

# उच्च दक्षता सौर सेल के लिए चतुष्क अमोनियम धनायन युक्त स्थायी लेड हैलाइड पेरोवस्काइट

## Stable Lead Halide Perovskite with Quaternary Ammonium Cations for High Efficiency Solar Cell

नमन शुक्ला, बी.गोपाल कृष्णा, संजय तिवारी

Naman Shukla<sup>1</sup>, B.Gopal Krishna<sup>2</sup>, Sanjay Tiwari<sup>3</sup>

<sup>1,2,3</sup> Photonics Research Laboratory, SOS in Electronics and Photonics,

Pt. Ravishankar Shukla University, Raipur, Chhattisgarh- 492010

<sup>1</sup>naman.shukla43@gmail.com, <sup>2</sup>krishna\_burra85@yahoo.com, <sup>3</sup>drsanjaytiwari@gmail.com

### सारांश

कार्बनिक अकार्बनिक लेड हैलाइड पेरोवस्काइट अपने उच्च प्रकाश-अवशोषण-गुणांक तथा लगभग 1.5 eV से 2.0 eV के परिवर्तनीय ऊर्जा बैंड अन्तराल के कारण प्रकाशवोल्टीय युक्ति के लिए उपयुक्त है। किन्तु हैलाइड पेरोवस्काइट आधारित सौर सेलों में तापीय अस्थायित्व और नमी सवेदनशीलता विद्यमान है, जो सेल के स्थायित्व और दक्षता को प्रभावित करते हैं। इस शोधपत्र में, सौर सेल अनुप्रयोगों के लिए चतुष्क अमोनियम धनायन आधारित लेड हैलाइड पेरोवस्काइट  $(\text{CH}_3)_4\text{NPbI}_{3-x}\text{Cl}_x$  के संश्लेषण की रिपोर्ट प्रस्तुत किया गया है। विजिबल-अल्ट्रावायलेट वर्णक्रम (UV-Vis) के स्पेक्ट्रोस्कोपिक अध्ययनों से संश्लेषित पेरोवस्काइट का ऑप्टिकल बैंडगैप 2.61 eV प्राप्त किया गया है।  $(\text{CH}_3)_4\text{NPbI}_{3-x}\text{Cl}_x$  आधारित पेरोवस्काइट सौर सेल में इलेक्ट्रान आवेश परिवहन को सुगम बनाने हेतु  $\text{TiO}_2$  व धनात्मक आवेश परिवहन के लिए PEDOT:PSS का उपयोग किया गया है। सौर सेल की डिवाइस संरचना पारम्परिक n-i-p प्रकार की है। FTO/c-TiO<sub>2</sub>/(CH<sub>3</sub>)<sub>4</sub>NPbI<sub>3-x</sub>Cl<sub>x</sub>/PEDOT:PSS/Al का ओपन सर्किट वोल्टेज (Voc), शॉर्ट सर्किट करंट डेन्सिटी (Jsc) और दक्षता क्रमशः 0.5 V, 6.7 mA/cm<sup>2</sup> और 2.09% हैं। इन परिणामों से स्थापित होता है कि चतुष्क अमोनियम धनायन युक्त लेड हैलाइड पेरोवस्काइट  $(\text{CH}_3)_4\text{NPbI}_{3-x}\text{Cl}_x$  का उपयोग स्थाई प्रकाशवोल्टीय युक्तियों के निर्माण हेतु किया जा सकता है।

### Abstract

Organic Inorganic lead halide Perovskites are promising photovoltaic materials with high light absorption coefficient and tunable band gap of 1.5 to 2.0 eV. But these materials are thermally instable and moisture sensitive. In this paper, we report the synthesis of lead halide perovskites  $(\text{CH}_3)_4\text{NPbI}_{3-x}\text{Cl}_x$  with quaternary ammonium cations for solar cell applications. The UV-Vis spectroscopic studies revealed that the optical band gap of synthesized perovskite is 2.61 eV.  $(\text{CH}_3)_4\text{NPbI}_{3-x}\text{Cl}_x$  based Perovskite solar cell was fabricated in ambient conditions by using  $\text{TiO}_2$  as electron charge transport material and a PEDOT: PSS as hole transport material. The architecture of fabricated solar cell is conventional n-i-p type device structure. The open-circuit voltage (Voc), short circuit current density (Jsc) and efficiency of FTO/ c-TiO<sub>2</sub> /  $(\text{CH}_3)_4\text{NPbI}_{3-x}\text{Cl}_x$  / PEDOT:PSS/ Al are 0.5 V, 6.7 mA/cm<sup>2</sup> and 2.09 % respectively. These results shows that lead halide perovskites with quaternary ammonium cations can be used for fabricating stable photovoltaic devices.

**विशिष्ट शब्द :** पेरोवस्काइट, ऊर्जा बैंड अन्तराल, फोटोवोल्टिक युक्ति।

**Keywords:** Perovskite, Energy band gap, photovoltaic device.

### 1. प्रस्तावना

पेरोवस्काइट सौर सेल पर लगभग 14 वर्ष से भी कम शोध अवधि में जो परिणाम प्राप्त हुए हैं, वह सौर सेल के गुणधर्म के अनुकूल व आदर्शात्मक है। सौर ऊर्जा को विद्युत् ऊर्जा में परिवर्तित करने की उच्च दक्षता और साधारण व सस्ती फैब्रिकेशन तकनीक के कारण ही यह सौर अनुसंधान का केन्द्र बिंदु बना हुआ है। इसकी विशेषताएं, जैसे उच्च अवशोषण गुणांक (High Absorption Coefficient) (लगभग  $10^5 \text{ cm}^{-1}$ ) (1), अधिक विसरण लम्बाई (large diffusion Length), तीव्र गति से आवेशों के अलग-अलग होने की प्रक्रिया (fast charge separation process), इलेक्ट्रॉन व होल (charge) की अधिक परिवहन दूरी (long transport distance of electrons and holes), बैंड अंतराल ट्यूनेबिलिटी (band gap tunability) (2) और इलेक्ट्रोमैग्नेटिक स्पेक्ट्रम के विजिबल व अल्ट्रावायलेट वर्णक्रम के अधिकतर भाग में अवशोषण क्षमता (broad absorption spectrum) का होना है। विभिन्न पेरोवस्काइट यौगिकों में कार्बनिक-अकार्बनिक हैलाइड पेरोवस्काइट भी सम्मिलित है, जिसका सामान्य अणु फार्मूला (molecular formula)  $\text{ABX}_3$  है। इसमें A एक कार्बनिक धनायन (organic cation) जैसे  $\text{CH}_3\text{NH}_3^+$ , B एक धातु धनायन (metal cation) (जैसे  $\text{Sn}^{2+}$  or  $\text{Pb}^{2+}$  इत्यादि) और X एक हैलोजन ऋणायन (जैसे  $\text{F}^-$ ,  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{Br}^-$  or  $\text{I}^-$  इत्यादि) है। पेरोवस्काइट मिथाइल अमोनियम लेड आयोडाइड ( $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ ) को सबसे अधिक उपयोग में लाया गया है, जिसको संश्लेषित करने के लिए कार्बनिक यौगिक मिथाइल अमोनियम आयोडाइड (MAI) का उपयोग करते हैं, और मुख्य लेड साल्ट  $\text{PbI}_2$  या  $\text{PbCl}_2$  होता है।

सर्वप्रथम 2009 में, मियासका और उनके सहयोगियों द्वारा लगभग 3.8 % की दक्षता रिपोर्ट की गई थी। इसमें ऑर्गनोमेटल हैलाइड पेरोवस्काइट ( $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ ) को डाई-सेंसिटाइज्ड सौर सेल (DSSC) आर्किटेक्चर में डाई के रूप में प्रयोग किया गया था (3)। तीन वर्ष से कम समय में ही माइक ली, हेनरी स्नैथ और उनके साथियों द्वारा डीएसएससी (DSSC) के तरल इलेक्ट्रोलाइट को ठोस होल (charge) परिवहन परत (hole transport layer) द्वारा प्रतिस्थापित करके 9.7% पॉवर रूपांतरण दक्षता प्राप्त की गई (4)। इस युक्ति में,  $\text{mp-TiO}_2$  को Spiro-MeOTAD को क्रमशः इलेक्ट्रान ट्रांसपोर्ट लेयर व होल ट्रांसपोर्ट लेयर के रूप में उपयोग किया गया था। बुरश्का और उनके साथियों (Burschka et al.) ने संवेदीकृत आर्किटेक्चर में दो-चरणी लेपन प्रसंस्करण का प्रयोग करके 15% से अधिक सेल दक्षता की तकनीक प्रस्तुत की गयी थी (5)। झोउ व अन्य साथियों (Zhou et al.) द्वारा एक प्लेनर हेट्रोजंक्शन पेरोव्स्काइट सौर सेल में चार्ज ट्रांसपोर्ट लेयर में वाहक (carrier) की गतिशीलता को नियंत्रित करके 19.3% दक्षता को रिपोर्ट किया गया था (6)। यांग व अन्य साथियों (Yang et al.) ने इंद्रामोल्युलर एक्सचेंज व त्रुटि को नियंत्रित करके फॉर्मिमिडीनियम लेड आयोडाइड ( $\text{FAPbI}_3$ ) निर्मित सौर सेल में लगभग 20% से भी अधिक दक्षता प्राप्त की थी। इसमें प्लेनर थिन फिल्म आर्किटेक्चर पर प्रयोग हुआ था (7)। वर्तमान में, पेरोवस्काइट (कार्बनिक अकार्बनिक हैलाइड तत्व) सौर सेल में लगभग 25% तक की कार्यक्षमता को रिपोर्ट किया गया है (8)। इतने कम शोध काल में, दक्षता की इतनी वृद्धि आकर्षित करने वाली है। सहज प्रौद्योगिकी प्रक्रियाओं से बना पेरोवस्काइट सौर सेल कम मूल्य में, सुगम व एक सुनहरे विकल्प के रूप में देखा जा रहा है। पेरोवस्काइट लेयर पारदर्शी होने के कारण इसे सिलिकॉन सौर सेल के साथ टैंडेम सौर सेल (Tandem Solar Cell) के रूप में भी

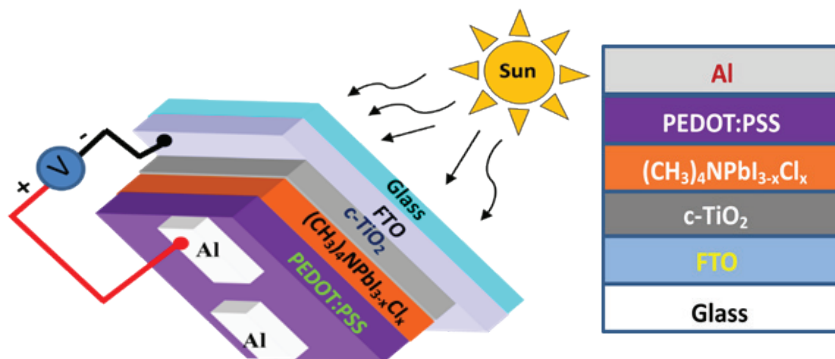
अध्ययन किया गया है। अभी इसमें कुछ चुनौतियाँ भी हैं, जैसे— नमी युक्त वातावरण में प्रतिकूल प्रभाव के कारण दक्षता एवं स्थायित्व में तेजी से गिरावट को रिपोर्ट किया गया है। उच्च तापमान और यूवी विकिरण में पेरोवस्काइट सौर सेल का प्रति पल क्षरण होता है और गुणवत्ता में कमी आती है, जिसके कारण सेल का प्रदर्शन लगातार बिगड़ता है। 2017 में, जफ़रज़ादेह और अन्य सहयोगियों ने (Jafarzadeh et al.) ने स्थिर पेरोवस्काइट टेट्रा मिथाइल अमोनियम लेड आयोडाइड (TMAPbI<sub>3</sub>) के संश्लेषण और लक्षण वर्णन को रिपोर्ट किया है। इसमें सौर सेल के अनुप्रयोग को नहीं दर्शाया गया है (9)। बनर्जी और उनके साथी (Banerjee et al.) द्वारा लेड रहित टेट्रा मिथाइल अमोनियम पेरोवस्काइट में फोटोवोल्टीय प्रभाव को रिपोर्ट किया गया है (10)।

प्रौद्योगिकी के विकास व औद्योगिकीकरण हेतु अनेकों वैज्ञानिक व शोधवेत्ताओं का समूह पेरोवस्काइट के भिन्न-भिन्न पहलुओं पर शोध कार्य कर रहे हैं। प्रायः मिथाइलमोनियम (MA<sup>+</sup>) और फॉर्मा मिडिनम (FA<sup>+</sup>) को कार्बनिक धनायन व लेड (Pb<sup>++</sup>) को कुशल अकार्बनिक धनायन के रूप में प्रयोग किया गया है। Cl<sup>-</sup>, I<sup>-</sup> और Br<sup>-</sup> हैलाइड घटक जैसे प्रयोग किये हैं। भिन्न-भिन्न हैलाइड (Cl, I और Br इत्यादि) प्रयोग करके ऊर्जा अंतराल को परिवर्तित कर सकते हैं, जिससे पेरोवस्काइट सौर सेल से इलेक्ट्रोमैग्नेटिक स्पेक्ट्रम के विजिबल व अल्ट्रावायलेट वर्णक्रम के सभी भागों पर अवशोषण सुनिश्चित कर सकते हैं। अत्यधिक पारदर्शी ZnO और TiO<sub>2</sub> के पतली फिल्मों को व्यापक रूप से इलेक्ट्रॉन ट्रांसपोर्ट लेयर और पीडॉट:पीएसएस (PEDOT:PSS), स्पाइरोमीटेड (Spiro-MeOTAD) और बहुलकित एसडब्लूसीएनटी द्रव्य को होल ट्रांसपोर्ट लेयर

के लिए इस्तेमाल किया जाता है (11) (12)। यहाँ हम सरल और कम लागत में रासायनिक संश्लेषण तकनीक द्वारा एक स्थिर चतुष्क अमोनियम धनायन आधारित लेड हैलाइड पेरोवस्काइट (CH<sub>3</sub>)<sub>4</sub>NPbI<sub>3-x</sub>Cl<sub>x</sub> के संश्लेषण और प्रकाशवोल्टीय उपयोग की रिपोर्ट करते हैं। पेरोवस्काइट TMAPbI<sub>3-x</sub>Cl<sub>x</sub> में पारम्परिक धनायन मिथाइल अमोनियम आयोडाइड के स्थान पर धनायन टेट्रा मिथाइल अमोनियम आयोडाइड का उपयोग किया गया है। चतुष्क अमोनियम धनायन आधारित लेड हैलाइड पेरोवस्काइट को बहुत ही सस्ते कच्चे द्रव्यों से संश्लेषित किया गया है। सामान्यतः इसमें भी एक कार्बनिक यौगिक और एक लेड साल्ट है। (CH<sub>3</sub>)<sub>4</sub>NPbI<sub>3-x</sub>Cl<sub>x</sub> पर आधारित पेरोवस्काइट सौर सेल में इलेक्ट्रॉन आवेश परिवहन को सुगम बनाने हेतु TiO<sub>2</sub> एवं धनात्मक आवेश परिवहन के लिए PEDOT:PSS का प्रयोग किया गया है। इस सौर सेल की पारम्परिक डिवाइस संरचना n-i-p प्रकार की है। FTO/c-TiO<sub>2</sub>/(CH<sub>3</sub>)<sub>4</sub>NPbI<sub>3-x</sub>Cl<sub>x</sub>/PEDOT:PSS/Al का ओपन सर्किट वोल्टेज (Voc), शॉर्ट सर्किट करंट डेन्सिटी (Jsc) और दक्षता क्रमशः 0.5 V, 6.7 mA/cm<sup>2</sup> और 2.09% हैं।

## 2. डिवाइस संरचना

इस कार्य में, पारम्परिक n-i-p युक्ति संरचना (device structure) Glass/FTO/c-TiO<sub>2</sub>/(CH<sub>3</sub>)<sub>4</sub>NPbI<sub>3-x</sub>Cl<sub>x</sub>/PEDOT:PSS/Al क्रमशः नीचे से ऊपर स्टैकफॉर्म में लिए थे। डिवाइस संरचना चित्र 1 में प्रदर्शित की गई है।



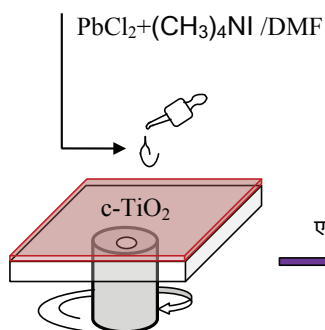
चित्र – 1 युक्ति एवं युक्ति संरचना

## 2.1 प्रयोग के विभिन्न तत्वों के विषय में जानकारी

सभी रसायन सामग्रियों को मर्क, सिग्मा एलिड्रिच व सिस्को रिसर्च लेबोरेटरीज प्रा. लि. से खरीदा गया था। जिस रूप में प्राप्त हुआ था, वैसे ही प्रयोग में लाया गया था। इसमें कोई अन्य शुद्धिकरण का उपयोग नहीं किया गया था। टेट्रामिथाइल अमोनियम आयोडाइड (TMAI, 99%), लेड क्लोराइड (TMAI, 99%), डाइमिथाइलफॉर्माइड (N,N DMF, 99%), टाइटेनियम डाइआइसोप्रोपोऑक्साइड (TTIP, 97%), जिंक पाउडर (Zn, 99%), हाइड्रोक्लोरिक एसिड (HCl, 99%)। पॉली (3,4-ईथीलीनडाइऑक्सीथियो फिन-पॉली (स्टाइरीनसल्फोनेट)) PEDOT:PSS, एथेनॉल (CH<sub>3</sub>CH<sub>2</sub>OH, 99%), एसिटिक एसिड ग्लासिअल (CH<sub>3</sub>COOH, 99%) मुख्य कच्चे पदार्थ थे।

## 2.2 टाइटेनियम डाइऑक्साइड TiO<sub>2</sub> लेयर निर्माण विधि

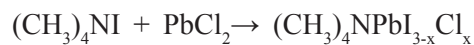
TiO<sub>2</sub> सघन परत बनाने के लिए सोल-जेल तकनीक Sol-gel Technique का इस्तेमाल किया गया था, जिसमें 2M डाइआइसोप्रोपोऑक्साइड (CH<sub>3</sub>COOH, 99%) के साथ उपयुक्त मात्रा में 4 उस एसिटिक एसिड व 1 उस विआयनीकृत जल (deionized water) का प्रयोग किया गया था।



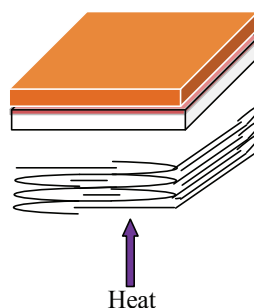
एक चरण लेपन विधि

## 2.3 पेरॉवस्काइट सक्रिय लेयर (CH<sub>3</sub>)<sub>4</sub>NPbI<sub>3-x</sub>Cl<sub>x</sub> का संश्लेषण

(CH<sub>3</sub>)<sub>4</sub>NPbI<sub>3-x</sub>Cl<sub>x</sub> (टेट्रामिथाइल अमोनियम लेड आयोडाइडक्लोराइड) बनाने के लिए टेट्रामिथाइल अमोनियम आयोडाइड और लेड क्लोराइड लिये थे। रासायनिक क्रिया निम्नलिखित है :



पेरॉवस्काइट सक्रिय परत (CH<sub>3</sub>)<sub>4</sub>NPbI<sub>3-x</sub>Cl<sub>x</sub> को एक-चरण लेपन विधि से बनाया गया था, जैसा चित्र 2 में दिखाया गया है। इस पद्धति में तरल द्रव को जिसमें दोनों अवयव होते हैं, सबस्ट्रेट पर स्पिन कोटिंग यूनिट द्वारा लेपित करते हैं। लेपित करने के बाद थर्मल एनीलिंग प्रक्रिया के दौरान ही घटक आपस में क्रिया करके पेरॉवस्काइट का निर्माण करते हैं। (CH<sub>3</sub>)<sub>4</sub>NPbI<sub>3-x</sub>Cl<sub>x</sub> (टेट्रामिथाइल अमोनियम लेड आयोडाइड क्लोराइड) बनाने के लिए टेट्रामिथाइल अमोनियम आयोडाइड और लेड क्लोराइड का उपयोग किया है। मिथाइल अमोनियम आयोडाइड (MAI) के व्यापक अध्ययन हेतु इष्टतम (optimum) परिणाम के आधार पर टेट्रामिथाइल अमोनियम आयोडाइड और लेड क्लोराइड को क्रमशः 3:1 मोलर अनुपात में 1.8 wt% डाइमिथाइलफॉर्माइड DMF में घोला गया था। इस मिश्रण को हॉट प्लेट पर 135°C ताप पर 3 घंटे के लिए मैनेटिक बिट की सहायता से मिलाया गया है। यह द्रव अत्यधिक पीला और समरूप दिखाई देता है।



चित्र 2 पेरॉवस्काइट लेयर बनाने हेतु एक चरण लेपन विधि (single step coating process)

## 2.4 युक्ति निर्माण Device Fabrication

सब्सट्रेट के रूप में फ्लोरिन डोप्ड टिन ऑक्साइड कोटेड ग्लास का प्रयोग किया गया है। एक निश्चित आकार का सब्सट्रेट बनाने के लिए कटीन्ग व इचिंग प्रक्रिया की गयी थी। इलेक्ट्रॉड की व्यवस्थित संरचना तय करने हेतु इचिंग प्रक्रिया अत्यंत महत्वपूर्ण है। इचिंग प्रक्रिया में Zn पाउडर, DI वाटर के साथ 2 मोल HCl लिए गए थे। इस प्रक्रिया के दौरान ऐच्छीक एफटीओ (FTO, फ्लोरिन डोप्ड टिन ऑक्साइड) अर्थात वह भाग जिनमें एफटीओ आवश्यक है, उस भाग की सतह को थर्मल टेप से ढक दिया गया था। पैटर्न एफटीओ को प्रत्येक 20 मिनट के लिए साबुन के पानी, विआयनीकृत पानी, एसीटोन और आइसोप्रोपिल अल्कोहल के साथ अल्ट्रासोनिकेशन द्वारा साफ किया गया था। उसके बाद क्लीनिंग प्रोसेस में सब्सट्रेट से कार्बनिक अशुद्धि को निकालने के लिए UV ओजोन क्लीनर में 30 मिनट रखा गया था। सौर सेल बनाने के लिए पेरोवस्काइट के सक्रिय परत को इलेक्ट्रान आवेश परिवहन  $TiO_2$  की सघन परत तथा धनात्मक आवेश परिवहन PEDOT:PSS परत के मध्य रखा गया है। अतः सर्वप्रथम स्पिन कोटिंग यूनिट की सहायता से 1800 RPM पर  $TiO_2$  नैनो पार्टिकल (anatase) को FTO कोटेड ग्लास सतह के ऊपर लेपित किया गया था। इस परत को रूटाइल फॉर्म में अर्थात सघन बनाने के लिए  $450^\circ C$  पर 1 घंटे तापभट्टी (Furnace) में रखा गया था।  $TiO_2$  के सघन परत पर पेरोवस्काइट की सक्रिय परत को एक चरण लेपन विधि से बनाया गया, और फिर इसे  $150^\circ C$  के ताप पर 1 घंटे के लिए रखे थे। युक्ति में पेरोवस्काइट लेयर की मोटाई लगभग 400 nm है। पेरोवस्काइट लेयर पर PEDOT:PSS की धनात्मक आवेश परिवहन परत की कोटिंग किये थे। फिर इसके ऊपर अल्युमीनियम मेटेरियल के इलेक्ट्रॉड को वैक्यूम एवापोरेशन डेपोजिशन मेथड से बनाया गया। इसकी मोटाई लगभग 90 nm थी। मोटाई

को वैक्यूम कोटिंग यूनिट के डीटीएम से नियंत्रित किया गया था।

## 3. उपकरण वर्णन

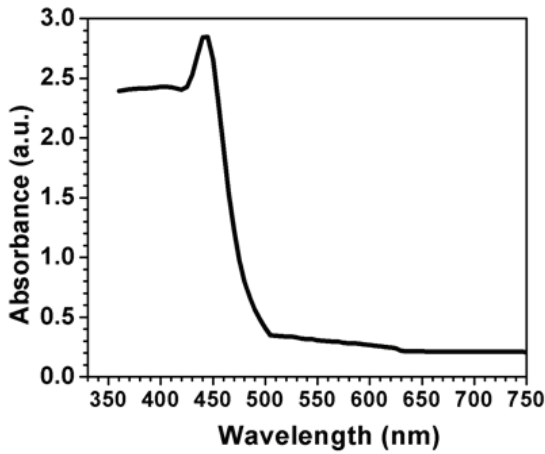
किथले सोर्स मीटर-2400 का उपयोग करके वोल्टेज – करंट कैरेक्टरिस्टिक्स लिया गया था। इसमें सौर ऊर्जा के कृत्रिम स्रोत  $100 \text{ mW/cm}^2$  की तीव्रता के AM 1.5 यंत्र का प्रयोग किया गया है। इसकी तीव्रता को एक सिंगल क्रिस्टल सिलिकॉन (Si) सौर सेल मानक से कैलिब्रेट किया गया था। उत्सर्जन स्पेक्ट्रा कैरेक्टरिस्टिक्स को वरियन करी इक्लिप्स फ्लोरोमीटर (varian cary eclipse fluorimeter) से लिया गया था। थर्मो साइंटिफिक इवोल्यूशन 300 से विजिबल-अल्ट्रावायलेट वर्णक्रम (UV-Vis) में अवशोषण ग्राफ लिया गया। निर्माण-प्रक्रिया में होलमार्क का स्पिन कोटर HO-TH-05 मॉडल का प्रयोग किया गया। इलेक्ट्रॉड बनाने के लिए हिन्द हाई वैक्यूम कोटिंग मॉडल 12A4D यूनिट का इस्तेमाल हुआ था।

## 4. परिणाम और चर्चा

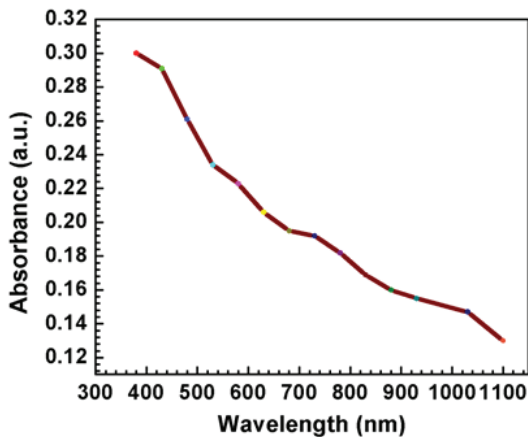
### 4.1 प्रकाशीय अध्ययन व विश्लेषण

सौर सेल की कार्य करने की निपुणता (performance) प्रकाश ऊर्जा अवशोषक क्षमता से सीधे तौर पर जुड़ी हुई है। चित्र-3 पेरोवस्काइट लेयर का अवशोषण स्पेक्ट्रा, सौर स्पेक्ट्रम रेंज में अवशोषण की पुष्टि करता है। चित्र-4 में पेरोवस्काइट सौर सेल (सभी लेयर सम्मिलित) के अवशोषण ग्राफ को दिखाया गया है। इसमें भी सौर स्पेक्ट्रम रेंज में संतोषजनक अवशोषण प्राप्त हुआ है। पेरोवस्काइट के पारगम्यता स्पेक्ट्रा को चित्र 5 में दिखाया गया है। इसमें पारगम्यता स्पेक्ट्रा के सिरे पर तेजी से गिरावट को देख सकते हैं। यह पेरोवस्काइट के अच्छे क्रिस्टल निर्माण को प्रदर्शित करता है। पारगम्यता के प्रथम अवकलन (तरंग दैर्घ्य  $\lambda$  के सापेक्ष) से प्राप्त ग्राफ से बैंड अंतराल का

आकलित मान लगभग 2.61 eV निकाला गया।



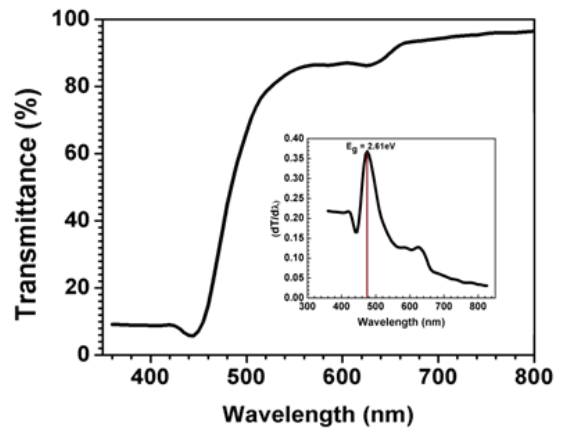
चित्र 3 पेरोवस्काइट सक्रिय लेयर का अवशोषण स्पेक्ट्रम



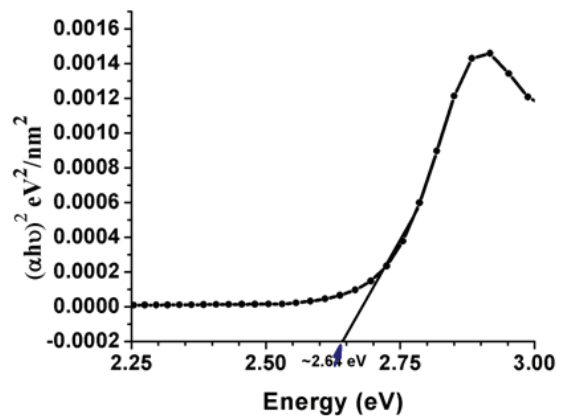
चित्र 4 पेरोवस्काइट सौर सेल का अवशोषण स्पेक्ट्रम (सभी लेयर सम्मिलित है)

चित्र-5 पारगम्यता स्पेक्ट्रम के इनसेट में  $dT/d\lambda$  बनाम तरंग दैर्घ्य  $\lambda$  का ग्राफ दिया गया है। एक अन्य मेथड टॉक प्लॉट (tauc plot) से भी बैंड अंतराल का आकलित मान लगभग 2.61 eV के निकट ही है। चित्र 6 में टॉक प्लॉट को प्रदर्शित किया गया है। इस ग्राफ में फोटॉन ऊर्जा के सापेक्ष  $(\alpha h\nu)^2$  को दर्शाया गया है। पेरोवस्काइट उत्सर्जन स्पेक्ट्रम को चित्र 7 में

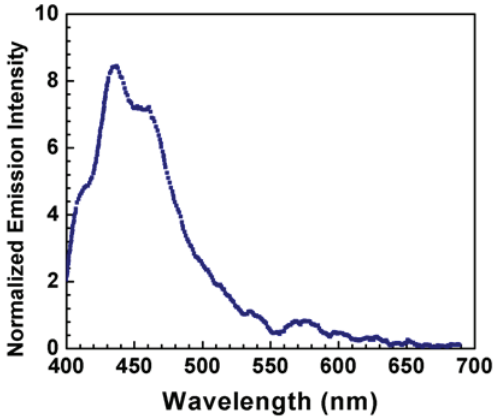
दिखाया गया है, जिसमें उत्सर्जन भी विज़िबल रेंज में पाया गया है। इसमें अधिकतम उत्सर्जन लगभग 435 नैनोमीटर के तरंग दैर्घ्य पर प्राप्त हुई है। उत्सर्जन स्पेक्ट्रा के लिए द्रव सैंपल को 380 नैनोमीटर के तरंग दैर्घ्य पर मोनोक्रोमैटिक प्रकाश द्वारा उत्तेजित किये थे और उत्सर्जन स्पेक्ट्रम (emission spectrum) को 400 से 750 नैनोमीटर के बीच प्राप्त किया गया था।



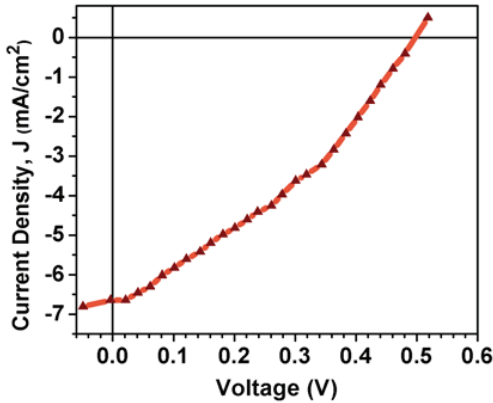
चित्र 5 पेरोवस्काइट का पारगम्यता स्पेक्ट्रा (इनसेट: बैंड गैप का अनुमान लगाने के लिए  $dT/d\lambda$  बनाम  $\lambda$  प्लॉट )



चित्र 6 टॉक प्लॉट से अनुमानित बैंड अंतराल परिणाम



चित्र 7 पेरोवस्काइट  $(\text{CH}_3)_4\text{NPbI}_{3-x}\text{Cl}_x$  द्रव का उत्सर्जन स्पेक्ट्रा



चित्र 8 पेरोवस्काइट सौर सेल J-V अभिलक्षणण ग्राफ

सारणी 1: फ्रेश सेल एवं दो दिवस उपरांत सेल से प्राप्त परिणाम

पैरामीटर	Jsc (mA/ cm <sup>2</sup> )	Voc (V)	FF	$\eta$ (%)
सेल				
फ्रेश सेल	6.7	0.5	0.25	2.09
2 दिवस उपरान्त सेल	6.5	0.5	0.25	2.03

उल्लेखनीय है कि पेरोवस्काइट हैलाइड सौर सेल का निर्माण प्रयोगशाला में सामान्य वातावरण

में किया गया तथा प्राप्त परिणामों से यह परिलक्षित होता है कि सौर सेल के आवश्यक प्राचलों और दक्षता में कोई परिवर्तन नहीं हुआ है।

#### 4.2 इलेक्ट्रिकल लक्षण वर्णन

जैसा चित्र-1 में दर्शाया गया है कि प्रकाश एक पेरोवस्काइट सौर सेल के पारदर्शी इलेक्ट्रोड से होकर पेरोवस्काइट परत पर जाती है तो अवशोषित होकर इलेक्ट्रॉन-होल जोड़े बनाती है। ये आवेशित कण (Charge Particles) कम बंधन ऊर्जा (low binding energy) के कारण अलग हो जाते हैं। और फिर इलेक्ट्रॉन व धनात्मक आवेश परिवहन परत (electron and hole charge transport layer) के माध्यम से संबंधित इलेक्ट्रोड तक पहुँचते हैं और विद्युत प्रवाह (electric current) उत्पन्न करते हैं। वोल्टेज एवं करंट कैरेक्टरिस्टिक्स एक किथले सोर्स मीटर-2400 का उपयोग करके लिया गया था। कृत्रिम AM 1.5 के  $100 \text{ mW/cm}^2$  की प्रकाश तीव्रता में प्राप्त ग्राफ से पता चलता है कि डिवाइस प्रकाशवोल्टीय अनुप्रयोग के लिए उपयुक्त है। इस  $(\text{CH}_3)_4\text{NPbI}_{3-x}\text{Cl}_x$  आधारित पेरोवस्काइट सौर सेल में इलेक्ट्रॉन आवेश परिवहन को सुगम बनाने हेतु c-TiO<sub>2</sub> व धनात्मक आवेश परिवहन के लिए PEDOT:PSS के पतली फिल्म का प्रयोग किया गया है। सौर सेल की डिवाइस संरचना पारम्परिक n-i-p प्रकार की है। FTO/c-TiO<sub>2</sub>/(CH<sub>3</sub>)<sub>4</sub>NPbI<sub>3-x</sub>Cl<sub>x</sub>/PEDOT:PSS/Al का ओपन सर्किट वोल्टेज (Voc), शॉर्ट सर्किट करंट डेन्सिटी (Jsc), फिल फैक्टर और दक्षता क्रमशः 0.5 V, 6.7 mA/cm<sup>2</sup>, 0.25 और 2.09% हैं। J-V अभिलक्षण परिणाम को चित्र 8 में देख सकते हैं। इन परिणामों से स्पष्ट है कि चतुष्क अमोनियम धनायन आधारित लेड हैलाइड पेरोवस्काइट  $(\text{CH}_3)_4\text{NPbI}_{3-x}\text{Cl}_x$  का उपयोग स्थिर फोटोवोल्टिक उपकरणों के निर्माण के

लिए किया जा सकता है। फिल फैक्टर बहुत ही कम आने के कारण दक्षता सीमित हो गई है। पेरोवस्काइट और इंटरफेसियल लेयर को इष्टतम परिचालन की अवस्था में उत्कृष्ट परिणाम मिल सकते हैं, जिसमें अन्य प्राचलों के साथ फिल फैक्टर के भी बढ़ने के आसार रहेंगे।

### 5. निष्कर्ष

नए कार्बनिक-अकार्बनिक आर्गेनिक हैलाइड पेरोवस्काइट  $\text{TMAPb}_{3-x}\text{Cl}_x$  का संश्लेषण व लक्षण वर्णन किया गया है। पेरोवस्काइट  $\text{TMAPb}_{3-x}\text{Cl}_x$  में पारम्परिक MAI के स्थान पर TMAI का प्रयोग धनायन के रूप में किया गया है।  $\text{FTO}/\text{TiO}_2/\text{TMAPb}_{3-x}\text{Cl}_x/\text{PEDOT:PSS}/\text{Al}$  युक्ति में 2.09 % photovoltaic दक्षता प्राप्त हुई है। ऑप्टिकल अध्ययन से अनुमानित बैंड गैप 2.61 eV प्राप्त हुआ है। सेल बनाने के लिए यह तत्व बहुत ही सरता, नमी में भी स्थायित्व का गुण बनाये रखने वाला व आसान तकनीक के कारण उपयुक्त है।

### आभार

फोटॉनिक्स शोध प्रयोगशाला, इलेक्ट्रॉनिक्स एंड फोटॉनिक्स अध्ययनशाला, पं.रविशंकर शुक्ल विश्वविद्यालय, रायपुर, छत्तीसगढ़, भारत द्वारा प्रदान की गयी निर्माण (Fabrication) और लक्षण वर्णन तकनीकी (Characterization Techniques) सुविधाओं के लिए आभारी है।

Table of the Hindi equivalents for the technical terms

absorption	अवशोषण
coating	विलेपन, परत चढ़ाना
current density	धारा घनत्व
cutting	कटाई
degraded state	निम्नीकृत अवस्था
device	युक्ति
efficiency	दक्षता

emission	उत्सर्जन
etching	निक्षारण, निकालना
evaporation	वाष्पीकरण
excite	उत्तेजित करना
fabrication	संरचन
intensity	तीव्रता
layer	परत
lead Salt	सीसा नमक
optical	प्रकाशिक
photovoltaic	प्रकाशवोल्टीय
solar cell	सौर सेल
spectrum	वर्णक्रम
synthesize	संश्लेषण
transmission	पारगम्यता
tunability	ट्यून करने की योग्यता, समस्वरणशीलता
ultrasonication	पराश्रवण
ultraviolet	पराबैंगनी
vacuum	निर्वात
Visible	गोचर, दृश्यता
Voltage	वोल्टता
wavelength	तरंग दैर्घ्य

### सन्दर्भ :

- [1] Green, M., Ho-Baillie, A. and Snaith, H. (2014). The emergence of perovskite solar cells. *Nature Photon* 8, 506–514.
- [2] Eperon, G.E., Stranks, S.D., Menelaou, C., Johnston, M.B., Herz, L. M. and Snaith, H.J. (2014). Formamidinium lead trihalide: a broadly tunable perovskite for efficient planar heterojunction solar cells. *Energy Environ. Sci.*, 7-982–988.
- [3] Kojima, A., Teshima, K., Shirai, Y. and Miyasaka, T. (2009). Organometal Halide Perovskites as Visible-Light Sensitizers for



नमन शुक्ला, बी.गोपाल कृष्णा एवं संजय तिवारी, "उच्च दक्षता सौर सेल के लिए चतुष्क अमोनियम धनायन युक्त ....."

- Photovoltaic Cells. Journal of the American Chemical Society. 131 (17): 6050–6051.
- [4] Lee, M. M., Teuscher, J., Miyasaka, T., Murakami, T. N., Snaith, H. J. (2012) Efficient Hybrid Solar Cells Based on Meso-Superstructured Organometal Halide Perovskite. Science, 338 (6107): 643–647.
- [5] Burschka, J., Pellet, N., Moon, S.J., Baker, R.H., Gao, P., Nazeeruddin, M.K. and Grätzel, M. (2013). Sequential deposition as a route to high-performance perovskite-sensitized solar cells. Nature 499, 316–319.
- [6] Zhou, H., Chen, Q., Li, G., Luo, S., Song, T.B., Duan, H.S., Hong, Z., You, J., Liu, Y. and Yang, Y. (2014). Interface engineering of highly efficient perovskite solar cells. Science, vol. 345, 542-546.
- [7] Yang, W.S., Park, B.W., Jung, E.H., Jeon, N.J., Kim, Y.C., Lee, D.U., Shin, S.S., Seo, J., Kim, E.K., Noh, J.H. and Seok, S.I. (2017). Iodide management in formamidinium-lead-halide based perovskite layers for efficient solar cells. Science 356, 1376.
- [8] National Renewable Energy Laboratory, Best research-cell efficiencies. <https://www.nrel.gov/pv/assets/pdfs/best-research-cell-efficiencies.20200104.pdf>
- [9] Jafarzadeh, F., Javadpour, S. and Shariat, M.H., Fabrication and investigation of a new highly humidity stable nanocrystalline perovskite, tetramethylammonium lead triiodide be used in solar cells, Ceram. Int. 43 (2017) 11552–11555 <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2017.05.030>.
- [10] S. Banerjee and R.N. Gayen, Tetramethylammonium based lead free perovskite active layer for solar cell application, Ceramics International 45 (2019) 17438–17441.
- [11] B. Krishna, G. Rathore, N. Shukla, & S. Tiwari (2021). Perovskite solar cells: A review of architecture, processing methods, and future prospects, Hybrid Perovskite Composite Materials, Woodhead Publishing, 2021, 375-412.
- [12] Verma, A.K., Shukla, N. and Tiwari, S. (2020), Effect of ZnO ETL and MoO<sub>3</sub> HTL with PCDTBT:PC70BM-based BHJ organic solar cells, Nanomaterials and Energy 9:2, 245-252.

(.....पृष्ठ 39 से आगे)

होमी भाभा की उपलब्धियों को देखते हुए साल 1944 में मात्र 31 साल की उम्र में उन्हें प्रोफेसर बना दिया गया। बुधमुखी प्रतिभा के धनी डॉ होमी जहांगीर भाभा की शास्त्रीय संगीत, मूर्तिकला, चित्रकला और नृत्य के क्षेत्र में गहरी रुचि और पकड़ थी।

भारत को परमाणु शक्ति संपन्न बनाने के लिए साल 1948 में डॉ भाभा ने भारतीय परमाणु ऊर्जा आयोग की स्थापना की और अंतरराष्ट्रीय परमाणु ऊर्जा मंचों पर भारत का प्रतिनिधित्व किया। साल 1955 में संयुक्त राष्ट्र संघ द्वारा आयोजित 'शांतिपूर्ण कार्यों के लिए परमाणु ऊर्जा का उपयोग' के पहले सम्मलेन में डॉ. होमी भाभा को सभापति बनाया गया। तत्कालीन प्रधानमंत्री जवाहरलाल नेहरू ने भी कहा था कि हम परमाणु ऊर्जा का दुरुपयोग नहीं करेंगे। लेकिन, उनकी मृत्यु के बाद परिदृश्य में आये बदलाव ने भारत की परमाणु नीति को प्रभावित किया। भारत की सुरक्षा को देखते हुए तत्कालीन प्रधानमंत्री लालबहादुर शास्त्री ने भारत को परमाणु हथियार न बनाने की प्रतिबद्धता से मुक्त कर दिया। वर्ष 1957 में भारत ने मुंबई के करीब ट्रान्बे में पहला परमाणु अनुसंधान केंद्र स्थापित किया। वर्ष 1967 में इसका नाम भाभा परमाणु अनुसंधान केंद्र कर दिया गया। यह होमी भाभा को देश की ओर से विनम्र श्रद्धांजलि थी। इस संस्थान ने एक विशिष्ट नाभिकीय अनुसंधान संस्थान के रूप में अपनी पहचान स्थापित की है। आज यहाँ नाभिकीय भौतिकी, वर्णक्रमदर्शिकी, ठोस अवस्था भौतिकी, रसायन एवं जीव विज्ञान, रिएक्टर इंजीनियरी, यंत्रिकरण, विकिरण संरक्षा एवं नाभिकीय चिकित्सा आदि महत्वपूर्ण क्षेत्रों में मूलभूत अनुसंधान हो रहे हैं। होमी जहांगीर भाभा ने भारत को परमाणु शक्ति संपन्न बनाने का जो सपना देखा था, वह अपने विस्तृत स्वरूप में आगे बढ़ रहा है।

(Source & <https://www.vigyanprasar-gov-in@isw@Father-of-indian-nuclear-program-dr-homi-jehangir-bhabha-hindi.html>)