technology on Vacuum Technology and Physical Laboratory, Lanzhou Institute of Physics, Lanzhou 730000, China;*
2. *Key Laboratory of Novel Thin-Film Solar Cells, Institute of Applied Technology, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China;*
3. *State Key Laboratory of Alternate Electrical Power System with Renewable Energy Sources, North China Electric Power University, Beijing 102206, China*)

Abstract: Here we have investigated morphology and photovoltaic performance depending on deposition procedure of $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$. Perovskite $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ as light absorber is deposited on the mesoporous TiO_2 layer via one-step and three-step methods and their photovoltaic performances are compared. Open-circuit voltage, short-circuit current density and power conversion efficiency of 1.11 V, 20.25 mA/cm^2 and 17.36% are observed from the three-step method produced perovskite solar cell, while higher values of 0.72 V, 18.42 mA/cm^2 and 8.55% are obtained from the one-step method deposited ones. Recombination kinetics of devices based on one-step and three-step procedure are investigated using a impedance spectra, the reason of higher open-circuit voltage obtained from three-step method produced perovskite solar cell than that for one-step deposited perovskite solar cells was investigated.

Keywords: solar cells; perovskite; morphology; impedance spectroscopy