

Laserbasierte Verschaltung und Strukturierung von Perowskit-Solarmodulen

Zur Erlangung des akademischen Grades eines

DOKTORS DER INGENIEURWISSENSCHAFTEN (Dr.-Ing.)

von der KIT-Fakultät für
Elektrotechnik und Informationstechnik des
Karlsruher Instituts für Technologie (KIT)

angenommene

DISSERTATION

von

M. Sc. David Benedikt Ritzer

Tag der mündlichen Prüfung:

05. Juli 2024

Hauptreferent:

Prof. Dr. Ulrich W. Paetzold

Korreferenten:

Prof. Dr. Wilhelm Pfleging

Prof. Dr. Stefan Bergfeld



Dieses Werk ist lizenziert unter einer Creative Commons
Namensnennung 4.0 International Lizenz (CC BY 4.0):
<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.de>

Kurzfassung

Die moderne Energiepolitik steht vor der komplexen Herausforderung, trotz des stetig steigenden weltweiten Energiebedarfs und der aktuellen Zuspitzung geopolitischer Spannungen eine sichere, gerechte, günstige und ökologisch nachhaltige Energieversorgung zu sichern. Als Schlüsseltechnologie gilt hierfür die Photovoltaik, also die Erzeugung von elektrischer Energie aus Sonnenlicht, mit der alle genannten Anforderungen theoretisch erfüllt werden können. Während die Photovoltaik für Großanlagen auf Freiflächen in Deutschland bereits heute deutlich günstigere Stromgestehungskosten als konventionelle Kraftwerke aufweist, ist die Verfügbarkeit von Freiflächen in Deutschland stark begrenzt und steht in direkter Konkurrenz mit Interessen der Landwirtschaft. Die Installation von Photovoltaik als Kleinanlagen auf bereits vorhandenen Flächen wie Dächern, Hauswänden oder als gebäudeintegriertes Fassadenelement bietet dagegen großes Ausbaupotential. Da die Stromgestehungskosten solcher Anlagen höher ausfallen, ist es zur Steigerung der Wirtschaftlichkeit unerlässlich, die Kosten der Photovoltaik weiter zu senken. Genau das könnte mit der auf Perowskit-Halbleitern basierenden Photovoltaik ermöglicht werden, die seit einigen Jahren intensiv erforscht wird. Für einen Markteintritt der Perowskit-Photovoltaik ist es jedoch unverzichtbar, die für Flächen weniger Quadratmillimeter Größe in Laboren erreichten hohen Wirkungsgrade effizient und mit industriell anwendbaren Herstellungsverfahren und Komponenten auf große Flächen zu skalieren.

Aus diesem Grund wird in der vorliegenden Arbeit die Entwicklung und Demonstration der effizienten und industriell anwendbaren Aufskalierung von Perowskit-Photovoltaik durch die laserbasierte Verschaltung von Solarzellen zu Solarmodulen behandelt. Darauf aufbauend wird die Herstellung teiltransparenter Perowskit-Photovoltaik als innovatives multifunktionales Fassadenelement untersucht.

Für die Entwicklung eines effizienten Aufskalierungsprozesses wird ein vollständig skalierbarer Schichtstapel sowie ein neu konzipiertes Laserstrukturierungssystem genutzt, das ausschließlich in der Industrie bereits etablierte Komponenten integriert. Durch umfangreiche Laserparameterstudien werden Verschaltungslinien mit hohen Parallel- und niedrigen Kontaktwiderständen sowie minimaler Breite von nur 140 μm hergestellt. Weiterhin ermöglicht die theoretische Optimierung des Solarmodullayouts sowie die hohe Qualität der Verschaltungslinien und der Materialsichten auch für größere Flächen die Bauteilaufskalierung um einen Faktor von bis zu 500 und die Herstellung effizienter Perowskit-Solarmodule mit Wirkungsgraden bis zu 18,0% für 4 cm^2 und 16,6% für 51 cm^2 Aperturfläche, was zum damaligen Zeitpunkt den Weltrekord für vollständig gedampfte Solarmodule

darstellte. Diese beeindruckenden Ergebnisse entsprechen lediglich einem Wirkungsgradverlust pro Größenordnung der aufskalierten Fläche von $3,1 \text{ \%}_{\text{rel}} \text{ dec}^{-1}$, wobei der Vergleich mit $3,9 \text{ \%}_{\text{rel}} \text{ dec}^{-1}$ für die etablierte Silizium-Photovoltaik die Effizienz des entwickelten Aufskalierungsprozesses beweist.

Basierend auf diesen Erkenntnissen und durch Transfer und Anpassung des entwickelten Aufskalierungsprozesses werden zudem erfolgreich semitransparente Perowskit-PV-Module und weltweit erstmals 2-Terminal-Perowskit-Perowskit-Tandem-Solarmodule entwickelt. Dabei erzielen die semitransparenten Solarmodule Wirkungsgrade von bis zu 15,3% für 4 cm^2 und 14,5% für 11 cm^2 Aperturfläche, wobei das mechanische Stapeln mit einem CIGS-Modul einen Tandemwirkungsgrad von 23,1% ergibt. Die 2-Terminal-Tandem-Solarmodule erreichen beeindruckende Rekordwirkungsgrade von 22,5% und 19,3% für $2,6 \text{ cm}^2$ und $12,5 \text{ cm}^2$ Aperturfläche. Diese erfolgreichen Ergebnisse zeigen auf, dass auch komplexere Perowskit-Photovoltaik-Bauteile mit dem entwickelten Prozess aufskaliert werden können.

Des Weiteren wird die Entwicklung transluzenter Perowskit-Photovoltaik für gebäudeintegrierte Anwendungen erfolgreich demonstriert. Durch Laserstrukturierung werden defektfreie, hochtransparente Flächen erzeugt, die Licht farbneutral und streuungsarm transmittieren und bereits aus einer Entfernung von 0,5 m einen homogenen optischen Eindruck erzeugen. Diese transluzenten Solarzellen erreichen Wirkungsgrade von bis zu 16,2% bei Lichttransmissionsgraden bis zu 38%. Zudem kann der Prozess erfolgreich auf komplexere Tandem-Photovoltaik sowie auf größere Flächen übertragen werden, wobei Wirkungsgrade von bis zu 17,7% und 11,1% bei Lichttransmissionsgraden von 11% und 31% und für Flächen bis zu 12 cm^2 erreicht werden. Zuletzt wird ein neues und innovatives Konzept der Transmissionsgradienten entwickelt und umgesetzt, um die ästhetischen und individuellen Gestaltungsmöglichkeiten für gebäudeintegrierte Photovoltaik zu verbessern. Diese einzigartige Kombination aus Effizienz, Ästhetik und architektonischer Anpassungsfähigkeit macht transluzente Perowskit-Photovoltaik besonders geeignet für den Einsatz in Glasfassaden.

Die vorliegende Arbeit demonstriert, dass Perowskit-Photovoltaik durch laserbasierte und industriell anwendbare Strukturierungs- und Beschichtungsverfahren effizient zu großen Flächen skaliert werden kann, und zeigt zudem die Eignung als ästhetische gebäudeintegrierte und multifunktionale Photovoltaik-Technologie auf.

Abstract

Modern energy policy faces the complex challenge of ensuring a secure, fair, affordable and ecologically sustainable energy supply despite the ever-increasing global demand for energy and the current escalation of geopolitical tensions. Photovoltaics, the generation of electrical energy from sunlight, is regarded as a key technology for this, as it can theoretically meet all of the aforementioned requirements. While photovoltaics for large-scale installations on open fields in Germany already offer significantly lower levelized costs of electricity compared to conventional power plants, the availability of open fields in Germany is severely limited and directly competes with agricultural interests. In contrast, the installation of photovoltaics as small systems on already existing surfaces, such as roofs, house walls, or as building-integrated facade elements, offers significant expansion potential. Since the levelized costs of electricity for such systems are higher, it is essential to further reduce the costs of photovoltaics to enhance their economic viability. This is precisely what could be achieved with photovoltaics based on perovskite semiconductors, which have been the subject of intensive research for several years. For perovskite photovoltaics to enter the market, however, it is essential to scale up the high efficiencies achieved in laboratories for areas of a few square millimetres in size to large areas efficiently and with industrially applicable manufacturing processes and components.

For this reason, this work addresses the development and demonstration of the efficient and industrially applicable upscaling of perovskite photovoltaics through the laser-based interconnection of solar cells to form solar modules. Building on this, the production of semi-transparent perovskite photovoltaics as innovative multifunctional façade elements is investigated.

To develop an efficient upscaling process, a fully scalable layer stack and a newly designed laser structuring system, which integrates exclusively components already established in the industry, are used. Through extensive laser parameter studies, interconnection lines with high parallel and low contact resistances, as well as a minimal width of only 140 μm , are produced. Furthermore, the theoretical optimization of the solar module layout, along with the high quality of the interconnection lines and material layers even for larger areas, enables the upscaling of devices by a factor of up to 500 and the production of efficient perovskite solar modules with efficiencies of up to 18.0% for 4 cm^2 and 16.6% for 51 cm^2 aperture area. The latter represented the world record for fully evaporated solar modules at the time. These impressive results correspond to an efficiency loss per order of magnitude of the upscaled area of 3.1 %_{rel} dec⁻¹, with the comparison to 3.9 %_{rel} dec⁻¹ for established silicon photovoltaics proving the efficiency of the

developed upscaling process.

Based on these findings and through the transfer and adaptation of the developed upscaling process, semitransparent perovskite PV modules and, for the first time worldwide, 2-terminal perovskite-perovskite tandem modules are successfully developed. The semitransparent solar modules achieve efficiencies of up to 15.3% for 4 cm² and 14.5% for 11 cm² aperture area, with mechanical stacking with a CIGS module yielding a tandem efficiency of 23.1%. The 2-terminal tandem modules achieve impressive record efficiencies of 22.5% and 19.3% for 2.6 cm² and 12.5 cm² aperture area, respectively. These successful results demonstrate that even more complex perovskite photovoltaic devices can be upscaled using the developed process.

Furthermore, the development of translucent perovskite photovoltaics for building-integrated applications is successfully demonstrated. Through laser structuring, defect-free, highly transparent areas are produced that transmit light in a color-neutral and low-scatter manner and create a homogeneous optical impression from a distance of 0.5 m. These translucent solar cells achieve efficiencies of up to 16.2% with average transmission rates of up to 38%. Additionally, the process can be successfully transferred to more complex tandem photovoltaics and larger areas, achieving efficiencies of up to 17.7% and 11.1% with average visible transmittances of 11% and 31% and for areas of up to 12 cm². Finally, a new and innovative concept of transmission gradients is developed and implemented to enhance the aesthetic and individual design possibilities for building-integrated photovoltaics. This unique combination of efficiency, aesthetics, and architectural adaptability makes translucent perovskite photovoltaics particularly suitable for use in glass facades.

This dissertation demonstrates that perovskite photovoltaics can be efficiently upscaled to large areas through laser-based and industrially applicable structuring and coating processes, and also highlights their suitability as aesthetic building-integrated and multifunctional photovoltaic technology.

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich allen danken, die mich auf dem herausfordernden Weg hin zur Promotion begleitet und unterstützt haben.

Zunächst möchte ich meinen ganz besonderen Dank an meinen Doktorvater, Prof. Ulrich W. Paetzold, aussprechen. Ich bin sehr dankbar für die Möglichkeit der Promotion und das spannende Thema, das er mir anvertraut hat. Seine fachliche und methodische Unterstützung bei der Forschung sowie sein wertvolles Feedback beim Verfassen von Präsentationen, Publikationen und der vorliegenden Arbeit waren von unschätzbarem Wert. Er hat stets an mich und meine Fähigkeiten geglaubt und mir Aufgaben und Funktionen übertragen, die ich mir selbst vor Beginn der Promotion nicht zugetraut hätte. Ganz besonders schätze ich dabei seine Fähigkeit, dass er selbst in herausfordernden Phasen der Dissertation immer wieder bei mir Motivation aufbauen und die Faszination und den Spaß an der Forschung aufzeigen konnte. Trotz der wissenschaftlichen Zielstrebigkeit lässt er dabei Raum für die persönliche Weiterentwicklung.

Außerdem bedanke ich mich herzlichst bei Prof. Wilhelm Pflöging für die freundliche Übernahme des Korreferats und die Unterstützung durch Expertise und Ressourcen bei der Untersuchung der Laserversiegelung zur Verkapselung von Perowskit-Photovoltaik.

Des Weiteren bedanke ich mich auch bei Prof. Stefan Bergfeld ganz herzlich für die Übernahme des Korreferats sowie für die regelmäßigen Diskussionen, die Unterstützung bei der Fehlersuche sowie für seine wertvollen Tipps und Kniffe rund um das Thema der Laserbearbeitung. Seine spürbare Faszination für Laser und deren Anwendungen hat mich stets inspiriert.

Großer Dank gilt auch Prof. Bryce S. Richards, der meine Einstellung maßgeblich unterstützt und mir insbesondere am Anfang meiner Promotion durch sein umfangreiches Wissen zur Photovoltaik, sowie in späteren Phasen durch die kritische Durchsicht von Manuskripten und wertvolles Feedback sehr weitergeholfen hat.

Meinen Kollegen der Forschungsgruppe am LTI und IMT danke ich für ihre Unterstützung und die fachlich und menschlich großartige Zusammenarbeit. Tobias Abzieher danke ich besonders für seine immense Unterstützung in der ersten Hälfte meiner Dissertationszeit. Unsere zahlreichen Diskussionen und die intensive Zusammenarbeit haben zur Entwicklung und Umsetzung vieler spannender Ideen geführt und seine ehrgeizige und beeindruckende Forschungsdisziplin hat mich stets angetrieben. Ein besonderer Dank gilt auch Bahram Abdollahi Nejand, dessen

großer Erfahrungsschatz in der Arbeit mit Tandem-PV von unschätzbarem Wert war. Seine angenehme und optimistische Art, kombiniert mit Ehrgeiz und harter Arbeit, hat stets für gute Laune bei der Zusammenarbeit gesorgt. Außerdem danke ich Marco Ruiz, Helge Eggers, Hang Hu, Roja Singh, Alexander Diercks, Felix Laufer und Thomas Feeney. Ihre Unterstützung und Zusammenarbeit, sowie das gemeinsame Durchleben der Herausforderungen der Dissertation, haben durch viele Gespräche und Momente der Freude für eine stets angenehme Atmosphäre auf der Arbeit gesorgt. Besonders bedanken möchte ich mich auch bei meinem ehemaligen Kollegen und anfänglichen Masterarbeitsbetreuer Malte Langenhorst. Er hat mich durch seine Betreuung und das Aufzeigen des spannenden Themenfelds zur Promotion ermutigt und maßgeblich dazu beigetragen, dass ich diesen Weg eingeschlagen habe.

Ein besonderer Dank gilt auch meinen weiteren Kolleginnen und Kollegen am IMT. Luisa Borgmann, Dmitry Busko und Nina Giraud danke ich für die vielen tollen Gespräche sowie die technische und praktische Unterstützung im Arbeitsalltag. Ebenso danke ich Achim Voigt und Alexandra Moritz für die Anfertigung elektrischer und mechanischer Bauteile sowie Mathias Hecke, Manuel Frisman, Stefan Vietmeyer und Jürgen Benz für ihre Unterstützung bei verwaltungstechnischen, softwarebezogenen und sicherheits-relevanten Themen.

Zuletzt richte ich meinen herzlichen Dank an meine ganze Familie, in Karlsruhe und in Taben. Meiner Mutter, meinem Vater und meiner Schwester bin ich für immer dankbar - für eine schöne Kindheit, stetige Unterstützung bei schulischen Aufgaben, für die Ermutigung, dem eigenen Interesse zu folgen, und der weiteren Unterstützung in allen Lebenslagen, sei es emotional, finanziell oder neuerdings bei der regelmäßigen Betreuung von Emma. Ein ganz besonderer Dank gilt meiner wundervollen Frau, Mama meiner bezaubernden Tochter und meiner Seelenverwandten – Kathi. Deine Liebe, Stärke und Freude, aber auch dein Humor bilden schon eine ganze Weile das Fundament für mein Glück im Leben. Deine Unterstützung, deine Ermutigungen, dein Glaube an meine Fähigkeiten und der ständige Austausch über Erfolge und Misserfolge bauten mich in herausfordernden Phasen auf und ließen mich in erfolgreichen Phasen noch motivierter sowohl an meinen Zielen als auch an meiner persönlichen Entwicklung weiterarbeiten. Zu guter Letzt, vielen Dank dir, Emma! Dein fröhliches Wesen lässt mich jeden Tag konzentriert arbeiten, um schneller wieder Zeit mit dir verbringen zu können!

„The important thing is not to stop questioning. Curiosity has its own reason for existing.“

Albert Einstein

Für meine Tochter Emma

Inhaltsverzeichnis

Kurzfassung	i
Abstract	iii
Danksagung	v
Inhaltsverzeichnis	vii
Abkürzungsverzeichnis	xi
1 Einleitung	1
1.1 Motivation	2
1.2 Wissenschaftliche Zielsetzungen	5
1.3 Gliederung	7
1.4 Wissenschaftliche Kontributionen	9
2 Theoretische Grundlagen	11
2.1 Grundlagen der Photovoltaik	12
2.1.1 Funktionsprinzip einer Solarzelle	12
2.1.2 Elektrisches Modell und Kenngrößen einer Solarzelle	20
2.1.3 Perowskit-basierte Dünnschichtsolarzelle	24
2.1.4 Monolithische Verschaltungen von Dünnschichtphotovoltaik	29
2.1.5 Kalkulation der Aufskalierungsverluste	31
2.1.6 Tandem-Photovoltaik	35
2.1.7 Transparente Photovoltaik	38
2.2 Grundlagen der Laserstrukturierung	42
2.2.1 Ablationsmechanismen	42
2.2.2 Parameter der Laserstrukturierung	45
2.3 Grundlagen der Farbwahrnehmung	49
2.3.1 Farbwahrnehmung des Menschen	49
2.3.2 Quantifizierung des Farbeindrucks	50
3 Fertigungs- und Charakterisierungsverfahren	53
3.1 Fertigungsverfahren	54
3.1.1 Rotationsbeschichtung	54
3.1.2 Klingenbeschichtung	55
3.1.3 Beschichtung mittels physikalischer Gasabscheidung	56
3.1.4 Laserstrukturierung	58
3.1.5 Layout der Solarzellen und Solarmodule	60

3.1.6	Spezifikationen der Schichtherstellung und verwendete Ausgangsstoffe	62
3.2	Charakterisierungsverfahren	66
3.2.1	Oberflächencharakterisierung	66
3.2.2	Elektrische Charakterisierung	69
3.2.3	Optische Charakterisierung.....	74
4	Laserbasierte monolithische Verschaltung vollständig gedampfter Perowskit-Solarmodule	79
4.1	Aufskalierung von Perowskit-Solarmodulen	80
4.2	Optimierung der Strukturierungsprozesse für monolithisch verschaltete Perowskit-Solarmodule	86
4.2.1	Strukturierungsprozess der Frontkontaktschicht – P1	87
4.2.2	Strukturierungsprozess der Absorberschicht – P2	89
4.2.3	Strukturierungsprozess der Rückkontaktschicht – P3	92
4.2.4	Ausrichtung der Verschaltungslinien im monolithischen Herstellungsprozess.....	95
4.3	Parameterbasierte Optimierung der Modulgeometrie	97
4.4	Homogene, defektfreie Herstellung der funktionalen Materialschichten und Verschaltungen	100
4.5	Charakterisierung vollständig gedampfter Perowskit-Solarmodule mit laserstrukturierter monolithischer Verschaltung	103
4.6	Zusammenfassung und Diskussion	106
5	Prozesstransfer zu Perowskit-Tandem-Photovoltaik	111
5.1	Perowskit-Tandem-Photovoltaik	113
5.2	4-Terminal Perowskit-Tandem-Photovoltaik	119
5.2.1	Verschaltungsoptimierung semitransparenter Perowskit-Solarmodule für 4-Terminal-Tandem-Photovoltaik	120
5.2.2	Parameterbasierte Optimierung der Modulgeometrie semitransparenter Perowskit-Solarmodule.....	123
5.2.3	Charakterisierung semitransparenter Perowskit-Solarmodule für 4-Terminal Tandem Photovoltaik	125
5.2.4	Wirkungsgradabschätzung eines 4-Terminal Perowskit-CIGS-Tandem-Solarmoduls.....	130
5.3	2-Terminal Perowskit-Tandem-Photovoltaik	134
5.3.1	Verschaltungsoptimierung von 2-Terminal Perowskit-Perowskit-Tandem-Solarmodulen.....	135
5.3.2	Parameterbasierte Optimierung der Modulgeometrie von 2-Terminal Perowskit-Perowskit-Tandem-Solarmodulen.....	138
5.3.3	Homogene, defektfreie Herstellung der funktionalen Materialschichten und Verschaltungen.....	140

5.3.4	Charakterisierung von 2-Terminal-Perowskit-Perowskit-Tandem-Solarmodulen	143
5.4	Zusammenfassung und Diskussion	147
6	Herstellung transluzenter Perowskit-Photovoltaik.....	153
6.1	Transparente Photovoltaik für die Gebäudeintegration	154
6.2	Optimierung laserstrukturierter transparenter Flächen	160
6.3	Optische Qualität transluzenter Flächen	168
6.4	Aufskalierung zu transluzenten Perowskit-Solarmodulen.....	173
6.5	Prozesstransfer zur Herstellung transluzenter Tandem-Photovoltaik ...	175
6.6	Prinzip und Demonstration von Transmissionsgradienten.....	180
6.7	Zusammenfassung und Diskussion	184
7	Zusammenfassung, Diskussion und Ausblick	187
7.1	Zusammenfassung und Diskussion	188
7.2	Ausblick	191
8	Anhang	193
8.1	Auflistung der wissenschaftlichen Kontributionen zu dieser Arbeit nach dem CRediT-System	194
8.2	Ergänzende Informationen zu Kapitel 4	200
8.3	Ergänzende Informationen zu Kapitel 5	202
8.4	Ergänzende Informationen zu Kapitel 6	205
	Literaturverzeichnis	213
	Veröffentlichungen und Konferenzbeiträge.....	237

Abkürzungsverzeichnis

AVT	Lichttransmissionsgrad (englisch <i>Average Visible Transmittance</i>)
BAPV	Gebäudeangebundene Photovoltaik (englisch <i>Building-Attached Photovoltaics</i>)
BIPV	Gebäudeintegrierte Photovoltaik (englisch <i>Building-Integrated Photovoltaics</i>)
CdTe	Cadmiumtellurid
CIGS	Kupfer-Indium-Gallium-Diselenid
CRI	Farbwiedergabeindex R_a (englisch <i>Color Rendering Index</i>)
c-Si	Kristallines Silizium (englisch <i>Cristalline Silicon</i>)
EDX	Energiedispersiver Röntgenspektroskopie (englisch <i>Energy-Dispersive X-Ray Spectroscopy</i>)
EQE	Externe Quanteneffizienz
ETL	Selektive Elektronentransportschicht (englisch <i>Electron Transport Layer</i>)
FF	Füllfaktor
GFF	Geometrischer Füllfaktor
HOMO	Höchstes besetztes Molekülorbital (englisch <i>Highest Occupied Molecular Orbital</i>)
HTL	Selektive Lochtransportschicht (englisch <i>Hole Transport Layer</i>)
J_{sc}	Kurzschlussstromdichte (englisch <i>Short-Circuit Current Density</i>)
LBIC	Laserstrahlinduzierter Strom (englisch <i>Laser Beam Induced Current</i>)
LED	Leuchtdiode (englisch <i>Light-Emitting Diode</i>)
LUMO	Niedrigstes unbesetztes Molekülorbital (englisch <i>Lowest Unoccupied Molecular Orbital</i>)

MPP	Betriebspunkt maximaler Ausgangsleistung (englisch <i>Maximum Power Point</i>)
NBG	Kleine Bandlücke (englisch <i>Narrow Bandgap</i>)
NIR	Nahinfrarot
NOCT	Nominale Betriebstemperatur der Zelle (englisch <i>Nominal Operating Condition Temperature</i>)
PCE	Wirkungsgrad (englisch <i>Power Conversion Efficiency</i>)
PL	Photolumineszenz
PV	Photovoltaik
TCO	Transparente leitfähige Oxidschicht (englisch <i>Transparent Conductive Oxide</i>)
TK	Tripel-Kationen
TLM	Transferlängen-Methode (englisch <i>Transfer Line Method</i>)
TPV	Transparente Photovoltaik
UV	Ultraviolett
V_{oc}	Offene Klemmspannung (englisch <i>Open-Circuit Voltage</i>)
WBG	Große Bandlücke (englisch <i>Wide Bandgap</i>)
2-T	2-Terminal

1 Einleitung

Im folgenden ersten Kapitel erhalten Leserinnen und Leser einen Überblick über den Inhalt und die Struktur der vorliegenden Arbeit. Dabei soll zunächst die zugrundeliegende Motivation der Aufskalierung von Perowskit-Photovoltaik und der Entwicklung innovativer gebäudeintegrierter Photovoltaikanwendungen durch die Darstellung wesentlicher Herausforderungen der heutigen Zeit sowie den in diesem Zusammenhang entstehenden potentiellen Nutzen der Technologie gegeben werden. Aus dem hierfür notwendigen Forschungsbedarf werden anschließend die grundlegenden wissenschaftlichen Zielsetzungen hergeleitet. Die darauffolgende Gliederung stellt eine kurze Beschreibung der Kapitel dar und dient so als Orientierungshilfe zum besseren Verständnis der Arbeit und den Zusammenhängen zwischen den einzelnen Abschnitten. Da Forschung auch stets von Kollaborationen und Zusammenarbeit geprägt ist, wird zuletzt auf die gewählte Darstellung der wissenschaftlichen Kontributionen anderer Forscherinnen und Forscher eingegangen.

1.1 Motivation

Die moderne Energiepolitik ist geprägt von komplexen Herausforderungen, die dringend Lösungen erfordern. Angetrieben vom stetigen Wachstum der Weltbevölkerung¹ und dem zunehmenden Lebensstandard² steigt der globale Energiebedarf selbst in optimistischen Prognosen noch in diesem Jahrhundert um etwa 50% gegenüber 2020 an (siehe **Abbildung 1.1a**).^{3,4} Die ungleiche Verteilung der unterschiedlichen Energievorkommen macht dabei einen globalen Handel zur Umverteilung praktisch unumgänglich.⁵ Während in den Jahrzehnten nach der Ölpreiskrise in den 1970er Jahren die Versorgungslage Deutschlands mit fossilen Energieträgern als gesichert galt,⁶ hat jüngst der Angriffskrieg Russlands und dem damit verbundenen Importstopp von russischem Erdgas die große Problematik energiepolitischer Abhängigkeiten, insbesondere von autokratischen Regimen, aufgezeigt.

Weiterhin gilt es mit zunehmender Dringlichkeit sowohl die ökologischen als auch ökonomischen Randbedingungen der Energiepolitik zu beachten: Die Verbrennung fossiler Energieträger und die dabei entstehenden Treibhausgase stellen eine der Hauptursachen für den anthropogenen Klimawandel dar,¹⁰ dessen Auswirkungen in einer Steigerung der Häufigkeit und Intensität von Extremwetterereignissen,¹¹ sowie einer starken Veränderung der Biosphäre^{12,13} und einem Verlust von Biodiversität bereits heute spürbar sind.¹⁴ Nach entwickelten sozioökonomischen Szenarien des

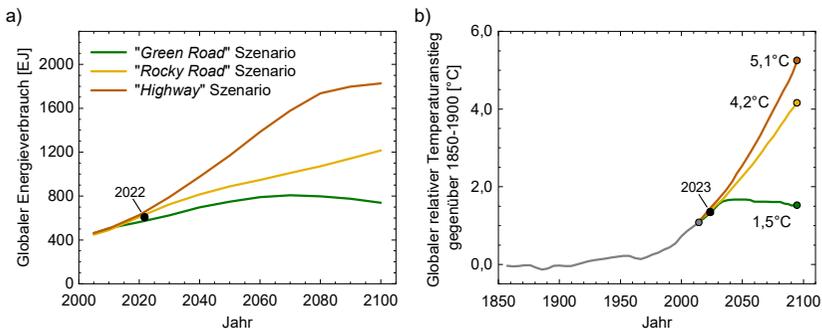


Abbildung 1.1. Die sogenannten gemeinsamen sozioökonomischen Entwicklungspfade (engl. *Shared Socioeconomic Pathways*, SSPs) projizieren unterschiedliche Szenarien für (a) den globalen Energieverbrauch und damit verknüpft (b) dem globalen relativen Temperaturanstieg gegenüber dem vorindustrialisierten Zeitalter. Im Szenario der „Green Road“ wird Nachhaltigkeit priorisiert und stark auf erneuerbare Energien gesetzt, wodurch das 1,5°C-Ziel des Pariser Klimaabkommens eingehalten werden kann. Dagegen führen das konfliktdominierte Szenario der „Rocky Road“ sowie das Szenario maximalen Wachstums unter vollständiger Ausnutzung fossiler Brennstoffe zu drastischen Temperaturanstiegen.^{3,7-9}

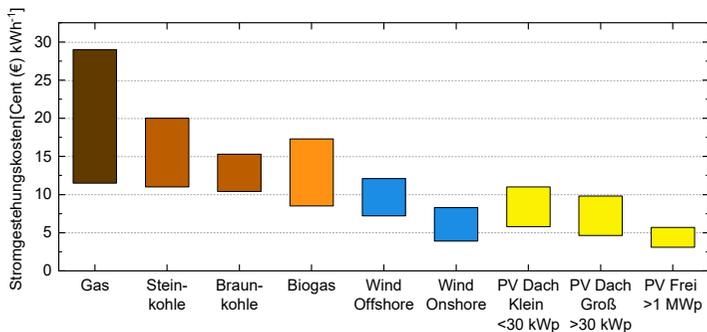


Abbildung 1.2. Stromgestehungskosten für konventionelle Energiegewinnung mittels fossiler Brennstoffe und für erneuerbare Energiegewinnungstechnologien in Deutschland 2021. Abhängig von Größe und Standort innerhalb Deutschlands erreichen PV-Anlagen bereits heute geringere Stromgestehungskosten als konventionelle Gas- und Kohlekraftwerke.¹⁵

Weltklimarats (IPCC) ist das 1.5°C des Pariser Klimaabkommens nur noch durch eine drastische Reduzierung der Treibhausgasemissionen, effizientem und nachhaltigem Ressourcenmanagement und gemeinsamen Entwicklungsanstrengungen grüner Technologien erreichbar (siehe **Abbildung 1.1b**).^{3,7,8} Dagegen stehen die ökonomischen Forderungen der heimischen Industrien mit Belastungen wie Energiesteuern und EU-Emissionshandel gegenüber Ländern mit geringeren Energiekosten und mit noch immer über 1000 Mrd. US\$ subventionierter fossiler Brennstoffe international wettbewerbsfähig zu bleiben.^{16,17}

Die Lösung stellen erneuerbare Energien wie Photovoltaik (PV) und Windkraft dar, die neben der Nachhaltigkeit, den möglichen Emissionseinsparungen und dem großen Ausbaupotential bereits heute deutlich günstigere Stromgestehungskosten als konventionelle Kraftwerke mit fossilen Energieträgern erreichen (siehe **Abbildung 1.2**).^{15,18} Während der Windkraftausbau aufgrund strenger Abstandsregeln und häufiger gerichtlicher Anfechtungen seitens Anwohnern in Deutschland stockt, ist das Interesse an PV in der Bevölkerung sehr groß, was der Anstieg installierter PV-Kapazitäten von 14,1 GWp gegenüber 3,2 GWp für Windkraft in 2023 verdeutlicht.^{19,20} Bei genauerer Betrachtung sind die Stromgestehungskosten für sehr große PV-Anlagen auf Freiflächen sehr günstig, während der steigende Anteil an Systemkosten (Elektronik, Aufbau, Installation) gegenüber Modulkosten für kleinere Anlagen (< 30 kWp) und insbesondere Kleinanlagen (< 10 kWp) die Wirtschaftlichkeit deutlich reduziert.^{15,21} PV-Großanlagen stehen jedoch im Konflikt mit der begrenzten Verfügbarkeit von Freiflächen in Deutschland und konkurrieren somit stark mit der Landwirtschaft.²² Kleinanlagen können dagegen auf dem Dach und an der Hauswand angebracht (engl. *Building-Attached PV*, BAPV) oder sogar als funktionales Gebäudeelement

(engl. *Building-Integrated PV*, BIPV) integriert werden, und bieten so neben einem sehr großen Ausbaupotential, durch die dezentrale Energiegewinnung direkt beim Verbraucher eine erhöhte Versorgungssicherheit sowie Systemvorteile für die Stromnetzinfrastruktur.^{23–25}

Begründet aus dem deutlich steigenden Energieverbrauch, der notwendigen Energiesicherheit sowie der Randbedingungen hinsichtlich Umwelt und Wirtschaft ergibt sich der dringende Bedarf niedrigerer PV-Stromgestehungskosten. Die Stromgestehungskosten der PV können dabei zum einen durch Verringerung der Modulherstellungskosten und zum anderen durch Steigerung der Wirkungsgrade verringert werden. Letzteres ist insbesondere für Kleinanlagen mit sehr geringem Anteil der Modulkosten gegenüber den Systemkosten deutlich effizienter. Für die bisher dominante Silizium-PV-Technologie konnte die Industrie durch eine hohe Lernrate die Modulkosten allein im letzten Jahrzehnt um über 90% senken. In den nächsten Jahren werden aber kaum mehr relevante Verringerungen der Stromgestehungskosten für Silizium-PV erwartet, da wegen der notwendigen hohen Herstellungstemperaturen (1400°C) und den aufgrund des physikalischen Wirkungsgradlimits für Silizium ($\approx 29\%$) kaum noch steigerbaren Wirkungsgraden die Technologie an fundamentale Grenzen stößt.²⁶

Genau hierfür könnte die sogenannte Perowskit-Dünnschicht-PV die entscheidende technologische Lösung darstellen. Diese zeichnet sich durch exzellente Wirkungsgrade im Labormaßstab²⁷ und dem Potential der kostengünstigen Herstellung aufgrund niedriger Herstellungstemperaturen (150°C), der Möglichkeit der Flüssigprozessierung sowie geringen Materialverbrauchs aus.^{28,29} Zudem können Perowskit-Halbleiterschichten mit Silizium oder anderen PV-Technologien in Tandem-Konfigurationen kombiniert werden, wodurch deutlich höhere Wirkungsgrade von über 33% und großem weiteren Verbesserungspotential (Wirkungsgradlimit $> 40\%$) ermöglicht werden.^{30,31} Dabei stellt insbesondere die Aufskalierung von Labormaßstäben $< 1 \text{ cm}^2$ zu industriell relevanten Größen eine noch große Hürde dar.^{32,33} In der vorliegenden Arbeit soll deshalb die Aufskalierung der Perowskit-PV-Technologie unter Nutzung industriell anwendbarer Herstellungsverfahren und Komponenten demonstriert werden. Dabei sollen durch ein neu konzipiertes Laserstrukturierungssystem Solarzellen zu Solarmodulen effizient verschaltet und in Kombination mit geeigneten Beschichtungsverfahren minimale Skalierungsverluste sowohl für die gewöhnliche als auch für Tandem-Konfigurationen erreicht werden. Zudem sollen die einzigartigen Eigenschaften der Perowskit-Dünnschicht-PV genutzt werden, um innovative und ästhetische BIPV-Anwendungen zu konzipieren und zu demonstrieren. Die Motivation dieser Arbeit ist deshalb die Weiterentwicklung der Perowskit-PV, um entscheidend zur Bewältigung der Herausforderungen der Energieversorgung beizutragen.

1.2 Wissenschaftliche Zielsetzungen

Wie in der einleitenden Motivation dargelegt, stellt die Aufskalierung auf industriell relevante Bauteilflächen eine wesentliche Herausforderung der technologischen Umsetzung von Perowskit-PV dar. Während für kleinere Flächen im Labormaßstab das Rotationsbeschichtungsverfahren günstige, schnelle und einfache Optimierungen der lösungsprozessierten Schichtstapel ermöglicht und damit zügig hohe Wirkungsgrade erreicht wurden, verhindern dessen implizite Limitierungen hinsichtlich der auftretenden Beschleunigungskräfte für Substrate und der ineffizienten Materialausnutzung eine deutliche Vergrößerung der Flächen. Die Beschichtung mittels skalierbarer lösungsbasierter Verfahren steht dagegen insbesondere im Zusammenhang mit steigender Fläche vor Herausforderungen wie Benetzungsproblemen, inhomogener Trocknung, Schichtdickenunterschieden und nachteilige Morphologien der mikrokristallinen Perowskit-Dünnschichten. Für die Herstellung von Solarmodulen ist dabei zusätzlich zur Aufskalierung der Fläche die Herstellung hocheffizienter serieller Verschaltungen von Solarzellenstreifen notwendig, um die ansonsten resultierenden hohen elektrischen Widerstandsverluste zu vermeiden. Für die Strukturierung der Verschaltungslinien wird dabei noch häufig mechanisches Ritzen eingesetzt, was zu großen photovoltaisch inaktiven Bereichen sowie zu Defekten durch Rückstände und Späne führt.

Neben dem großen Potential der Perowskit-PV eine günstigere Alternative zu Silizium-PV zu werden, ergibt sich aus den besonderen Eigenschaften der Perowskit-Halbleiterschichten die Eignung der Technologie für Tandem-PV-Anwendungen. Diese ermöglicht das Erreichen deutlich höherer Wirkungsgrade und damit auch mehr generierte Leistung pro Fläche. Während auch hierfür bereits vielversprechende Wirkungsgradrekorde im Labormaßstab erreicht wurden, stellt die Aufskalierung der Perowskit-Tandem-PV aufgrund steigender Schichtstapelkomplexität eine noch größere Herausforderung dar.

Weiterhin eignet sich Perowskit-PV aufgrund der Dünnschicht-Eigenschaft sowie der energiearmen Herstellung als mögliche leichte, flexible und kostengünstige PV-Technologie für gebäudeintegrierte Anwendungen. Um die bisher niedrige Akzeptanz der Öffentlichkeit zu steigern und Architekten mehr Designmöglichkeiten zu bieten, ist hierfür die Entwicklung einer ästhetischen, farbneutralen, optisch homogenen und individualisierbaren effizienten Perowskit-PV-Lösung notwendig.

Die Zielsetzungen der vorliegenden Arbeit ergeben sich somit zu:

Zielsetzung 1: Entwicklung eines effizienten Aufskalierungsprozesses und Demonstration effizienter Perowskit-Solarmodule auf Basis industriell anwendbarer Herstellungsmethoden und Komponenten.

Zielsetzung 2: Transfer und Optimierung des entwickelten Aufskalierungsprozesses auf Perowskit-Tandem-PV und Evaluierung der Leistung, Stabilität sowie der Aufskalierungseffizienz.

Zielsetzung 3: Entwicklung effizienter Perowskit-PV für die Gebäudeintegration unter Berücksichtigung der besonderen optischen Anforderungen, und Demonstration eines neuen Konzepts zur Steigerung der Ästhetik und Individualisierbarkeit von gebäudeintegrierter PV.

1.3 Gliederung

Die vorliegende Arbeit ist in sieben Kapitel unterteilt:

1. *Einleitung*: In diesem Kapitel ist die grundlegende Motivation der Arbeit dargelegt, sind die fundamentalen wissenschaftlichen Zielsetzungen daraus abgeleitet und durch die Gliederung wird den Leserinnen und Lesern ein Überblick über die Inhalte gegeben.

2. *Theoretische Grundlagen*: Die für das Verständnis, die Diskussion und die Bewertung der Ergebnisse dieser Arbeit notwendigen Kenntnisse insbesondere hinsichtlich der PV und der Laserbearbeitung werden kompakt erläutert, um Leserinnen und Lesern unterschiedlicher Fachbereiche ein fundiertes Verständnis des Forschungsgebiets zu vermitteln.

3. *Fertigungs- und Charakterisierungsverfahren*: Im dritten Kapitel werden die angewendeten Fertigungs- und Charakterisierungsmethoden ausführlich erläutert. Zunächst wird auf die Fertigungsverfahren zur Herstellung der Perowskit-Solarzellen und -Module einschließlich der Laserstrukturierung sowie deren grundlegenden Layouts eingegangen. Anschließend werden die theoretischen Grundlagen sowie die praktische Anwendung verschiedener experimenteller Charakterisierungsverfahren zur Bestimmung zahlreicher morphologischer, elektrischer und optischer Eigenschaften der prozessierten Materialien und Bauteile beschrieben.

4. *Laserbasierte monolithische Verschaltung vollständig gedampfter Perowskit-Solarmodule*: Das vierte Kapitel fungiert als erstes Ergebniskapitel und verfolgt das Ziel einer effizienten Aufskalierung der Perowskit-PV unter Verwendung industriell anwendbarer Fertigungsverfahren. Durch die gewählte Aufskalierungsstrategie basierend auf der Verwendung vollständig vakuumprozessierter Schichtenstapel und der detaillierten Optimierung laserstrukturierter monolithischer Verschaltung werden effiziente Perowskit-Module mit minimalen Aufskalierungsverlusten demonstriert.

5. *Prozesstransfer zu Perowskit-Tandem-Photovoltaik*: Im fünften Kapitel wird der zuvor entwickelte Aufskalierungsprozess sowohl auf semitransparente Perowskit-PV für die Anwendung in 4-Terminal-Tandem-Solarmodulen als auch auf 2-Terminal Perowskit-Perowskit-Tandem-PV übertragen. Durch Anpassungen der Schichtstapel, Layouts und Laserparameter wird die Herstellung effizienter Perowskit-basierter Tandem-PV mit geringen Aufskalierungsverlusten gezeigt.

6. *Herstellung transluzenter Perowskit-Photovoltaik*: Das sechste Kapitel setzt den Fokus auf die Entwicklung gebäudeintegrierter Perowskit-PV. Dabei wird durch die laserbasierte Herstellung zahlreicher mikroskopischer transparenter Flächen in Perowskit-PV eine optisch ansprechende, farbneutrale und effiziente PV-Lösung für Glasfassaden demonstriert. Zudem wird das Konzept der Transmissionsgradienten

zur Steigerung der Ästhetik und Individualisierungsmöglichkeiten von gebäudeintegrierter PV entwickelt und umgesetzt.

7. Zusammenfassung, Diskussion und Ausblick: Abschließend werden die Ergebnisse und Erkenntnisse dieser Arbeit, das Erreichen der anfänglichen wissenschaftlichen Zielsetzungen sowie die Relevanz für die industrielle Herstellung zusammengefasst und diskutiert. Zuletzt folgt ein daraus abgeleiteter Ausblick hinsichtlich weiterer Verbesserungspotentiale und möglicher Folgeprojekte.

Die Ergebniskapitel sind dabei so aufgebaut, dass zunächst eine tiefere Einführung in das Forschungsfeld, die Problematiken und Herausforderungen sowie die daraus resultierenden Zielsetzungen für die vorliegende Arbeit gegeben wird. Anschließend werden die Prozessparameter der Fertigungsverfahren und insbesondere der Laserstrukturierung optimiert und das Erfüllen gesetzter Ziele hinsichtlich Qualität, Homogenität oder bestimmter elektrischer und optischer Kenngrößen validiert. Darauf aufbauend werden unterschiedliche funktionale Perowskit-PV-Bauteile einschließlich aufskalierter Perowskit-Solarmodule hergestellt, diese durch experimentelle Charakterisierungsverfahren detailliert analysiert und zuletzt die Ergebnisse in Hinblick auf Forschungsergebnisse anderer Autoren und der Relevanz für eine industrielle Herstellung diskutiert und bewertet.

1.4 Wissenschaftliche Kontributionen

Insbesondere in der heutigen Zeit sind Fortschritte in Forschung und Wissenschaft kaum noch ohne den regelmäßigen Wissensaustausch, die gegenseitige Unterstützung und die intensive Zusammenarbeit in Kollaborationsprojekten möglich. Um sowohl die Beiträge anderer Wissenschaftlerinnen und Wissenschaftler sowie Autorinnen und Autoren zu würdigen als auch die eigene geleistete Arbeit hervorzuheben, ist ein hoher Grad an Transparenz durch die detaillierte Benennung der einzelnen Beiträge unerlässlich. Während besonders essenzielle Beiträge anderer Wissenschaftler direkt zu Beginn der Ergebniskapitel in den einleitenden Worten genannt werden, ist die detaillierte Auflistung aller Beiträge mittels CRrediT Systems (engl. *Contributor Roles Taxonomy*) in Kapitel 8.1 des Anhangs dargestellt.³⁴

Unabhängig von den Beiträgen zu Inhalten der Ergebniskapitel wird an dieser Stelle betont, dass die vorliegende Arbeit komplett eigenständig verfasst wurde und somit die formelle Autorschaft, einschließlich der Aufgaben des Schreibens, der Überarbeitung, der Visualisierung und des Strukturierens, ausschließlich dem Autor zugeschrieben wird und von diesen Beiträgen unberührt bleibt.

2 Theoretische Grundlagen

Im vorangegangenen Kapitel wurde durch Darlegung der modernen Herausforderungen der Energiepolitik und den dahingehend großen Potentialen Perowskit-basierter PV die Aufskalierung von Perowskit- und Perowskit-Tandem-PV sowie die Entwicklung neuer gebäudeintegrierter Anwendungsmöglichkeiten motiviert. Für das Verständnis, die Bewertung und die Diskussion der im weiteren Verlauf dieser Arbeit präsentierten Ergebnisse sind dabei zahlreiche theoretische Kenntnisse verschiedener Fachgebiete notwendig. In erster Linie sind dazu Grundlagen der PV unerlässlich, welche das Funktionsprinzip und elektrische Verhalten von Solarzellen im Allgemeinen aber auch den Aufbau Perowskit-basierter Solarzellen, deren Verschaltung zu Modulen und den damit verbundenen Verlusten im Speziellen umfassen. Zusätzlich werden die Tandem-PV und transparente PV vorgestellt, welche für die Einordnung der im späteren Teil der Arbeit präsentierten Ergebnisse erforderlich sind. Da in dieser Arbeit die Verschaltung sowie anderweitige Strukturierung von Perowskit-PV mittels Laserbearbeitung durchgeführt wird, bedarf es auch der Kenntnis über dabei auftretende Ablationsprozesse sowie fundamentale Parameter der Laserstrukturierung. Weiterhin werden für die Qualitätsbeurteilung von transparenter PV auch Farbmessungen durchgeführt, sodass zuletzt noch auf die Grundlagen der Farbwahrnehmung und deren Quantifizierung eingegangen wird. Um Leserinnen und Lesern diverser Fachbereiche und mit unterschiedlichem Vorwissen ein fundiertes Verständnis des Forschungsgebiets zu vermitteln, werden die genannten theoretischen Grundlagen im Folgenden kompakt erläutert.

2.1 Grundlagen der Photovoltaik

Ein Ziel der vorliegenden Arbeit besteht darin, photovoltaische Bauteile wie Perowskit-basierte Solarzellen und Solarmodule herzustellen. Die Beurteilung der Ergebnisse erfordert daher ein grundlegendes Verständnis deren Funktionsweise, deren Aufbau sowie spezifischer technologischer Applikationen. Daher werden im Folgenden das Funktionsprinzip einer Solarzelle, gängige elektrische Ersatzmodelle und daraus ableitbare charakterisierende Kenngrößen erläutert. Des Weiteren wird das Prinzip monolithischer Verschaltungen von Dünnschicht-PV erklärt und die damit einhergehenden Aufskalierungsverluste beschrieben. Schließlich werden die Funktionsweise und der Aufbau der Tandem-PV sowie der transparenten PV erläutert.

2.1.1 Funktionsprinzip einer Solarzelle

Eine Solarzelle basiert auf dem photovoltaischen Effekt. Dabei werden einem Halbleiter Photonen (Sonnenlicht) zugeführt, deren Energie größer als die Bandlücke des Halbleiters zwischen Valenzband und Leitungsband ist. Durch Absorption dieser Photonen kann ein Elektron energetisch aus dem Valenzband in das Leitungsband angeregt werden, was zur Bildung chemischer Energie in Form eines gebundenen Elektron-Loch-Paars, eines sogenannten Exzitons, führt. Wesentlich ist, dass dieses Exziton getrennt wird und Elektron und Loch durch selektive Kontaktschichten über zwei Elektroden separat extrahiert werden. Bei erfolgreicher Extraktion kann aufgrund des elektrochemischen Potentials der generierten Elektronen und Löcher eine elektrische Spannung zwischen den Elektroden abgegriffen werden. Die Umwandlung in elektrische Energie resultiert somit aus dem generierten Ladungsträgerfluss und der elektrischen Spannung an den Elektroden bei Wahl eines geeigneten Betriebspunktes der Solarzelle.³⁵

Für die physikalische Beschreibung des Funktionsprinzips einer Solarzelle soll im Folgenden zunächst die Umwandlung von Strahlungsenergie in chemische Energie betrachtet werden, und im Anschluss detailliert auf die komplexere Aufgabe der Trennung und Extraktion der Ladungsträger zur Erzeugung der elektrischen Energie eingegangen werden.

Die Strahlungsenergie wird in Form von Photonen γ der Energie $E_\gamma = \hbar\omega$ zugeführt. Nur wenn dabei die Energie des Photons größer der Energie der Bandlücke des Halbleiters $E_\gamma \geq E_G$ ist, kann es zur Absorption der Strahlungsenergie und zur Bildung eines gebundenen Elektron-Loch-Paares $e + h$ (Exziton) kommen (**Abbildung 2.1**):

$$\gamma \rightarrow e + h \quad (2.1)$$

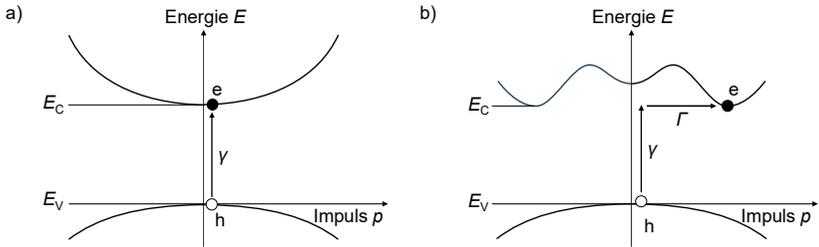


Abbildung 2.1. Erzeugung von gebundenen Elektron-Loch-Paaren in einem a) direkten Halbleiter mit Bandlücke $E_G = E_C - E_V$ durch Absorption eines Photons mit der Energie $E_V = \hbar\omega = E_G$ und in einem b) indirekten Halbleiter gleicher Bandlücke E_G durch zusätzliche Absorption oder Emission eines Phonons Γ geringer Energie E_Γ und großen Impulses p_Γ .

Dabei gilt dies lediglich für einen direkten Halbleiter wie beispielsweise GaAs oder dem später vorgestellten Perowskit-Absorber.^{36,37} Für indirekte Halbleiter wie Silizium wird dagegen zusätzlich die Absorption oder Emission eines Phonons Γ benötigt,³⁸ um neben der Bedingung des Energieerhalts auch die des Impulserhalts zu erfüllen:

$$\gamma + \Gamma \rightarrow e + h \quad | \quad \gamma \rightarrow e + h + \Gamma \quad (2.2)$$

Aufgrund der notwendigen Beteiligung eines Phonons zur Absorption sind die Absorptionskoeffizienten für indirekte Halbleiter gering im Vergleich zu direkten Halbleitern.

Die Elektron-Loch-Paare sind zunächst wegen der gegenseitigen Anziehung durch die Coulomb-Kraft aneinandergebunden. Die Exzitonen-Bindungsenergie ist für viele anorganische Halbleiter sowie auch für die in der vorliegenden Arbeit relevanten Perowskit-Halbleiter geringer als die thermische Energie bei Raumtemperatur (≈ 25 meV), sodass Elektron und Loch praktisch als quasi-freie Ladungsträger betrachtet werden können.³⁹ Die Trennung von Exzitonen für organische Halbleiter wird hier nicht näher erläutert und kann in entsprechender Fachliteratur nachgelesen werden.³⁵

Die nun freien Elektronen und Löcher werden in einer Solarzelle im Wesentlichen von zwei Kräften angetrieben, welche zu den Ladungsträgerströmen führen. Zum einen kann es aufgrund der Ladung der Elektronen und Löcher zu einem Strom durch die Kräfte des elektrischen Felds \vec{E} kommen. Der Stromdichte J aufgrund eines elektrischen Felds \vec{E} und für Ladungsträger i entspricht:

$$J_{E,i} = z_i e n_i \vec{v}_i \quad (2.3)$$

Dabei ist $z_i e$ die Elementarladung, n_i die Konzentration des Ladungsträgers i und v_i die Geschwindigkeit des Ladungsträgers i . Die Durchschnittsgeschwindigkeit eines Ladungsträgers entspricht in einem klassisch leitenden Material der Beschleunigung multipliziert mit der durchschnittlichen Zeit $\tau_{K,i}$ bis zur nächsten Kollision mit anderen Ladungsträgern oder Phononen. Die Beschleunigung a_i der Ladungsträger mit der effektiven Masse m_i^* wird durch das elektrische Feld \vec{E} ausgelöst, sodass für die Durchschnittsgeschwindigkeit gilt:

$$\bar{v}_i = \int_0^{\infty} a_i \exp\left(-\frac{t}{\tau_{K,i}}\right) dt = a_i \tau_{K,i} = z_i \frac{e}{m_i^*} \tau_{K,i} \vec{E} \quad (2.4)$$

Hierdurch ergibt sich die Ladungsträgerstromdichte zu:

$$J_{E,i} = z_i^2 e n_i b_i E = \sigma_i E = \frac{\sigma_i}{z_i e} \text{grad}(z_i e \varphi) \quad (2.5)$$

Dabei ist die Mobilität der Ladungsträger $b_i = e \tau_{K,i} / m_i^*$, die Leitfähigkeit der Ladungsträger $\sigma_i = z_i^2 e n_i b_i$, sowie φ das elektrische Potential mit $\vec{E} = \text{grad}(\varphi)$.

Zum anderen kann es aufgrund eines Konzentrationsgefälles von Ladungsträgern i zu einer Ladungsträgerstromdichte nach dem Fickschen Gesetz kommen:

$$J_{D,i} = z_i e (-D_i \text{grad}(n_i)) = z_i e n_i \left(-D_i \frac{\text{grad}(n_i)}{n_i} \right) \quad (2.6)$$

D_i ist der Diffusionskoeffizient. Durch Erweiterung des Bruchs mit n_i , der Substitution von $\text{grad}(n_i)/n_i$ durch $\text{grad}(\ln(n_i/N_{i,0}))$ und Verwendung des die Diffusion verursachenden chemischen Potentials der Ladungsträger μ_i mit $\mu_i - \mu_{i,0} = kT \ln(n_i/N_{i,0})$ ergibt sich die Ladungsträgerstromdichte zu:

$$J_{D,i} = -\frac{z_i e n_i D_i}{kT} \text{grad}(\mu_i) = -\frac{\sigma_i}{z_i e} \text{grad}(\mu_i) \quad (2.7)$$

Hierbei ist $\mu_{i,0}$ der Ausgangswert des chemischen Potentials bei einer Standardkonzentration $N_{i,0}$ des Ladungsträgers i , k die Boltzmann-Konstante und T die Temperatur. Das chemische Potential μ_i zusammen mit dem elektrischen Potential $z_i e \varphi$ entsprechen dabei dem elektrochemischen Potential η_i :

$$J_i = -\frac{\sigma_i}{z_i e} \text{grad}(\mu_i + z_i e \varphi) = -\frac{\sigma_i}{z_i e} \text{grad}(\eta_i) \quad (2.8)$$

Da die einzigen sich bewegenden geladenen Teilchen in einem Halbleiter Elektronen und Löcher sind, ergibt sich die Ladungsträgerstromdichte mit $z_i = -1$ für Elektronen und $z_i = +1$ für Löcher zu:

$$J = \frac{\sigma_e}{e} \text{grad}(\eta_e) - \frac{\sigma_h}{e} \text{grad}(\eta_h) \quad (2.9)$$

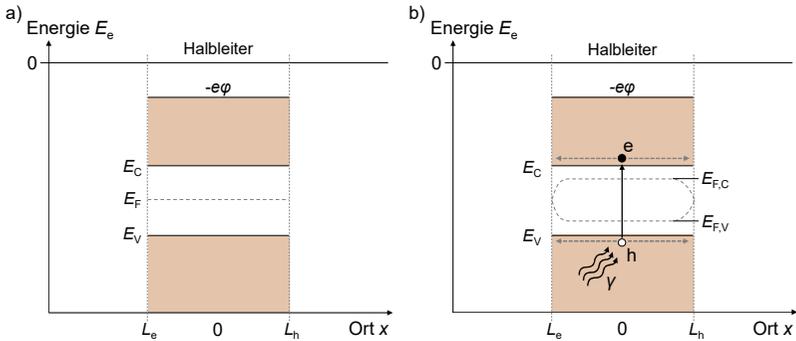


Abbildung 2.2. a) Energieskala für Elektronen in einem Halbleiter der Dicke $L_e + L_h$ ausgehend von freien Elektronen in Vakuum bei $E = 0$ mit elektrischer Potentialenergie $-e\phi$, Leitungsbandenergie E_C , Fermi-Energie E_F und Valenzbandenergie E_V . L entspricht dabei der Diffusionslänge der Elektronen bzw. Löcher. b) Bei Beleuchtung des Halbleiters mit Photonen der Energie $E_\gamma \geq E_G$ entstehen Elektron-Loch-Paare ($e + h$). Bei deren Dissoziation in freie Ladungsträger kommt es zu der Aufspaltung der Fermie-Energie in $E_{F,C}$ und $E_{F,V}$. An den freien Oberflächen des Halbleiters nimmt E_F den ursprünglichen Wert an, da es durch Defekte zur Rekombination der Ladungsträger kommt. Der Gradient der Fermi-Energie ist dabei die Antriebskraft für den Transport der Elektronen und Löcher an die Oberflächen.

Dabei ist η_e das elektrochemische Potential der Elektronen und η_h das elektrochemische Potential der Löcher.

Bei Betrachtung der Energieskala eines unbelichteten intrinsischen Halbleiters (siehe **Abbildung 2.2a**) befindet sich die Fermi-Energie E_F , etwa in der Mitte der Bandlücke zwischen Valenz- und Leitungsbandenergie E_V und E_C , wobei die Fermi-Energie der Energie eines Teilchenzustands entspricht, für die die Besetzungswahrscheinlichkeit eines Systems im thermodynamischen Gleichgewicht gerade 50% entspricht. Bei Beleuchtung des Halbleiters mit Photonen geeigneter Energie $E_\gamma \geq E_G$ kommt es zur Erzeugung freier Ladungsträger und einem scheinbaren Widerspruch: Während die Erhöhung der Elektronenkonzentration n_e eine Annäherung von E_F an E_C zur Folge haben müsste, müsste die ebenfalls erhöhte Lochkonzentration zu einer Annäherung an E_V führen. Abhilfe schafft hierbei die Aufspaltung der Fermi-Energie in einem beleuchteten Halbleiter in zwei Quasi-Fermi-Energien für Elektronen $E_{F,C}$ und Löcher $E_{F,V}$ (siehe **Abbildung 2.2b**). Dabei entsprechen die beiden Fermi-Energien dem elektrochemischen Potential der Ladungsträger, sodass mit $E_{F,C} = \eta_e$ und $E_{F,V} = -\eta_h$ gilt:

$$J = \frac{\sigma_e}{e} \text{grad}(E_{F,C}) + \frac{\sigma_h}{e} \text{grad}(E_{F,V}) \quad (2.10)$$

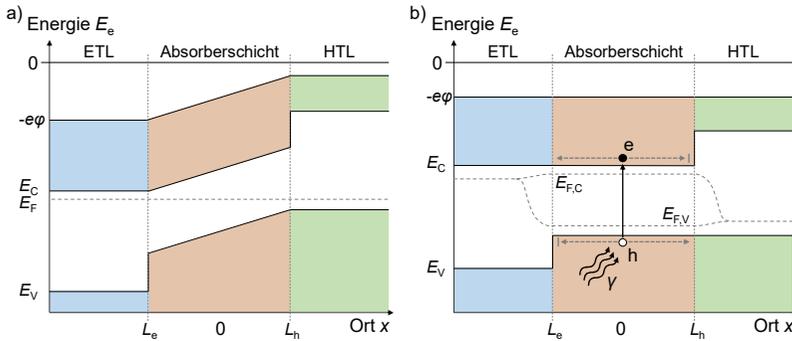


Abbildung 2.3. a) Energieskala eines Materialsystems bestehend aus drei unbeleuchteten Halbleitern (im Folgenden als ETL, Absorberschicht und HTL bezeichnet) unterschiedlicher elektrischer Potentialenergien $-e\phi$, Leitungsbandenergien E_C , Fermi-Energien E_F und Valenzbandenergien E_V . Durch den Kontakt kommt es im thermodynamischen Gleichgewicht zum Angleichen der Fermi-Energien und damit einhergehend zu einer Bandverbiegung. b) Energieskala bei Beleuchtung des Materialsystems mit Photonen einer Energie größer der Bandlücke der Absorberschicht aber geringer der Bandlücken des ETLs und HTLs und bei Betrieb nahe des Leerlaufpunktes. Während für erzeugte Elektronen der Gradient der Fermi-Energie auf der Seite des HTLs deutlich größer ist, führt der Potentialunterschied im Leitungsband und die einhergehende geringe Leitfähigkeit für Elektronen zur Rekombination. Der geringe Gradient der Fermi-Energie auf der Seite des ETLs führt dagegen in Kombination geeigneter Elektronenzustände und hoher Leitfähigkeit zur effizienten Extraktion. Für Löcher im Valenzband verhält es sich dagegen umgekehrt, sodass es zur Rekombination beim ETL und zur Extraktion mittels HTL kommt.

Die treibende Kraft der Ladungsträgerstromdichte J_G ist demnach der mit der Aufspaltung der Fermi-Energie verbundene Gradient derselben. In einem einzelnen Halbleiter führt dies aufgrund von Oberflächendefekten zum gleichmäßigen Stromfluss von Elektronen und Löchern an die Oberflächen und anschließenden Rekombination. Das Ziel der selektiven Extraktion der Ladungsträgerarten an zwei unterschiedlichen Kontakten kann dagegen durch ein geeignetes Materialsystem erreicht werden. **Abbildung 2.3a** zeigt drei unbeleuchtete Halbleiter unterschiedlicher Eigenschaften in Kontakt, wodurch es zur Bandverbiegung und Angleichung der Fermi-Energien im thermodynamischen Gleichgewicht kommt. Bei Beleuchtung kommt es zur Aufspaltung der Fermie-Energie, wobei sie für den linken Halbleiter zum Leitungsband und für den rechten Halbleiter zum Valenzband, wie in **Abbildung 2.3b** dargestellt, verschoben ist. Während die Antriebskraft für Elektronen in Form des Gradienten der Fermi-Energie $E_{F,C}$ auf der rechten Seite um ein Vielfaches größer ist und so den Transport der Elektronen nach rechts begünstigt, wird die Extraktion der Elektronen aufgrund des Potentialunterschied im Leitungsband und der damit verbundenen geringen Leitfähigkeit verhindert. Um eine

effiziente Extraktion der Elektronen auf der linken Seite trotz des deutlich geringeren Gradienten zu ermöglichen, ist eine sehr hohe selektive Leitfähigkeit für Elektronen im linken Halbleiter notwendig. Für Löcher im Valenzband verhält es sich genau umgekehrt: Trotz größerem Gradienten wird die Extraktion im linken Halbleiter durch den Potentialunterschied im Valenzband verhindert und eine effiziente Extraktion im rechten Halbleiter wird bei entsprechend hoher selektiven Leitfähigkeit für Löcher ermöglicht.

Zur selektiven Extraktion von Elektronen sollte also ein geeigneter Halbleiter, üblicherweise Elektronentransportschicht (ETL) genannt, eine ähnliche (geringfügig kleinere) Leitungsbandenergie wie die Absorberschicht $E_{C,ETL} \leq E_{C,A}$, einen großen Unterschied in der Valenzbandenergie $E_{V,ETL} \ll E_{V,A}$, eine sehr hohe Elektronenleitfähigkeit σ_e sowie sehr geringe Lochleitfähigkeit σ_h besitzen. Ein geeigneter Halbleiter zur selektiven Extraktion von Löchern, Lochtransportschicht (HTL) genannt, sollte dagegen eine ähnliche (geringfügig größere) Valenzbandenergie $E_{V,HTL} \geq E_{V,A}$, einen großen Unterschied in der Leitungsbandenergie $E_{C,HTL} \gg E_{C,A}$, eine sehr hohe Lochleitfähigkeit σ_h sowie sehr geringe Elektronenleitfähigkeit σ_e haben.

Zur Herleitung des elektrischen Verhaltens einer Solarzelle und der resultierenden Stromdichte-Spannungs-Kennlinie ist es notwendig, die Stromdichte der extrahierten Ladungsträger für jeden einzelnen Punkt x innerhalb der Solarzelle mittels Integral aufzsumieren. Da die generierten Elektronen (mit negativer Ladung) und Löcher (mit positiver Ladung) zu entgegengesetzten Kontakten fließen, entspricht die Gesamtstromdichte der Solarzelle dem gerichteten Stromfluss nur einer Ladungsträgersorte (J_e bzw. J_h). Entsprechend ist es ausreichend, die Integration für eine Ladungsträgersorte durchzuführen. Bei Beachtung der Konvention der Vorwärtsstromrichtung für Solarzellen ergibt sich für die Gesamtstromdichte J :

$$J = J_e = -J_h = -e \int \text{div}(J_h(x)) dx \quad (2.11)$$

Dabei besteht durch die Kontinuitätsgleichung der Zusammenhang mit der Änderung der Teilchendichte n_h nach der Zeit sowie der Generationsrate G_h und Rekombinationsrate R_h :

$$\frac{\partial n_h(x)}{\partial t} = G_h - R_h - \text{div}(J_h(x)) \quad (2.12)$$

Für die Herleitung des elektrischen Verhaltens der Solarzelle betrachten wir einen stationären Zustand, sodass gilt:

$$\frac{\partial n_h(x)}{\partial t} = 0, \quad \text{div}(J_h(x)) = G_h - R_h \quad (2.13)$$

Die Generations- und Rekombinationsrate können jeweils in einen thermisch hervorgerufenen Anteil bei Dunkelheit und einen durch die Illumination mit Licht hervorgerufenen Anteil getrennt werden. Für die Generationsrate gilt damit grundsätzlich:

$$G_h = G_h^T + G_h^L(x) \quad (2.14)$$

Für den Anteil der Rekombinationsrate, welcher durch Licht hervorgerufen ist, gilt dagegen die Korrelation mit der Erhöhung der Ladungsträgerdichte gegenüber dem Gleichgewichtszustand bei Dunkelheit. Entsprechend ergibt sich die Rekombinationsrate durch das Verhältnis der Ladungsträgerkonzentrationen n_e und n_h bei Beleuchtung zu der intrinsischen Ladungsträgerkonzentration des Absorbers n_i und es folgt:

$$R_h = R_h^T \frac{n_e(x)n_h(x)}{n_i^2} = R_h^T \exp\left(\frac{\eta_e(x) + \eta_h(x)}{kT}\right) \quad (2.15)$$

Des Weiteren sind die thermischen Anteile der Generations- und Rekombinationsrate identisch, sodass gilt:

$$G_h^T = R_h^T \quad (2.16)$$

Daraus folgt für die Stromdichte und Gleichung 2.11:

$$J = -e \int_{-L_e}^{L_h} G_h^T \left(1 - \exp\left(\frac{\eta_e(x) + \eta_h(x)}{kT}\right)\right) + G_h^L(x) dx \quad (2.17)$$

Die Bandlücken der ETL und HTL sind dabei so groß gewählt, dass es zu keiner Absorption von Licht und Generierung von Ladungsträgern kommt, sodass für die Integration nur der Bereich des Absorbers relevant ist. Zudem ist es für die erfolgreiche Extraktion von Ladungsträgern notwendig, dass die Diffusionslänge der Elektronen L_e bzw. der Löcher L_h bis zum Erreichen des jeweiligen selektiven Kontakts nicht überschritten wird, da diese sonst rekombinieren und nicht mehr zum extrahierten Strom beitragen. Entsprechend ist das Integral lediglich innerhalb des Absorbers und der Grenzen $[-L_e, L_h]$ zu lösen. Außerdem können die elektrochemischen Potentiale der Ladungsträger innerhalb des Absorbers als konstant betrachtet werden. Wie zuvor beschrieben, entsprechen diese den Abständen der Quasi-Fermi-Energien der Ladungsträger von der intrinsischen Fermi-Energie des Halbleiters und können auch als Energie eV des elektrischen Potentialunterschieds V beschrieben werden, der für die Annahme vernachlässigbarer Widerstände zwischen ETL und HTL anliegt:

$$\eta_e(x) + \eta_h(x) = \eta_e + \eta_h = E_{F,C} - E_{F,V} = eV \quad (2.18)$$

Die Integration innerhalb der relevanten Absorberbereiche ergibt:

$$J = -e G_h^T (L_e + L_h) \left(\exp\left(\frac{eV}{kT}\right) - 1 \right) - e \int_{-L_e}^{L_h} G_h^L(x) dx \quad (2.19)$$

Die beiden verbleibenden Terme der Generationsraten können durch die Betrachtung zweier Extremfälle bestimmt werden. Die resultierende Stromdichte unter Beleuchtung und äußerem Kurzschluss der Solarzelle ($V=0$) wird dabei als Kurzschlussstromdichte J_{SC} (englisch *Short-Circuit Current Density*) bezeichnet und ergibt sich zu:

$$J = -e \int_{-L_e}^{L_h} G_h^L(x) dx = -J_{SC} \quad (2.20)$$

Bei Dunkelheit und für große negativen Spannungen ($\exp(eV/kT) \ll 1$) ergibt sich der Sättigungssperrstrom J_S aus dem vorderen Term:

$$J = e G_h^T (L_e + L_h) = J_S \quad (2.21)$$

Es gilt damit für das elektrische Verhalten einer Solarzelle:

$$J = J_S \left(\exp\left(\frac{eV}{kT}\right) - 1 \right) - J_{SC} \quad (2.22)$$

Neben der Extraktion freier Ladungsträger kommt es aber auch zur Rekombination der Elektronen und Löcher im Halbleiter nach einer effektiven Lebensdauer τ_i bzw. Diffusionslänge L_i . Zur effizienten Extraktion der Ladungsträger ist deshalb die Schichtdicke des absorbierenden Halbleiters geeignet zu wählen (siehe **Abbildung 2.3**). Die Rekombinationsrate hängt dabei von der Wahrscheinlichkeit für unterschiedliche Rekombinationsmechanismen ab, wie sie in **Abbildung 2.4** dargestellt sind. Zum einen kann es zur (1) strahlenden Rekombination unter Abgabe eines Photons kommen, was insbesondere für direkte Halbleiter häufig der dominierende Mechanismus ist. (2) Shockley-Read-Hall-Rekombination (SRH) tritt durch Defekte im Kristallgitter und damit verbundenen Energiezuständen innerhalb der Bandlücke auf.⁴⁰ Diese Rekombinationszentren können Elektronen und Löcher einfangen und es kommt unter Abgabe von Phononen zu nicht-strahlender Rekombination. SRH-Rekombination ist dabei für Halbleiter mit hoher Defektdichte und Defektzuständen in der Mitte der Bandlücke ein häufiger Rekombinationsmechanismus. (3) Bei der Auger-Rekombination kommt es zur Rekombination eines Elektron-Loch-Paares durch die Abgabe der Energie an ein weiteres Elektron (Loch) im Leitungsband (Valenzband), sodass es wiederum ein nicht-strahlender Rekombinationsmechanismus ist.⁴¹ Das angeregte Elektron

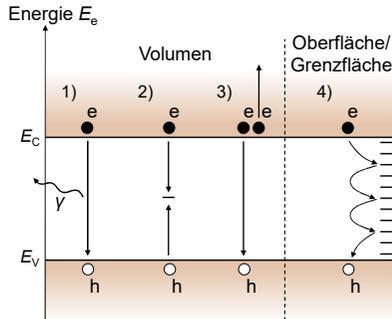


Abbildung 2.4. Schematische Darstellung der unterschiedlichen Rekombinationsmechanismen von Elektronen und Löchern in einem Halbleiter. 1) Strahlende Rekombination mittels Emission eines Photons. 2) Nicht-strahlende Rekombination mittels Rekombinationszentren eines Ladungsträgers innerhalb der Bandlücke durch einen Defekt im Kristallgitter des Halbleiters, auch Shockley-Read-Hall-Rekombination genannt. 3) Nicht-strahlende Rekombination mittels Anregung eines Elektronen im Leitungsbands, auch Auger-Rekombination genannt. 4) Nicht-strahlende Rekombination mittels durchgängig verteilter Zustände innerhalb der Bandlücke durch Defekte an der Oberfläche und Grenzfläche des Halbleiters.

thermalisiert anschließend wieder an die jeweilige Bandkante. Da dieser Mechanismus auf der Interaktion von drei Teilchen basiert, spielt er bei hohen Ladungsträgerkonzentrationen durch starke Dotierungen (Silizium) oder hohe Bestrahlung des Halbleiters mit konzentriertem Sonnenlicht eine wesentliche Rolle. (4) Neben den Rekombinationsmechanismen im Volumen des Halbleiters weisen Oberflächen und Grenzflächen häufig nicht abgesättigte Bindungen auf, welche zu zahlreichen und kontinuierlich verteilten Energiezuständen innerhalb der Bandlücke des Halbleiters führen. Elektron-Loch-Paare können unter sukzessiver Abgabe von Phononen wiederum nicht-strahlend rekombinieren. Auf diesem Rekombinationsmechanismus begründet sich der Bedarf geeigneter Oberflächen- und Grenzflächenpassivierungsstrategien für effiziente Ladungsträgerextraktion.⁴²

2.1.2 Elektrisches Modell und Kenngrößen einer Solarzelle

Das elektrische Verhalten einer Solarzelle kann mittels unterschiedlicher Ersatzschaltbilder beschrieben werden. Die Grundlage dieser Ersatzschaltbilder bildet die Parallelschaltung einer idealen Stromquelle, welche bei Beleuchtung die generierte Photostromdichte J_{ph} beschreibt, und einer idealen Halbleiterdiode, deren Stromdichte-Spannungs-Kennlinie durch die Shockley-Gleichung beschrieben wird.³⁵ Das resultierende Ersatzschaltbild ist in **Abbildung 2.5a** dargestellt und es gilt abgeleitet über die Kirchhoffsche Regeln der Schaltungstechnik

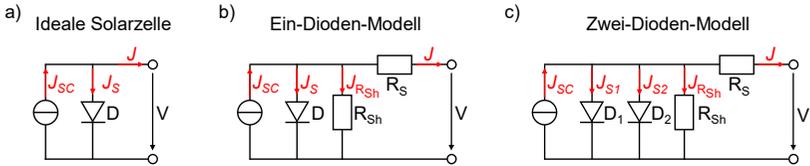


Abbildung 2.5. Elektrische Ersatzschaltbilder einer Solarzelle. a) Elektrisches Ersatzschaltbild einer idealen Solarzelle unter Berücksichtigung der strahlenden Rekombination J_S mittels Diode. b) Im Ein-Dioden-Modell werden zusätzlich Serien- R_S und Parallelwiderstände R_{Sh} einer Solarzelle berücksichtigt. c) Im Zwei-Dioden-Modell einer Solarzelle wird ebenfalls nicht-strahlende Rekombination J_{S2} betrachtet.

für die Kennlinie einer idealen Solarzelle mit ausschließlich strahlender Rekombination:

$$J(V) = J_S \left(\exp \frac{eV}{kT} - 1 \right) - J_{Ph} \quad (2.23)$$

Dabei entspricht J_S der Sättigungs- oder Sperrstromdichte der Diode und eV der Energiedifferenz $E_{F,C} - E_{F,V}$, sodass zwischen der ETL und HTL die Spannung V anliegt.

Für die Herleitung des Funktionsprinzips der Solarzelle in Kapitel 2.1.1 sowie für die Beschreibung mittels elektrischem Ersatzschaltbild einer idealen Solarzelle wurden elektrische Verluste bisher vernachlässigt. Für reale Solarzellen kommt es aber aufgrund endlicher Leitfähigkeiten der Solarzellenschichten und Kontaktwiderständen an Grenzflächen wie Halbleiter-Metallkontaktübergängen zu elektrischen Widerständen für den Ladungsträgertransport, welche durch Einführung des Serienwiderstands R_S (englisch *Series Resistance*) beschrieben werden. Außerdem führen Defekte der Absorberschicht zu zusätzlichen Strompfaden parallel zur Diode, sodass der Parallelwiderstand R_{Sh} (englisch *Shunt Resistance*) ergänzt wird. Das resultierende Ersatzschaltbild des sogenannten Ein-Dioden-Modells ist in **Abbildung 2.5b** dargestellt und es folgt für die Kennliniengleichung:

$$J(V) = J_S \left(\exp \frac{e(V - JR_S^*)}{kT} - 1 \right) + \frac{V - JR_S^*}{R_{Sh}^*} - J_{Ph} \quad (2.24)$$

Neben der strahlenden Rekombination treten ebenfalls Verluste aufgrund der bereits vorgestellten nicht-strahlenden Rekombinationspfade auf. Es kommt somit zu einem zusätzlichen Rekombinationsstromfluss, welcher durch Parallelschaltung einer weiteren Diode D_2 beschrieben wird. Das Ersatzschaltbild des sogenannten Zwei-Dioden-Modells ist **Abbildung 2.5c** gezeigt und für die Kennliniengleichung gilt:

$$J(V) = J_{S1} \left(\exp \frac{e(V - JR_S^*)}{n_1 kT} - 1 \right) + J_{S2} \left(\exp \frac{e(V - JR_S^*)}{n_2 kT} - 1 \right) + \frac{V - JR_S^*}{R_{Sh}^*} - J_{Ph} \quad (2.25)$$

Dabei entspricht J_{S1} der Sättigungsstromdichte und n_1 dem Idealitätsfaktor der Diode für strahlende Rekombination und J_{S2} der Sättigungsstromdichte und n_2 dem Idealitätsfaktor der Diode für nichtstrahlende Rekombination. Idealitätsfaktor n_1 nimmt im Zwei-Dioden-Modell üblicherweise den Wert 1 und n_2 den Wert 2 an. Dabei wird teilweise der Idealitätsfaktor n auch für das Ein-Dioden-Modell in Gleichung 2.24 eingeführt und in diesem Fall auf Grundlage des dominierenden Rekombinationspfades zu einem Wert zwischen 1 und 2 gewählt.⁴³

Der Vergleich der Qualität und Leistungsfähigkeit unterschiedlicher Solarzellen wird durch charakterisierende Kenngrößen möglich, welche zum Teil direkt aus der Kennlinie der Solarzelle ablesbar sind oder sich durch einfache Schritte berechnen lassen. Eine beispielhafte Stromdichte-Spannungskennlinie einer idealen Solarzelle ist als Veranschaulichung für die Herleitung der charakterisierenden Kenngrößen in **Abbildung 2.6a** dargestellt. Die Kurzschlussstromdichte J_{SC} (englisch *Short-Circuit Current Density*) ergibt sich als Wert der Stromdichte im Falle des äußeren Kurzschlusses und entspricht dem generierten und extrahierten Photostrom J_{Ph} :

$$J_{SC} = J(V = 0V) = J_{Ph} \quad (2.26)$$

Sie ist dabei linear von der Intensität des einfallenden Lichts abhängig und wird fundamental von der Bandlücke des Absorbers, der Energie einfallender Photonen, der Diffusionslängen der erzeugten Ladungsträger und deren Extraktionswahrscheinlichkeit beeinflusst.

Die offene Klemmspannung V_{OC} (englisch *Open-Circuit Voltage*) entspricht der Spannung bei verschwindender Stromdichte, also vollständiger Rekombination der generierten Ladungsträger. Aus Gleichung 2.22 folgt:

$$V_{OC} (J = 0) = \frac{kT}{e} \ln \left(\frac{J_{SC}}{J_S} + 1 \right) \quad (2.27)$$

Wegen der J_{SC} wird die V_{OC} von der Bandlücke des Absorbers beeinflusst und ist logarithmisch von der Intensität des einfallenden Lichts abhängig. Aufgrund der J_S wird die V_{OC} zusätzlich noch durch Temperatur und der nichtstrahlenden Rekombinationsrate von Ladungsträgern beeinflusst.

Die maximale Ausgangsleistung P_{Max} der Solarzelle einer Fläche A wird im sogenannten *Maximum Power Point* (MPP) der Kennlinie mit der dazugehörigen Spannung V_{MPP} und Stromdichte J_{MPP} abgelesen:

$$P_{Max} = J_{MPP} V_{MPP} A \quad (2.28)$$

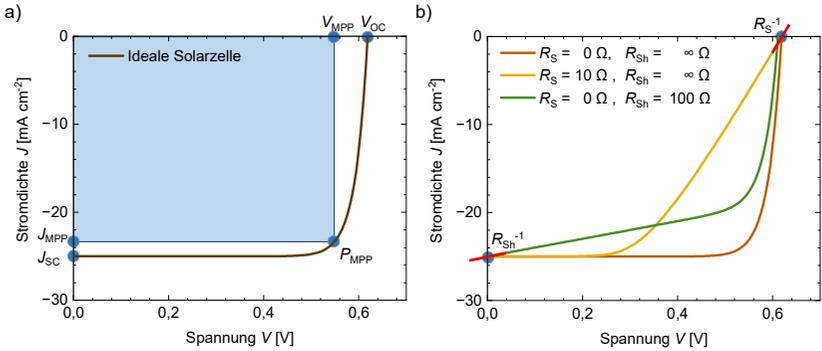


Abbildung 2.6. Stromdichte-Spannungskennlinien einer Solarzelle. a) Stromdichte-Spannungskennlinie einer idealen Solarzelle ohne Berücksichtigung der elektrischen Widerstände. b) Stromdichte-Spannungskennlinien einer Solarzelle nach dem Ein-Dioden-Modell und Einfluss der elektrischen Widerstände. Hervorhebungen (blau) kennzeichnen die Visualisierung charakterisierender Kenngrößen.

Der Füllfaktor FF beschreibt zudem das Verhältnis aus tatsächlicher Ausgangsleistung $V_{MPP} \cdot J_{MPP} \cdot A$ und maximal vorstellbarer Ausgangsleistung der Solarzelle $V_{OC} \cdot J_{SC} \cdot A$ und ergibt sich zu:

$$FF = \frac{V_{MPP} J_{MPP}}{V_{OC} J_{SC}} \quad (2.29)$$

Der theoretisch maximal erreichbare FF ist dabei von der Bandlücke und der V_{OC} abhängig und steigt mit diesen an. Für die in dieser Arbeit genutzten Perowskit-Absorber entspricht $FF_{\text{Max}} \approx 90\%$. Für reale Solarzellen wird der FF dagegen wesentlich durch Serien- und Parallelwiderstände reduziert sowie zusätzlich vom dominierenden Rekombinationsmechanismus beeinflusst. Der individuelle Einfluss von R_S und R_{Sh} auf die Kennlinie und den FF einer Solarzelle nach dem Ein-Dioden-Modell ist in **Abbildung 2.6b** dargestellt. R_S^* ergibt sich aus Gleichung 2.24 unter Annahme eines idealen Parallelwiderstands ($R_{Sh}^* \rightarrow \infty$) und am Punkt offener Klemmspannung zu:

$$\left. \frac{dJ}{dV} \right|_{V=V_{OC}} = \frac{1}{R_S^*} \quad (2.30)$$

Ebenso lässt sich R_{Sh} unter Annahme eines idealen Serienwiderstands ($R_S \rightarrow 0$) und am Kurzschlusspunkt berechnen:

$$\left. \frac{dJ}{dV} \right|_{V=0} = \frac{1}{R_{Sh}^*} \quad (2.31)$$

Dabei sei zu erwähnen, dass Widerstände der Solarzelle häufig normalisiert über die Fläche angegeben werden, sodass $R^* = R \cdot A$ gilt. Für leistungsfähige Solarzellen nimmt R_s^* üblicherweise Werte im Bereich von $0,1 \Omega\text{cm}^2$ bis $10 \Omega\text{cm}^2$ und R_{sh}^* im Bereich von einigen $\text{k}\Omega\text{cm}^2$ bis $\text{M}\Omega\text{cm}^2$ an.

Die wohl wesentlichste charakterisierende Kenngröße der Solarzelle ist der Wirkungsgrad PCE (englisch *Power Conversion Efficiency*). Dieser gibt das Verhältnis aus maximaler Ausgangsleistung P_{Max} der Solarzelle und der Leistung der einwirkenden Lichtstrahlung für eine Fläche A an:

$$PCE = \frac{P_{\text{Max}}}{P_{\text{Licht}}} = \frac{FF \cdot V_{\text{OC}} J_{\text{SC}} A}{P_{\text{Licht}}} \quad (2.32)$$

Der Wirkungsgrad wird dabei üblicherweise für ein normiertes Strahlungsspektrum wie AM1.5G angegeben, welches der Intensität und spektralen Verteilung des Sonnenlichts auf der Erdoberfläche entspricht, wenn das Sonnenlicht das 1,5-fache der Luftmasse der Erde durchdrungen hat.⁴⁴

2.1.3 Perowskit-basierte Dünnschichtsolarzelle

Die Bezeichnung Perowskit bezieht sich historisch betrachtet auf das Mineral CaTiO_3 (Calciumtitanat), welches nach dem russischen Mineralogen Perowski benannt wurde.⁴⁵ Abgeleitet von der Kristallstruktur des Minerals, wird es als Bezeichnung für Verbindungen der chemischen Struktur ABX_3 verwendet. Obschon diese Verbindungen per Definition eine kubische Kristallstruktur mit der Raumgruppe $\text{Pm}\bar{3}\text{n}$ aufweisen sollten, kristallisiert CaTiO_3 tatsächlich in einer orthorhombischen Struktur. Die kubische Einheitszelle der Perowskitverbindungen ist in **Abbildung 2.7** dargestellt. Die Einheitszelle umfasst dabei entsprechend der chemischen Struktur ein einfach geladenes A-Kation, ein zweifach geladenes B-Kation und ein einfach geladenes X-Anion.

Entscheidend für die Einnahme einer kubischen Perowskit-Struktur sind die Ionenradien im Kristallgitter, welche in einem bestimmten Verhältnis zueinander zu wählen sind, welches als Goldschmidtscher Toleranzfaktor bezeichnet wird. Es gilt:

$$t = \frac{r_A + r_X}{\sqrt{2} (r_B + r_X)} \quad (2.33)$$

Hierbei sind r_A , r_B , und r_X die Ionenradien der Ionen A, B und X sowie t der empirisch ermittelte Toleranzfaktor. Für die in der vorliegenden Arbeit betrachteten Blei-Halogenid-Perowskite bilden sich im Bereich $0,9 < t < 1,0$ kubische und für $0,7 < t < 0,9$ Kristallstrukturen mit niedrigerer Symmetrie (orthorhombisch oder tetragonal).

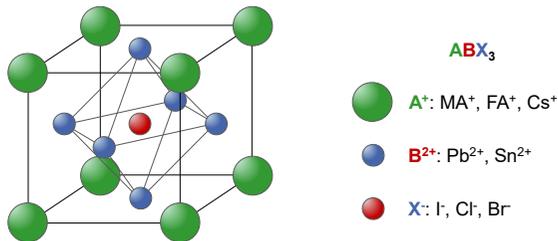


Abbildung 2.7. Schematische Darstellung der Einheitszelle der kubischen Kristallstruktur von Metall-Halogenid-Perowskit-Verbindungen und relevanteste Ionen mit geeigneten Ionenradien zur Bildung dieser Verbindungen.

Die Blei-Halogenid-Perowskite formen dabei Halbleiter und wurden erstmals 2006 von Kojima *et al.* als Absorbermaterial in einer funktionalen Solarzelle demonstriert,⁴⁶ woraufhin aufgrund vielversprechender Eigenschaften eine rasche Entwicklung mit zusätzlichen Applikationen für LEDs und Photodektoren folgte.^{47–50} Wie die Bezeichnung bereits angibt, werden dabei Blei (Pb^{2+}) als B-Kation und ein Halogen wie Iodid (I^-), Chlorid (Cl^-) oder Bromid (Br^-) als X-Anion verwendet. Die Kristallgitterplätze der A-Kationen können hingegen sowohl von organischen Molekülonen wie Methylammonium (MA^+ , $CH_3NH_3^+$) oder Formamidinium (FA^+ , $HC(NH_2)_2^+$) als auch von anorganischen Ionen wie von Caesium (Cs^+) besetzt werden. Aufgrund verbesserter chemischer Stabilität werden inzwischen Doppel- (Cs_xFA_{1-x}) oder Tripel-Kationen-Perowskite ($Cs_xFA_yMA_{1-x-y}$) aus Mischungen der A-Kationen genutzt,^{51,52} wobei für den Goldschmidt Toleranzfaktor in diesem Fall der mittlere Ionenradius der entsprechenden Ionen entscheidend für die Bildung der kubischen Raumstruktur ist. Die sich einstellende Bandlücke des Perowskit-Halbleitermaterials wird im Wesentlichen durch die Oktaeder-bildenden BX_3 -Ionen bestimmt.⁵³ Die Wahl passender A-Kationen ist dagegen insbesondere für die Ausbildung von 3D-Kristallstrukturen essenziell. Die Verwendung sehr großer organischer A-Kationen ermöglicht die Formation von 2D-Perowskit-Strukturen, die insbesondere für die Passivierung der zumeist defektreichen Perowskit-Grenzflächen genutzt werden.⁵⁴

Blei-Halogenid-Perowskite zeichnen sich dabei durch eine einzigartige Kombination aus hervorragenden optoelektronischen Eigenschaften, vielfältigen Applikationsbereichen und wirtschaftlichen Herstellungsrouten aus, welche im Folgenden vorgestellt werden:

Einstellbare Bandlücke: Durch die Variation der $APbX_3$ Zusammensetzung ist die Bandlücke im Bereich von ca. 1,5 eV bis 2,3 eV anpassbar, während die Verwendung von Zinn als B-Kation noch kleinere Bandlücken bis 1,2 eV

ermöglicht.^{55,56} Die Bandlücke kann somit ideal auf das gewünschte Absorptionsspektrum für Ein- und Zwei-Übergangssolarzellen oder analog auf das gewünschte Emissionsspektrum für LEDs eingestellt werden.

Hohe Absorption: Die vorrangig direkte Bandlücke der Blei-Halogenid-Perowskiten resultiert in hohen Absorptionskoeffizienten von bis zu 10^4 cm^{-1} , welche selbst die anderer Dünnschichtableiter wie GaAs um fast eine Größenordnung übertreffen und es so bereits für Schichtdicken weniger 100 nm zu einer nahezu vollständigen Absorption des einstrahlenden Lichts mit Energien oberhalb der jeweiligen Bandlücke ($E_V \geq E_G$) kommt.⁵⁷

Niedrige Exzitonen-Bindungsenergie: Für viele organische Halbleiter ist die Exzitonen-Bindungsenergie sehr hoch, wodurch die für eine Extraktion notwendige Trennung der Ladungsträgerpaare eine große Herausforderung darstellt. Für die organisch-anorganischen Perowskite liegt die Bindungsenergie bei $< 25 \text{ meV}$ und ist somit geringer als die kinetische Energie der Ladungsträger bei Raumtemperatur.⁵⁸ Es kommt zur spontanen Dissoziation der Exzitonen zu freien Ladungsträgern, was eine einfache und effiziente Ladungsträgerextraktion ermöglicht.

Hohe Defekttoleranz: Aufgrund der spezifischen Perowskit-Struktur bilden Gitterdefekte wie Leerstellen überwiegend Band-nahe Defektzustände.⁵⁹ Da die Rekombinationsrate von Ladungsträger mittels Defektzuständen innerhalb der Bandlücke (SRH-Rekombination) deutlich mit der Entfernung zur Bandlückenmitte abnimmt, sind nicht-strahlende Rekombinationsverluste aufgrund von Gitterdefekten im Perowskit-Absorber gering.³⁵

Lange Ladungsträgerlebensdauer: Neben der Dissoziation der Ladungsträger ist der Transport zu den selektiven Ladungsträgerschichten essenziell für eine hohe Extraktionswahrscheinlichkeit und effiziente Solarzellen. Dabei weisen die Ladungsträger von Perowskit-Halbleiterschichten eine lange Lebensdauer von teilweise mehr als $1 \mu\text{s}$ bis zu einer möglichen strahlenden oder nicht-strahlenden Rekombination auf.⁶⁰ In Kombination mit ausreichender Beweglichkeit der Ladungsträger sowie den nur dünnen notwendigen Schichtdicken ergibt sich eine hohe Diffusionslänge und exzellente Extraktionswahrscheinlichkeiten.

Niedrige Kristallisationstemperatur: Blei-Halogenid-Perowskite kristallisieren bereits bei etwa 100°C bis 150°C und bilden so bei sehr niedrigen Herstellungstemperaturen einen photoaktiven Halbleiter.⁶¹ Die Herstellung ist damit deutlich energiesparender im Vergleich zu etablierten Photovoltaiktechnologien wie bspw. der Siliziumherstellung bei über 1400°C , woraus ebenfalls Kostenvorteile entstehen.⁶²

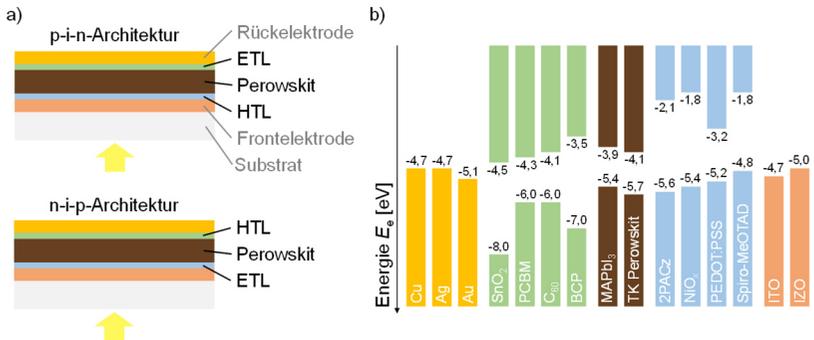


Abbildung 2.8. Varianten der Schichtstapelarchitektur von Perowskit-basierten Solarzellen und Übersicht über häufig eingesetzte Materialien und deren physikalischen Eigenschaften. (a) Darstellung der p-i-n-Architektur (oben, Standardarchitektur) und der n-i-p-Architektur (unten, invertierte Architektur). (b) Darstellung der Banddiagramme häufig eingesetzter ETLs (grün), Perowskit-Halbleiterschichten (braun) und HTLs (blau), sowie der relevanten Austrittsarbeiten verwendeter metallischer Rückkontaktschichten (gelb) und transparenter leitfähiger Oxidschichten als Frontkontaktschichten (orange).^{63–66}

Lösungsbasierte Schichtherstellung: Neben dampfbasierter Depositionsverfahren ist wegen der niedrigen Kristallisationstemperaturen ebenfalls die lösungsbasierte Schichtherstellung möglich.⁶⁷ Dabei werden Salze stöchiometrisch zur angestrebten Perowskit-Verbindung in einem Lösemittelsystem gelöst, mittels lösungsbasierter Depositionsverfahren auf dem Substrat aufgebracht und für die Kristallisierung das Lösemittel entfernt. Die lösungsbasierten Herstellungsrouten verringern den notwendigen Investitionsbedarf für Herstellungsmaschinen und weisen Potential für höheren Produktionsdurchsatz auf.

Die Herstellung funktionaler Perowskit-basierter Solarzellen gelingt nach Kapitel 2.1.1 durch Kombination des intrinsischen Halbleiters mit zwei Elektron- und Lochselektiven Ladungsträgertransportschichten sowie zwei Elektrodenschichten. Die p-i-n-Schichtstapelarchitektur sowie die (invertierte) n-i-p-Schichtstapelarchitektur sind in **Abbildung 2.8a** dargestellt, wobei die Bezeichnung von der Position des ETLs (n) und des HTLs (p) im Schichtstapel gegenüber der lichteinstrahlenden Seite (Frontseite) abhängig ist. Sowohl für ETLs als auch HTLs können dabei zahlreiche verschiedene Materialien und zum Teil deren Kombination eingesetzt werden, wobei für eine effiziente Ladungsträgerextraktion insbesondere deren Bandstruktur (siehe **Abbildung 2.8b**) und selektiven Leitfähigkeiten relevant sind. Ebenso werden verschiedene opake metallische Rückelektroden und transparente oxid-basierte Frontelektroden eingesetzt. Für Letztere spielt dabei neben der Leitfähigkeit und Kosten insbesondere das Transmissionsspektrum eine essenzielle Rolle. Hierbei wurden bisher Passivierungs- und Schutzschichten

außenvorgelassen, die aber häufig eingesetzt werden, um Oberflächen- bzw. Grenzflächendefekte zu verringern, sowie schädigende Einflüsse nachfolgender Schichtherstellungsprozesse auf bereits vorhandene Schichten (z.B. Sputterschäden) zu vermeiden.^{54,68} Unabhängig von der spezifischen Schichtstapelarchitektur können Perowskit-basierte Solarzellen je nach eingestellter Bandlücke bei ausschließlicher Betrachtung thermischer und optischer Verluste theoretisch Wirkungsgrade von über 30% erreichen.⁶⁹ Diese Grenze wird auch als Detailed Balance Limit bezeichnet.⁷⁰ Angetrieben von den zuvor genannten exzellenten optoelektronischen Eigenschaften sowie den fertigungs- und applikationsbezogenen Potentialen der Technologie wurde dabei in weniger als 2 Jahrzehnten dank intensiver Forschung der erreichte Rekordwirkungsgrad von anfänglichen 2% auf über 26% gesteigert.^{46,71}

Trotz der vielversprechenden Fortschritte der Forschung stehen dem Einsatz Perowskit-basierter Photovoltaik noch immer zahlreiche Herausforderungen entgegen. Eine wesentliche Hürde ist die Skalierbarkeit der Fläche, da bisherige Wirkungsgradrekorde fast ausschließlich für Solarzellen mit einer Fläche von weniger als einem Quadratzentimeter erreicht wurden.⁷² Im Gegensatz dazu liegt der Bedarf der Industrie bei Quadratmeter-Modulen. Die Aufskalierung führt dabei zu komplexen Anforderungen bezüglich der Verschaltung von Zellstreifen zu Modulen⁷³ sowie der Auswahl geeigneter Verfahren zur Herstellung großflächiger defektfreier Schichten. Während diesbezüglich bei lösungsbasierten Fertigungsverfahren für die Aufskalierung der Fläche inhomogene und problematische Prozessbedingungen auftreten,⁷⁴ weisen dampfbasierte Fertigungsverfahren deutlich niedrigere Durchsätze auf.⁶⁷ Eine weitere entscheidende Herausforderung betrifft die Stabilität der PV-Bauteile, da heutzutage Lebensdauern von mehreren Jahrzehnten gefordert werden. Während Perowskit-Absorber intrinsisch sowie durch Kombination mit anderen funktionalen Schichten anfällig für Degradation durch Sauerstoff, Feuchtigkeits-, Wärme- und UV-Einfluss sind und auch chemische Diffusionsprozesse schädigende Wirkung zeigen,⁴⁸ sind zur Bewältigung dieser Probleme präzise Mitigationsstrategien und optimierte Verkapselungsverfahren erforderlich. Zusätzlich stehen die Umweltbilanz und Toxizität im Fokus der Forschung, da sowohl Blei im Absorber als auch verschiedene Edelmetalle, Oxide und Lösungsmittel im Schichtstapel oder bei der Herstellung verwendet werden. Hinsichtlich Blei wird nach Alternativen gesucht, wobei der Einsatz des bisher einzigen Ersatzmaterials, Zinn, aufgrund chemischer Stabilitätsprobleme und ebenfalls vorhandener ökologischer Bedenken problematisch ist.⁶⁴ Eine andere Strategie besteht darin, das Auswaschen des Bleis, das aufgrund der hohen Wasserlöslichkeit eine wesentliche Gefahr darstellt, durch chemisches Binden der Blei-Ionen^{75,76} oder durch Verkapselungsstrategien zu verhindern.⁷⁷ Hinsichtlich der Umweltbilanz wird zudem angestrebt, die

verwendeten Schichten bezüglich ihrer Lebenszyklusbewertung zu optimieren, um möglichst nachhaltige, ressourcenschonende Module mit geringer Toxizität herzustellen.^{78,79}

Während in diesem Abschnitt der Arbeit explizit auf die unterschiedlichen Bedeutungen des Begriffs *Perowskit* eingegangen wurde, wird im vorherigen sowie weiteren Verlauf dieser Arbeit der Begriff als Synonym für Blei- und Zinn-Halogenid-Perowskite verwendet.

2.1.4 Monolithische Verschaltungen von Dünnschichtphotovoltaik

Während die klassische Silizium-Photovoltaik als Wafer-basierte Technologie bei der Herstellung von Solarzellen auf die Maße der produzierten Ingots beschränkt ist, erlauben die vakuumbasierten und z.T. lösungsbasierten Beschichtungsverfahren von Dünnschichtphotovoltaik die Herstellung deutlich größerer Flächen. Würden diese mehrere Quadratmeter großen Flächen als eine einzige Solarzelle gefertigt, resultierten sehr große Ströme ($J_{SC} \cdot A$). Wie bereits in Kapitel 2.1.2 erläutert, weist eine Solarzelle zugleich einen nicht vernachlässigbaren Serienwiderstand auf. Einen wesentlichen Anteil trägt dazu der ohmsche Widerstand der transparenten leitfähigen Frontelektrode bei, für welche ein Kompromiss zwischen den voneinander abhängigen Materialkenngrößen der Leitfähigkeit und des Transmissionsgrads notwendig ist, wobei das Steigern der einen grundsätzlich die Abnahme der anderen zu Folge hat.^{80,81} Der Serienwiderstand der Elektroden in Kombination mit dem großen Strom einer solchen Solarzelle würde in einer derart großen Verlustleistung resultieren, dass eine wirtschaftliche Nutzung ausgeschlossen wäre.

Zur Minimierung der Verlustleistung aufgrund elektrischer Widerstände hat sich das Prinzip der monolithischen seriellen Verschaltung für Dünnschichtphotovoltaik etabliert.^{82–85} Durch die gezielte Einbringung von Strukturierungslinien wird die Solarzelle in zahlreiche kleinere Solarzellenstreifen (siehe **Abbildung 2.9a**) unterteilt und zudem eine Verschaltung in Serie zu einem Modul hergestellt, wodurch sich der Strom sowie die Verlustleistung deutlich reduzieren. Die Herstellung der Verschaltung wird aufgrund prozesstechnischer Vorteile in den Herstellungsprozess des Schichtstapels integriert und umfasst die drei Strukturierungsprozesse bzw. -linien P1, P2 und P3 (siehe **Abbildung 2.9b**). Die Unterteilung der Front- (P1) und Rückelektrode (P3) sowie das Kontaktieren der Rückelektrode des einen Solarzellenstreifens (P2) mit der Frontelektrode der nächsten hat dabei neben der seriellen Verschaltung ebenfalls das Entstehen einer photovoltaisch inaktiven Fläche mit der Breite w_i zur Folge. Der Strom des Moduls ergibt sich durch die serielle Verschaltung nun zu dem Strom der noch aktiven

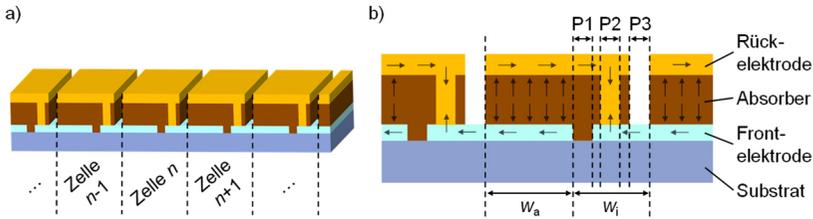


Abbildung 2.9. Schematische Darstellung von monolithisch verschalteter Dünnschicht-Photovoltaik in Superstrat-Konfiguration (Substrat auf Licht zugewandter Seite). (a) Ausschnitt eines Dünnschicht-Photovoltaik-Moduls mit mehreren Zellstreifen, die monolithisch durch die Integration von Verschaltungslinien in Serie verschaltet sind. (b) Detaildarstellung eines Zellstreifens und der integrierten monolithischen Verschaltung. Die zur Verschaltung notwendigen Strukturierungslinien P1, P2 und P3 resultieren zugleich in einer photovoltaisch inaktiven Fläche mit der Breite w_i . Die verbleibende photovoltaisch aktive Fläche des Zellstreifens hat die Breite w_a . Abbildung angelehnt an Turan *et al.*⁸²

Fläche eines Solarzellenstreifens mit der Breite w_a , während die Spannung für alle Solarzellenstreifen n aufzuaddieren ist. Das Verhältnis aus aktiver zu gesamter Solarzellenbreite ergibt den geometrischen Füllfaktor und ist wesentliche Kenngröße für die Indikation der Qualität der Verschaltung:

$$GFF = \frac{w_a}{w_a + w_i} \quad (2.34)$$

Die Prozessreihenfolge zur Realisierung der seriellen Verschaltung innerhalb der Herstellung des Schichtstapels ist in **Abbildung 2.10** veranschaulicht. Nach der anfänglichen Beschichtung der Frontelektrode auf das Substrat wird die P1 Strukturierungslinie gefertigt, um die Frontelektrode in einzelne Streifen aufzutrennen, die voneinander elektrisch isoliert sind. Nach der anschließenden Herstellung der Absorberschicht sowie ggfs. vorhandener zusätzlicher funktionaler Schichten (Ladungsträgertransport-, Passivierungs-, Schutzschichten) wird die P2 Strukturierungslinie gefertigt, um die Kontaktierung zwischen Rückelektrode des einen Solarzellenstreifens mit der Frontelektrode der nächsten zu ermöglichen. Der Kontakt bildet sich dabei erst mit der anschließenden Abscheidung der Rückelektrode. Zuletzt wird die P3 Strukturierungslinie gefertigt, um auch die Rückelektrode in voneinander elektrisch isolierte Solarzellenstreifen zu unterteilen und die serielle Verschaltung der Solarzellenstreifen fertigzustellen. Um Kurzschlussstrompfade und damit verbundene Verluste im späteren Modul zu vermeiden, sind sehr hohe elektrische Widerstände zwischen den einzelnen Front- sowie Rückelektrodenstreifen notwendig. Dagegen ist ein niedriger Kontaktwiderstand zwischen den beiden Elektroden essenziell, um Verluste aufgrund von Serienwiderständen im Modul zu vermeiden.

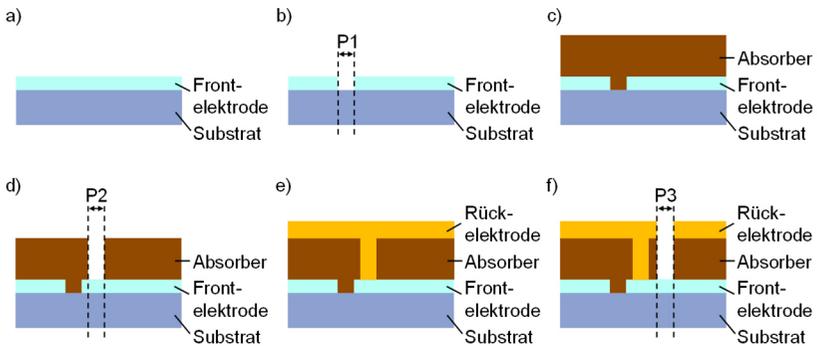


Abbildung 2.10. Schematische Darstellung des Herstellungsprozesses monolithisch verschalteter Dünnschicht-Photovoltaik in Superstrat-Konfiguration durch Integration der Verschaltungslinien P1-P3. Dabei wechseln sich die Herstellung funktionaler Schichten in (a), (c) und (e) mit der Strukturierung der Verschaltungslinien P1 in (b), P2 in (d) und P3 in (f) ab. Abbildung angelehnt an Turan *et al.*⁸²

Die Verschaltung ist unter Einhaltung der Zielgrößen der elektrischen Widerstände mit möglichst geringer Verschaltungsbreite ($\triangleq w_i$) herzustellen, sodass die Strukturierungslinien P1, P2 und P3 jeweils mit möglichst geringer Breite sowie in minimalem Abstand zueinander gefertigt werden sollten. Für Silizium-Dünnschicht-Photovoltaik stellt dabei die Strukturierung mittels Laser den Industriestandard dar, da die Laserstrukturierung große Präzision und Geschwindigkeit ermöglicht, kontaktlos operiert und geringe Wartungskosten aufweist.^{84–86} Für CIGS- und CdTe-Dünnschicht-Photovoltaik wird hingegen noch immer mechanisches Ritzen mit Nadeln verwendet, um das Aufschmelzen durch den Wärmeeintrag der Laserpulse und der resultierenden Bildung von Kurzschlussstrompfaden zu vermeiden.^{87–89}

2.1.5 Kalkulation der Aufskalierungsverluste

Die Aufskalierung der Dünnschichtphotovoltaik und insbesondere der Perowskit-Photovoltaik umfasst die Vergrößerung der beschichteten Flächen einschließlich der Säuberung der Substrate, der Vorkonditionierung der Oberflächen, der lösungs- oder dampfbasierten Abscheidung von Material, der Trocknung und Ausheizung sowie der bereits beschriebenen Integration der monolithischen Verschaltung. Für die Mehrheit dieser Prozesse sind die dabei auftretenden Aufskalierungsverluste lediglich statistisch abschätzbar und mittels experimentellem Vergleich mit Ergebnissen für kleinere Flächen zu bestimmen. Dagegen können die zu erwartenden Aufskalierungsverluste durch Integration der monolithischen Verschaltung mithilfe weniger Prozess- und Materialparameter kalkuliert werden.

Da diese Verluste zudem von der Geometrie der Zellstreifen und der Verschaltung abhängig sind, kann damit das Modul layout hinsichtlich minimaler Aufskalierungsverluste optimiert werden.

Die unterschiedlichen Aufskalierungsverluste sollen im Folgenden aufgezeigt werden. Dabei ist ein Aufskalierungsverlust grundsätzlich als das Verhältnis der jeweiligen Verlustleistung P_V zu der maximalen Ausgangsleistung P_{Max} einer Solarzelle (siehe Gleichung 2.28) definiert:

$$f = \frac{P_V}{P_{\text{MAX}}} = \frac{P_V}{V_{\text{MPP}}J_{\text{MPP}}A} \quad (2.35)$$

Inaktive Fläche: Ein offensichtlicher Verlustmechanismus bei der Integration der monolithischen Verschaltung ist die Verringerung photovoltaisch aktiver Solarzellenfläche im Bereich der Verschaltungslinien P1-P3. Für einen Solarzellenstreifen der Länge l entspricht gemäß **Abbildung 2.9b** die eingeführte inaktive Fläche $A_i = w_i \cdot l$, die aktive Fläche $A_a = w_a \cdot l$ und die Gesamtfläche $A_T = (w_i + w_a) \cdot l$. Für die Verlustleistung der inaktiven Fläche P_i gilt:

$$P_i = V_{\text{MPP}}J_{\text{MPP}}w_i l \quad (2.36)$$

Daraus folgt für die Aufskalierungsverluste aufgrund der Integration der Verschaltung und der einhergehenden eingeführten inaktiven Fläche:

$$f_i = \frac{P_i}{P_{\text{MAX}}} = \frac{V_{\text{MPP}}J_{\text{MPP}}w_i l}{V_{\text{MPP}}J_{\text{MPP}}(w_i + w_a)l} = \frac{w_i}{w_i + w_a} = 1 - GFF \quad (2.37)$$

Weiterhin sind Aufskalierungsverluste aufgrund ohmscher Widerstände aufzuführen, deren Größe unter anderem von den Eigenschaften der monolithischen Verschaltung abhängig ist. Für Verlustleistungen P_Ω aufgrund elektrischer Widerstände R gilt grundsätzlich:

$$P_\Omega = RI^2 = R(J_{\text{MPP}}w_a l)^2 \quad (2.38)$$

Schichtwiderstand: Sowohl die Front- als auch die Rückelektrodenstreifen weisen ohmsche Schichtwiderstände auf. Aufgrund der für opake Solarzellen deutlich geringeren Leitfähigkeit der transparenten leitfähigen Oxidschicht der Frontelektrode gegenüber der metallischen Rückelektrode wird an dieser Stelle nur auf die Aufskalierungsverluste der Frontelektrode eingegangen. Für semitransparente Solarzellen mit front- und rückseitiger Verwendung der TCOs ist es dagegen notwendig, auch die Aufskalierungsverluste der Rückelektrode zu bestimmen. Da nicht der gesamte Strom des Solarzellenstreifens durch die gesamte Breite der Frontelektrodenstreifen fließt, ist es für die Bestimmung der Verlustleistung notwendig, Strom und Widerstand über die Breite des Solarzellenstreifens zu integrieren. Es soll dabei der Spannungsabfall über die

Frontelektrode als vernachlässigbar klein angenommen und damit J_{MPP} als konstant und ortsunabhängig innerhalb der aktiven Solarzellenfläche betrachtet werden. Dies ist für geringe Zellbreiten sowie ausreichend hohe Leitfähigkeiten eine angemessene Näherung. Für den bis zum Abstand x von der Kante der Verschaltungslinie des Solarzellenstreifens kumulierten Strom mit $0 \leq x \leq w_a$ gilt:

$$I_{FE}(x) = J_{MPP}A(x) = J_{MPP}lx \quad (2.39)$$

Ebenso ist der Schichtwiderstand der Frontelektrode R_{FE}^{\square} als konstant anzunehmen. Der elektrische Widerstand eines infinitesimalen Abschnitts des Solarzellenstreifens dx entspricht somit:

$$R_{FE} = \frac{R_{FE}^{\square}}{l} dx \quad (2.40)$$

Die Verlustleistung des ohmschen Widerstands der Frontelektrode P_{FE} ergibt sich durch Integration über die Solarzellenbreite zu:

$$P_{FE} = \int_0^{w_a} (J_{MPP}lx)^2 \frac{R_{FE}^{\square}}{l} dx = \frac{R_{FE}^{\square}}{3} J_{MPP}^2 w_a^3 l \quad (2.41)$$

Durch Einsetzen in die Gleichung 2.35 resultiert für den entsprechenden Aufskalierungsverlust:

$$f_{FE} = \frac{R_{FE}^{\square} J_{MPP}}{3 V_{MPP} w_i + w_a} \frac{w_a^3}{w_i} \quad (2.42)$$

Aus dem geometrischen Term wird insbesondere unter der Annahme einer vernachlässigbar kleinen Verschaltungsbreite w_i deutlich, dass der Aufskalierungsverlust quadratisch mit der Zellbreite ansteigt. Dieser Zusammenhang bildet den wesentlichen Grund für die starke Einschränkung der maximalen Breiten der Solarzellenstreifen effizienter Dünnschichtmodule.

Kontaktwiderstand: Ein weiterer wesentlicher Verlustmechanismus bei der Integration der monolithischen Verschaltung stellt der Kontaktwiderstand R_{P2} zwischen Front- und Rückelektrode in der P2 Strukturierungslinie dar. Für die Verlustleistung P_{P2} des Kontaktwiderstands gilt:

$$P_{P2} = I^2 R_{P2} \quad (2.43)$$

Da für Dünnschichtphotovoltaik die Schichtdicke der Elektroden typischerweise deutlich geringer als die Breite der P2-Strukturierungslinie w_{P2} ist, kann es zu einem im Folgenden als Stromdrängung (englisch *Current Crowding*) bezeichneten Phänomen über die Breite des Kontakts kommen. Nach der Transferlängen-Theorie ergibt sich deshalb für den Kontaktwiderstand R_{P2} :

$$R_{P2} = \frac{R_{FE}^{\square}}{l} L_T \coth \frac{w_{P2}}{L_T} = \frac{\sqrt{R_{P2}^* R_{FE}^{\square}}}{l} \coth \frac{w_{P2}}{L_T} \quad (2.44)$$

Dabei entspricht L_T der Transferlänge, bis zu der 63% des Stroms von der einen in die andere Elektrode geflossen ist, w_{P2} der Breite der Verschaltungslinie P2 und R_{P2}^* dem flächenspezifischen Kontaktwiderstand. Die Bestimmung von L_T und R_{P2}^* ist durch die zugehörige Transferlängen-Methode (englisch *Transfer Line Method*) durchzuführen, welche detailliert in Kapitel 3.2.2.5 beschrieben wird.

Weiterhin gilt somit für die Verlustleistung P_{P2} :

$$P_{P2} = J_{MPP}^2 w_a^2 l R_{P2}^{\square} L_T \coth \frac{w_{P2}}{L_T} \quad (2.45)$$

Daraus folgt für den Aufskalierungsverlust f_{P2} des Kontaktwiderstands R_{P2} :

$$f_{P2} = \frac{J_{MPP}}{V_{MPP}} \frac{w_a^2}{w_i + w_a} R_{FE}^{\square} L_T \coth \frac{w_{P2}}{L_T} \quad (2.46)$$

Während der Verlust in diesem Fall lediglich linear mit der Solarzellenbreite ansteigt, führt der Effekt der Stromdrängung durch den Hyperbelkotangens-Term für eine Abnahme der w_{P2} mit $w_{P2} < L_T$ zu einer deutlich schnelleren Zunahme des Kontaktwiderstands gegenüber des ansonsten üblichen Anstiegs aufgrund einer geringeren Querschnittsfläche. Entsprechend sollte zum Einen eine hohe Qualität des Kontakts mit niedrigem R_{FE}^{\square} sowie kurzer L_T sichergestellt werden und zum Anderen für die Verschaltungslinie P2 stets eine ausreichende Breite gewählt werden.

Kurzschlussstrompfade: Grundsätzlich können auch Verluste aufgrund von Leckströmen zwischen den unterteilten Frontelektrodenstreifen (in Superstratkonfiguration) oder Rückelektrodenstreifen (in Substratkonfiguration) aufgrund zu geringer Parallelwiderstände R_{P1} und R_{P3} auftreten. Der Aufskalierungsverlust ergibt sich beispielhaft für R_{P1} dabei zu:

$$f_{P1} = \frac{V_{MPP}}{J_{MPP}} \frac{1}{R_{P1} l w_a} \quad (2.47)$$

Für die erfolgreiche Herstellung defektfreier, durchgängig isolierender Strukturierungslinien mit mehreren μm Breite und einem dazwischen liegenden intrinsischen Absorber mit geringer Leitfähigkeit sind diese Verluste gegenüber der anderen vernachlässigbar ($f_{P1} \rightarrow 0$).⁸²

Gesamtverluste: Die Integration einer monolithischen Verschaltung resultieren somit in den Aufskalierungsverlusten f_{MV} , wobei gilt:

$$f_{MV} = f_i + f_{FE} + f_{P2} \quad (2.48)$$

Wie zu Beginn des Kapitels beschrieben, kommen zu diesen kalkulierbaren Anteilen die Aufskalierungsverluste der anderen Fertigungsprozesse und den daraus resultierenden, statistisch ansteigenden Materialinhomogenitäten, Schichtdickenunterschieden, Defekten, Fertigungstoleranzen und Prozessschwankungen hinzu. Da viele dieser Verlustmechanismen mit der Fläche ansteigen, ist es zur Beurteilung der Qualität einer Aufskalierungsstrategie einschließlich aller Fertigungsprozesse n sinnvoll, nicht nur die Gesamtaufskalierungsverluste f_T ($f_T = \sum_{j=1}^n f_j$) sondern ebenfalls die Aufskalierungsverluste pro Größenordnung (Dekade) der aufskalierten Fläche zu betrachten:

$$f_T^* = \frac{f_T}{\log \frac{A_2}{A_1}} \quad | A_2 > A_1 \quad (2.49)$$

2.1.6 Tandem-Photovoltaik

Die bisher diskutierten konventionellen Ein-Übergangs-Solarzellen sind durch fundamentale Verlustmechanismen, welche sich aus der Bandstruktur des Halbleiters und dem Extraktionsprozess der Ladungsträger ergeben, in ihrem maximalen Wirkungsgrad stark begrenzt. Zum Einen werden Photonen mit einer Energie kleiner der Bandlückenenergie des Absorbers ($E_V < E_G$) transmittiert und tragen somit nicht zur Energiegewinnung bei. Zum Anderen werden Photonen mit einer größeren Energie ($E_V > E_G$) zwar absorbiert, die überschüssige Energie der Photonen gegenüber der Bandlückenenergie (ΔE) geht jedoch durch Thermalisierung verloren.³⁵ Aus diesen Transmissions- und Thermalisierungsverlusten und unter Berücksichtigung der strahlenden Rekombination ergibt sich das Detailed Balance Limit einer Ein-Übergangs-Solarzelle, also deren maximal erreichbarer Wirkungsgrad, bei Illumination mit dem Strahlungsspektrum AM1.5G zu $\approx 33\%$ ($E_G \approx 1,4$ eV).⁶⁹

Dieses fundamentale Wirkungsgradlimit kann durch sogenannte Mehr-Übergangs-Solarzellen überschritten werden, indem 1) durch Verwendung eines Absorbers mit geringerer Bandlücke das Absorptionsspektrum größer wird und Transmissionsverluste verringert werden und 2) zusätzliche Absorber größerer Bandlücke genutzt werden, um die Thermalisierungsverluste der energiereicheren Photonen zu verringern. Die einfachste Variante einer solchen Mehr-Übergangs-Solarzelle ist die Tandem-Solarzelle mit zwei übereinanderliegenden Absorbern, wie sie in **Abbildung 2.11a** verschaulicht ist. Dabei wird der Absorber mit großer Bandlücke als WBG Absorber (englisch *Wide Bandgap*) und der Absorber mit kleinerer Bandlücke als NBG Absorber (englisch *Narrow Bandgap*) bezeichnet. Eine schematische Darstellung der Energieskalen der Bandlücken beider Absorber ist in

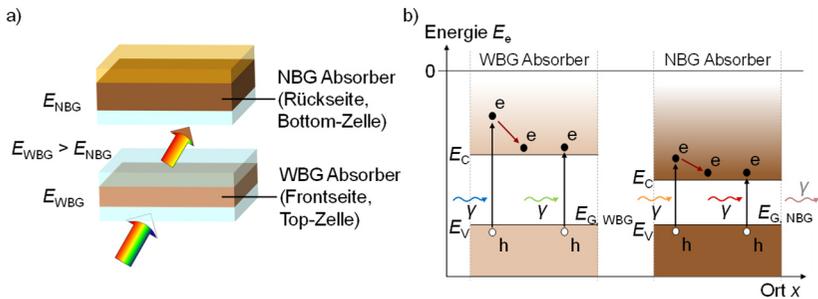


Abbildung 2.11. Funktionsprinzip von Tandem-Photovoltaik. (a) Schematische Darstellung der Tandem-PV-Konfiguration bestehend aus einer semitransparenten Top-Zelle mit Absorber größerer Bandlücke E_{WBG} auf der Licht zugewandten Frontseite und einer darunterliegenden opaken Bottom-Zelle mit Absorber kleinerer Bandlücke E_{NBG} . (b) Schematische Darstellung der Energieskala beider Absorber. Die Absorption der energiereicheren Photonen mit $E_\gamma \geq E_{WBG}$ geschieht im WBG Absorber, während transmittierte Photonen mit $E_{WBG} \geq E_\gamma \geq E_{NBG}$ im NBG Absorber absorbiert werden. In beiden Absorbern geht der Energieanteil absorbiert Photonen überhalb der jeweiligen Bandlückenenergie durch Thermalisierung der angeregten Elektronen verloren.

Abbildung 2.11b und zeigt die Absorption der Photonen höherer Energie im WBG Absorber ($E_\gamma > E_{G,WBG}$), die Absorption der Photonen niedrigerer Energie im NBG Absorber ($E_\gamma > E_{G,NBG}$) sowie Transmissions- und Thermalisierungsverluste. Zur Verdeutlichung der Verhältnisse von Absorptions- zu Verlustanteilen sind diese für eine Tandem-Solarzelle mit zwei idealen Absorbern und geeigneter Bandlücken ($E_{G,WBG} \approx 1,7 \text{ eV}$, $E_{G,NBG} \approx 1,1 \text{ eV}$) im AM1.5G-Strahlungsspektrum in **Abbildung 2.12** visualisiert. Die Tandem-Solarzelle ermöglicht somit ein breiteres Absorptionsspektrum sowie die Extraktion von Ladungsträgern mit größerer Energien und erhöht so das theoretische Wirkungsgradlimit in Abhängigkeit der gewählten Bandlücken auf bis zu $\approx 46\%$ ($E_{G,WBG} \approx 1,7 \text{ eV}$, $E_{G,NBG} \approx 1,0 \text{ eV}$).^{90,91}

Die technische Umsetzung der Tandem-Solarzelle durch das Stapeln der Absorber und deren Integration in einem gesamtheitlichen Bauteil kann in unterschiedlichen Bauformen realisiert werden. Im Folgenden soll auf die zwei etablierten Bauformen der sogenannten 4-Terminal und 2-Terminal Tandem-Solarzellen (Terminal \triangleq elektrischer Kontakt) eingegangen werden. Aus der Perspektive der Bauteilfertigung ist die 4-Terminal Tandem-Solarzelle die einfachste Bauform und entspricht dem mechanischem Stapeln zweier getrennt hergestellter Subsolarzellen mit jeweils zwei Kontakten und deren nachträglichen Verbindung durch ein optisch transparentes, elektrisch isolierendes Medium (siehe **Abbildung 2.13a**). Dabei ist die Subsolarzelle mit WBG Absorber (Top-Zelle) mit transparenter Rückelektrode auszuführen, damit Photonen niedrigerer Energie transmittiert und im NBG

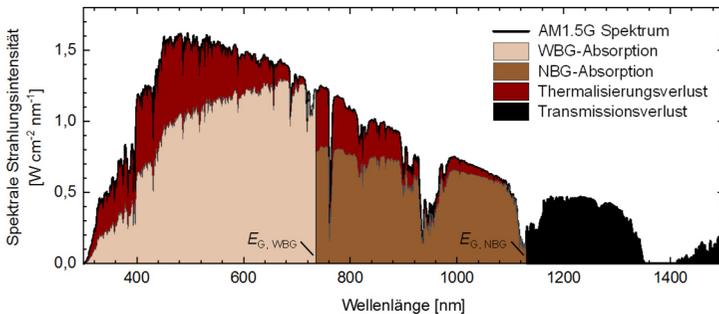


Abbildung 2.12. Normiertes Strahlungsspektrum AM1.5G mit Visualisierung der Absorption einer Tandem-Solarzelle mit idealem WBG Absorber ($E_{G, WBG} \approx 1,7 \text{ eV}$) und idealem NBG Absorber ($E_{G, NBG} \approx 1,1 \text{ eV}$). Der maximal erreichbare Wirkungsgrad wird durch den Thermalisierungsverlust der Energie absorbiert Photonen überhalb der Bandlücke des jeweiligen Absorbers sowie durch die Transmission von Photonen mit zu geringer Energie $E_{\gamma} < E_{G, NBG}$ beschränkt.

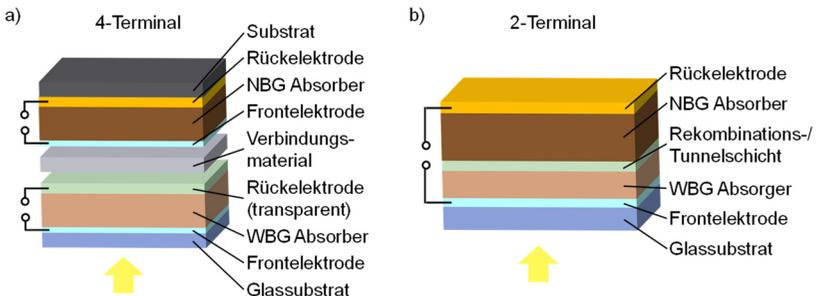


Abbildung 2.13. 4-Terminal- und 2-Terminal-Bauweisen von Tandem-Photovoltaik. (a) Schematische Darstellung einer möglichen Bauelementarchitektur einer mechanisch gestapelten 4-Terminal Tandem-Solarzelle bestehend aus einer semitransparenten Top-Zelle mit WBG Absorber auf der Licht zugewandten Seite und in Superstrat-Konfiguration (unten), einem transparenten isolierenden Verbindungsmaterial, einer Bottom-Zelle mit kleiner Bandlücke in Substrat-Konfiguration (oben) und vier Kontakten (Terminal). (b) Schematische Darstellung einer möglichen Bauelementarchitektur einer monolithischen 2-Terminal Tandem-Solarzelle bestehend aus einem einzigen Substrat in Superstrat-Konfiguration einschließlich WBG Absorber auf der Licht zugewandten Seite (unten), einer Rekombinations- oder Tunnelschicht und einem NBG Absorber (oben) sowie zwei Kontakten.

Absorber (Bottom-Zelle) absorbiert werden. Durch die getrennte Herstellung beider Subsolarzellen weist die Fertigung der Bauteile nur minimale Prozessrestriktionen (z.B. Temperatur, Rauigkeit, Lösemittel) auf. Zugleich ermöglicht die individuelle Kontaktierung den separaten Betrieb beider Subsolarzellen bei der jeweiligen MPP

Bedingung und minimiert so den Einfluss von Änderungen des Strahlungsspektrums durch unterschiedliche Einsatzorte sowie Jahres- oder Tageszeiten auf den Gesamtwirkungsgrad. Diesen Vorteilen stehen jedoch erhöhte parasitäre Absorptionsverluste durch die Notwendigkeit von drei (statt einer) transparenten Elektroden sowie höhere Systemkosten aufgrund der vier elektrischen Anschlüsse und der notwendigen zusätzlichen Komponenten (Stecker, Kabel, Inverter, etc.) entgegen.⁹²

2-Terminal Tandem-Solarzellen vereinen dagegen beide Subsolarzellen in einem integrierten, monolithisch hergestellten Schichtstapel, wie es in **Abbildung 2.13b** veranschaulicht ist. Durch die elektrische Kopplung der Top- mit der Bottom-Zelle durch eine Rekombinations- oder Tunnelschicht entfällt die Notwendigkeit der zwei zusätzlichen transparenten Elektroden sowie elektrischen Kontakte, wodurch Herstellungsschritte, parasitäre Absorptionsverluste und notwendige Systemkomponenten reduziert werden.³⁰ Die elektrische Kopplung und die damit einhergehende Reihenschaltung der Subsolarzellen hat jedoch zur Folge, dass die Subsolarzelle mit kleinerem generiertem Strom, den Strom der anderen limitiert. Während die Subsolarzellen für 2-Terminal Tandem-Solarzellen deshalb so herzustellen sind, dass beide für das AM1.5G-Spektrum etwa gleiche Ströme generieren, kann eine starke Abhängigkeit des Gesamtwirkungsgrads von Änderungen des Strahlungsspektrums nicht vermieden werden.⁹³ Zusätzlich resultiert aus der monolithischen Herstellung eine Vielzahl an Architektur- und Prozessrestriktionen hinsichtlich der Polarität der Subsolarzellen, der Rauigkeit der Oberflächen, der Temperatur der Prozesse und der chemischen Stabilität einzelner Schichten.^{92,94}

2.1.7 Transparente Photovoltaik

Konventionelle opake PV weist praktisch nur eine einzige Funktion, die Energieerzeugung, auf, sodass der Applikationsbereich stark eingeschränkt ist und durch die vollständige Abdunkelung der darunterliegenden Flächen lediglich ungenutzte Freiflächen, Dächer und Fassadenwände für deren Installation in Betracht zu ziehen sind. Im Gegensatz dazu eröffnet die Entwicklung von transparenter PV zahlreiche neue Anwendungsmöglichkeiten, die Erschließung großer weiterer Flächen und die Integration von PV in verschiedenste Technologien. Dabei erlaubt transparente PV die Transmission von Teilen des Lichtspektrums mit reduzierter Intensität, während die anderen Teile des Lichtspektrums weiterhin zur Energieerzeugung beitragen. Diese Funktionsintegration ermöglicht Anwendungen in Glasfassaden, Fenster und Oberlichter, aber auch als sogenannte Agri-PV in der Landwirtschaft oder in Technologien wie Displays von Multimedia-Geräten. Wie aus dieser Funktionsdefinition ersichtlich wird, ist die gebräuchliche Bezeichnung der

transparenten Photovoltaik grundlegend irreführend, da weiterhin Teile des Lichtspektrums absorbiert werden. Der Gebrauch des Wortes *transparent* bezieht sich tatsächlich auf die vollständige Transmission des sichtbaren Lichts, während die nur anteilige Transmission des sichtbaren Lichts generell als *semitransparent* bezeichnet wird. Semitransparente und transparente PV-Bauelemente können dabei durch unterschiedliche technologische Konzepte erreicht werden, welche im Folgenden vorgestellt werden.

(Semi-) Transparente PV kann grundsätzlich in wellenlängenselektive und nicht-wellenlängenselektive Absorption unterteilt werden, je nachdem, ob das Licht bevorzugt im ultravioletten (UV) und/oder nahen infraroten (NIR) Spektralbereich absorbiert und für das sichtbare Spektrum durchgelassen wird oder nicht (siehe **Abbildung 2.14**). Für wellenlängenselektive transparente PV werden organische Moleküle^{95,96} oder Polymere⁹⁷ eingesetzt, um Photonen über verschiedene Energieübergänge wie beispielsweise die Bandlücke eines Halbleiters oder vom höchsten besetzten Molekülorbital (HOMO) zum niedrigsten unbesetzten Molekülorbital (LUMO) zu absorbieren. Auf diese Weise wird ultraviolette und/oder nahinfrarote Strahlung absorbiert, während die Diskontinuität der Elektronenzustände ausgenutzt wird, um die Transmission des sichtbaren Spektrums zu gewährleisten.

Nicht-wellenlängenselektive semitransparente PV wird wiederum in transluzente und semitransparente PV unterteilt (siehe **Abbildung 2.14**). Letztere, die nicht wellenlängenselektive semitransparente PV, basiert auf photoaktiven Materialien, die in einem breiten Wellenlängenbereich einschließlich des sichtbaren Spektrums absorbieren und entweder dünn genug sind oder eine ausreichend große Bandlücke aufweisen, um die Übertragung eines Teils des einfallenden Lichts zu ermöglichen. Da diese Technologie im Gegensatz zu wellenlängenselektiven transparenten PVs im sichtbaren Bereich stark absorbiert, damit möglichst hohe Wirkungsgrade erzielt werden, ist ein direkter Kompromiss zwischen PCE und Transmissionsgrad offensichtlich.

Die nicht-wellenlängenselektive transluzente Photovoltaik basiert auf der räumlichen Segmentierung eines herkömmlichen undurchsichtigen Solarzellenschichtstapels auf einem transparenten Substrat. Durch die Einführung von Lücken zwischen photovoltaisch aktiven Bereichen oder ganzen Solarzellen bietet dieser Ansatz eine nahezu farbneutrale Lichtdurchlässigkeit und ermöglicht gleichzeitig einfache Transparenzvariationen. Da die Einführung transparenter Bereiche den Transmissionsgrad erhöht und folglich die aktive photovoltaische Fläche verringert, ist derselbe Kompromiss zwischen Transmissionsgrad und PCE wie bei der semitransparenten PV offensichtlich.

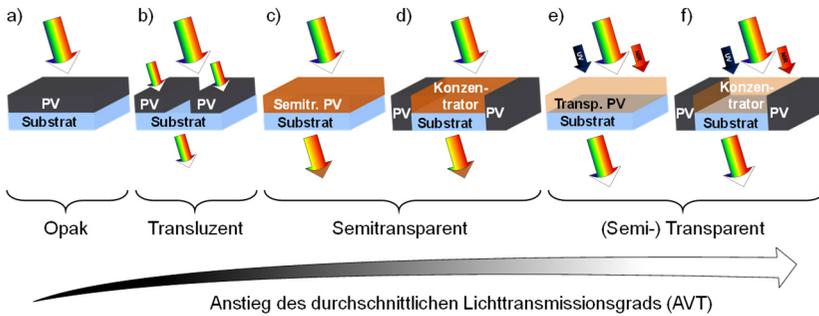


Abbildung 2.14. Grundlegende Photovoltaikkonzepte unterschiedlichen Transmissionsgrades. (a) Konventionelles, lichtundurchlässiges Photovoltaikelement, welches ein breites Wellenlängenspektrum (weißer Pfeil) absorbiert. (b) Transluzentes, teilweise lichtdurchlässiges PV-Element, welches auf transparenten Lücken zwischen aktiven, opaken PV-Flächen basiert. Absorption und Transmission findet in einem breiten Wellenlängenspektrum statt. (c) Semitransparentes (lichtalbdurchlässiges) PV-Element, welches durch Anpassung der Absorberschichtdicke/des Absorptionskoeffizienten das Verhältnis zwischen Absorption und Transmission reguliert. Die Absorption findet wellenlängenunspezifisch statt, was die Farbwiedergabe (brauner Pfeil) bei Transmission beeinflusst. (d) Semitransparentes Konzentrator-PV-Element, welches basierend auf Streuung, oder Absorption und Reemission von Photonen, und anschließender Wellenleitung zu den Substratkanten mit PV-Elementen Licht wellenlängenunspezifisch anteilig absorbiert und transmittiert. (e) Transparentes PV-Element, welches hauptsächlich im UV- und/oder NIR-Bereich absorbiert (wellenlängenspezifisch) und sichtbares Licht farbneutral transmittiert. (f) Transparentes Konzentrator-PV-Element, welche Streuung, oder Absorption und Reemission von Photonen, auf den UV- und/oder NIR-Bereich beschränkt (wellenlängenspezifisch) und sichtbares Licht farbneutral transmittiert. Abbildung angelehnt an Traverse *et al.*⁹⁸

Aufgrund der zusätzlichen Anforderungen an (semi-) transparente und transluzente PV bei der Integration in Gebäudefassaden, Fenster, Agri-PV oder Multimedia-Geräte sind für den Vergleich der Qualität und Leistungsfähigkeit der Bauteile zu den bereits in Kapitel 2.1.2 eingeführten Kenngrößen weitere notwendig. Dabei sind die Eigenschaften des transmittierten Lichts und dessen spektrale Verteilung objektiv festzustellen. Für Anwendungen transparenter Photovoltaiksysteme, insbesondere im Kontext der gebäudeintegrierten Photovoltaik, ist es von essenzieller Bedeutung, welcher Anteil des Lichts transmittiert – also weder absorbiert noch reflektiert – wird. Da das menschliche Auge nur innerhalb eines begrenzten spektralen Bereiches Licht wahrnehmen kann, ist für diese Anwendungen ausschließlich der sichtbare Teil des transmittierten Lichts von Relevanz. Zudem variiert das Helligkeitsempfinden des Menschen in Abhängigkeit von der Wellenlänge, was bei ausreichenden Lichtintensitäten am Tag durch die Funktion der photopischen Reaktion des menschlichen Auges, abgebildet wird. Der

Lichttransmissionsgrad AVT (engl. *Average Visible Transmittance*) ist deshalb als die Integration des Transmissionsspektrums $T(\lambda)$ gegeben, welche mit der photopischen Reaktion des menschlichen Auges $V(\lambda)$ und der Beleuchtungsintensität des Sonnenspektrums für eine 1,5-fache Luftmasse ($AM1.5G$) gewichtet wird.^{98,99} Somit gilt:

$$AVT = \frac{\int T(\lambda) \cdot V(\lambda) \cdot AM1.5G(\lambda) d\lambda}{\int V(\lambda) \cdot AM1.5G(\lambda) d\lambda} \quad (2.50)$$

Eine weitere wichtige Kenngröße ist der Streuanteil der transmittierten sichtbaren Strahlung D_T (engl. *Haze*), die den Anteil des gestreuten transmittierten Lichts $T_D(\lambda)$ gegenüber dem ungestreuten transmittierten Licht $T_S(\lambda)$ beschreibt. Dabei gilt nach Norm ASTM D 1003 transmittiertes Licht für Winkel mit mehr als $2,5^\circ$ Abweichung zur Normalen des einfallenden Lichts als gestreut. Somit gilt für D_T :

$$D_T = \frac{\int T_D(\lambda) d\lambda}{\int T_D(\lambda) + T_S(\lambda) d\lambda} \quad (2.51)$$

Ein hoher Streuanteil von beispielsweise Glasscheiben hat zur Folge, dass die Sicht hindurch als unscharf und verschwommen wahrgenommen wird und ist insbesondere für transparente Fassadenelemente zu vermeiden.

Die spektrale Verteilung des Transmissionsgrads T beziehungsweise des transmittierten Lichts ist ebenfalls ein entscheidender Faktor für die Qualität von transparenter PV. Diese Verteilung bestimmt nicht nur die Farbe des durch das Element transmittierten (Sonnen-)Lichts, sondern auch die Farbwiedergabe der Objekte, die sich hinter dem transparenten Bauelement befinden. Die menschliche Farbwahrnehmung ist dabei ein komplexer Prozess, dessen objektive Quantifizierung nicht trivial ist. Aufgrund dieser Komplexität ist der Thematik der spektralen Verteilung und ihrer Auswirkungen auf die Farbwahrnehmung und -wiedergabe das separate Grundlagenkapitel 2.3 gewidmet. In diesem Kapitel wird zudem die Darstellungsweise eingeführt, die in der vorliegenden Arbeit zur Analyse und Diskussion der Farbwiedergabequalität verwendet wird.

2.2 Grundlagen der Laserstrukturierung

Die Materialbearbeitung mittels Laser hat sich im Laufe der letzten Jahrzehnte als eine sehr vielseitige Fertigungstechnologie etabliert, die die Bearbeitung nahezu jedes beliebigen Werkstoffs – von Metallen über anorganische Halbleiter und Dielektrika bis hin zu organischen Materialien – ermöglicht.¹⁰⁰ So wird die Laserbearbeitung in der Industrie für verschiedenste Anwendungen wie das Schneiden, Gravieren, Schweißen, Wärmebehandeln, Beschichten, Reinigen und Sintern von Werkstoffen eingesetzt.^{101–103} In Bezug auf die PV spielt die Laserbearbeitung bei der Strukturierung von Dünnschichten der Silizium- oder CIGS-basierten Dünnschicht-PV eine entscheidende Rolle,¹⁰⁴ und wird insbesondere für die schnelle, präzise und qualitativ hochwertige Herstellungen von Verschaltungslinien eingesetzt.^{84–86} Die größte Herausforderung besteht dabei darin, eine homogene, defektfreie Strukturierungslinie zu erzeugen, ohne die darunterliegenden Schichten oder angrenzende Materialbereiche zu beeinträchtigen.¹⁰⁵ Um eine solche schädigende Materialveränderung bei der Laserstrukturierung zu minimieren, ist ein tiefgehendes Verständnis der verschiedenen Ablationsmechanismen, die bei der Strukturierung von Dünnschichten auftreten können, sowie die zur Optimierung der Laserstrukturierung notwendigen Parameter unerlässlich, weshalb diese im Folgenden erörtert werden.

2.2.1 Ablationsmechanismen

Die Laserablation beruht grundlegend auf der Interaktion von Laserlicht mit Festkörpern unterschiedlicher Materialien wie Metallen, Halbleitern und Dielektrika.¹⁰¹ Während die Photonen des Laserlichts in Metallen durch freie Elektronen im Leitungsband absorbiert werden, werden in Halbleitern sowie Dielektrika Elektronen aus dem Valenzband ins Leitungsband angeregt.¹⁰⁶ Die Dauer der Anregung entspricht dabei der Pulsdauer des Lasers, wobei in der Praxis sowohl Dauerstrichlaser als auch gepulste Laser mit Pulsdauern im Bereich von Nanosekunden, Pikosekunden¹⁰⁷ bis zu Femtosekunden¹⁰⁸ zum Einsatz kommen.¹⁰⁰ Die eigentliche Entfernung von Material, die Laserablation, beruht dabei auf verschiedenen Ablationsmechanismen, welche durch die absorbierte Energie hervorgerufen werden und stark von Parametern des Lasers (Pulsdauer, Wellenlänge, Energie) sowie des Materialsystems und des Strukturierungsprozesses abhängen.¹⁰⁹ Im Folgenden werden die wesentlichen Ablationsmechanismen für die Bearbeitung von Dünnschichten mittels Laserpulsen im Nanosekundenbereich erörtert, da Laser dieser Pulslängen aufgrund der kostengünstigeren Generierung gegenüber Pikosekunden- und Femtosekundenlasern den Industriestandard darstellen.^{110,111}

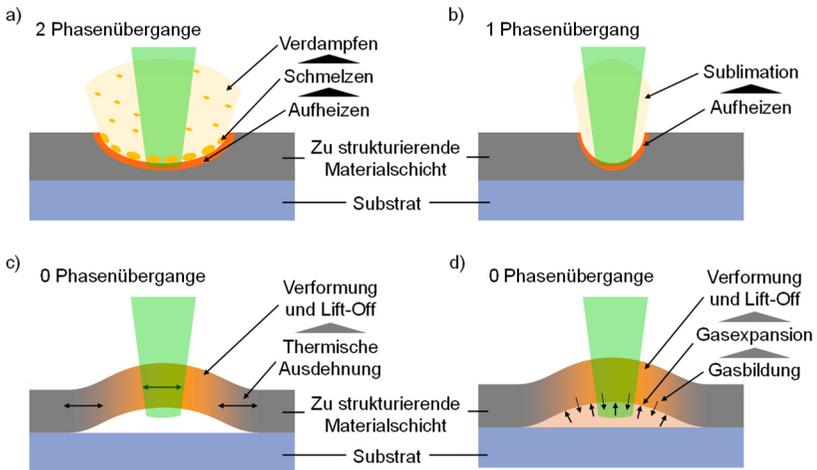


Abbildung 2.15. Schematische Darstellung unterschiedlicher Ablationsmechanismen bei der Laserstrukturierung von Dünnschichten. (a) Klassische Ablation: Anregung, Aufheizen, Schmelzen und Verdampfen der Materialschicht einschließlich Wärmediffusion in umliegendes Material. Die Ablation erfolgt wesentlich durch den vollständigen Phasenübergang in die Gasphase. (b) Ablation durch direktes Verdampfen: Anregung, Aufheizen und Sublimation oder Photodissoziation der Materialschicht mit zum Teil eingeschränkter Wärmediffusion. (c) Ablation durch thermische Ausdehnung: Anregung, Aufheizen und lokale thermische Ausdehnung der Materialschicht. Gradienten der Volumenänderung in der Materialschicht und/oder gegenüber dem Substrat resultieren in einer Verformung und der Ablation durch Materialbeschleunigung, Rissbildung und Bruch (Lift-Off). (d) Ablation durch Gasexpansion: Bildung eines eingeschlossenen Gasvolumens durch Ablationsmechanismus (a) oder (b). Die thermisch bedingte Expansion des Gases resultiert in einer Wölbung und der Ablation durch Materialbeschleunigung, Rissbildung und Bruch (Lift-Off). Die Ablationsmechanismen (c) und (d) weisen für den wesentlichen Teil des ablatierten Materials keinen Phasenübergang auf.

Klassischer Ablationsmechanismus: Die optische Energie der Photonen des Laserpulses wird von Elektronen des Materials absorbiert und in thermische Energie umgewandelt. Diese Wärme führt zum Schmelzen des Materials und bei ausreichender Energiezufuhr zum Verdampfen, wobei der Übergang des Materials in die Dampfphase in der Abtragung des Materials resultiert (siehe **Abbildung 2.15a**). Der beschriebene Ablationsmechanismus tritt überwiegend bei materialeitiger Laserstrukturierung und bei Verwendung längerer Pulsdauern oberhalb einiger Pikosekunden auf und gilt als dominierend für die materialeitige Strukturierung von Perowskit-Dünnschichten mittels ns-Laserpulsen.^{112,113} Aufgrund der thermisch getriebenen Ablation kommt es dabei zu wärmebeeinflussten Randbereichen wie erstarrter Schmelze sowie unterhalb des Schmelzpunktes erhitzter Materialbereiche, die veränderte Materialeigenschaften aufweisen können.

Ablation durch Sublimation: In diesem Fall kommt es durch den Eintrag der Energie der Photonen des Laserpulses und deren Absorption zu der Auflösung von (Gitter-) Bindungen, sodass das Material direkt aus dem Festzustand in die Dampfphase übergeht (siehe **Abbildung 2.15b**). Bei noch größeren eingebrachten Energiedichten kann es auch zum direkten Übergang in die Plasma-Phase kommen.¹¹⁴ Dieser Ablationsmechanismus ist besonders relevant für die materialeitige Laserstrukturierung von Metallen und Dielektrika mit ultrakurzen Pulsdauern im Femtosekundenbereich,¹¹⁵ da es erst nach einigen 100 fs zur Thermalisierung der Elektronen und nach einigen ps zur Thermalisierung des Gitters kommt. Die kurze Pulsdauer und hohe Energiedichte resultieren so in der direkten Auflösung der Gitterbindungen und der Bildung von Gas oder Plasma. Dennoch können auch Nanosekunden-Laserpulse mit kurzen Wellenlängen bei bestimmten organischen Materialien wie einigen Polymeren eine sogenannte Photodissoziation bewirken, die direkt zur Sublimation durch die Auflösung der molekularen Bindungen führt.¹¹⁶ Da die Ablation in diesem Fall nicht thermisch getrieben ist, bleibt in der Regel eine schädigende Wirkung auf angrenzende und darunterliegende Materialien aus.

Ablation durch thermische Ausdehnung: Die von den Photonen übertragene Energie kann thermalisieren und führt zu einer Aufheizung des Festkörpers, die dessen thermische Ausdehnung nach sich zieht. Diese Ausdehnung erzeugt mechanische Spannungen, die, abhängig von den thermischen Eigenschaften des Materials und des Schichtsystems, zu signifikanten mechanischen Belastungen führen können (siehe **Abbildung 2.15c**). Die mechanische Belastung kann dabei verschiedene Ursachen haben, die sich aus den Materialeigenschaften und der Beschaffenheit des Schichtsystems ableiten lassen. Einerseits kann es durch einen hohen optischen Absorptionskoeffizienten des zu strukturierenden Materials zu stark lokalisiertem Aufheizen und damit zu thermischen Gradienten innerhalb der Materialschicht selbst kommen. Andererseits können signifikante Temperaturunterschiede entstehen, wenn sich die optischen Absorptionskoeffizienten der Schicht und des Substrats stark unterscheiden. Bei ähnlichen thermischen Ausdehnungskoeffizienten können sich so erhebliche Scherkräfte aufbauen. Schließlich können aber auch ein gleichmäßiger Wärmeeintrag bei abweichenden Wärmeausdehnungskoeffizienten große mechanische Spannung zwischen Material und Substrat hervorrufen. Bei Überschreitung der mechanischen Festigkeit des Materials kann dies zu Rissen, Bruch und letztlich dem Ablösen des Materials führen. Dieser Ablationsmechanismus tritt beispielsweise für die Laserstrukturierung mittels ns-Laserpulsen der auf transparenten leitfähigen Oxiden basierenden Frontelektroden auf.¹⁰⁵ Aufgrund der mechanisch-getriebenen Entfernung des Materials kommt es für diesen Ablationsmechanismus meist zu deutlich geringerer thermischen

Belastung des angrenzenden und darunterliegenden Material gegenüber der thermisch getriebenen klassischen Ablation.

Ablation durch Gasexpansion: Durch den Eintrag der Energie und dem Aufheizen des Feststoffs kommt es zur Bildung eines eingeschlossenen Gasvolumens an der Grenzfläche zum Substrat. Die Bildung des Gasvolumens kann durch die thermisch bedingte Diffusion von chemischen Bestandteilen oder durch geringfügiges Verdampfen des Feststoffs nach einem der ersten beiden vorgestellten Ablationsmechanismen hervorgerufen werden. Durch die Ansammlung des Gases sowie dessen thermisch bedingte Expansion resultiert eine Verformung in der darüberliegenden, noch größtenteils festen Materialschicht (siehe **Abbildung 2.15d**). Bei der Überschreitung der mechanischen Festigkeit des Materials kommt es zum Aufplatzen der Gasblase und dem Bruch, der Beschleunigung und der Ablation des Materials. Dieser Ablationsmechanismus tritt sowohl für längere (ns) als auch kürzere Pulsdauern (fs) auf und setzt lediglich die Laserstrukturierung einer absorbierenden Materialschicht durch ein transparentes Substrat (substratseitige Laserstrukturierung) voraus, wodurch die höchste Absorption an der Substrat-Material-Grenzfläche auftritt.¹¹³ Wie zuvor kommt es aufgrund der mechanisch getriebenen Ablation in der Regel nur zu geringer thermischer Belastung des angrenzenden Materials. Der Ablationsmechanismus wird auch für die häufig eingesetzte Beschichtsmethode des laserinduzierten Vorwärtstransfers (englisch *Laser Induced Forward Transfer*, LIFT) genutzt.¹¹⁷

Der klassische Ablationsmechanismus, der wie beschrieben auf zwei Phasenübergängen des Materials beruht, weist das niedrigste Verhältnis von abgetragenem Materialvolumen zu eingesetzter Laserleistung und -dauer auf, was auch als Ablationseffizienz bezeichnet wird. Diese geringe Effizienz resultiert aus der hohen Energie, die für die Phasenübergänge in Flüssig- und Dampfphase benötigt wird. Im Gegensatz dazu weisen die beiden zuletzt vorgestellten, mechanisch getriebenen Ablationsmechanismen eine deutlich höhere Energieeffizienz auf, da der gesamte oder überwiegende Teil des Materials keinen Phasenübergang durchläuft.⁸²

2.2.2 Parameter der Laserstrukturierung

Für optimale Ablationsergebnisse ist neben den Ablationsmechanismen auch eine präzise Kenntnis der Parameter der Laserstrukturierung unerlässlich, einschließlich der Energie eines Pulses, seines Durchmessers sowie weiterer relevanter Kenngrößen. Die räumlich und zeitlich aufgelöste Laserintensität I_L eines Pulses mit gaußförmiger Intensitätsverteilung für den Radius r und zum Zeitpunkt t ist wie folgt definiert:¹¹⁸

$$I_L(r, z = 0, t) = I_0 \exp\left(\frac{-2r^2}{\omega_0^2}\right) \exp\left(-4 \ln(2) \frac{t^2}{\tau_p}\right) \quad (2.52)$$

Dabei entspricht I_0 der maximalen Intensität des Lasers, und ω_0 bezeichnet den Radius des Laserstrahls im Fokus, an dem die Intensität auf $1/e^2$ der maximalen Intensität abfällt. Die Pulsdauer τ_p definiert den Zeitraum, in dem die Intensität über der Grenze der Halbwertsbreite (FWHM) verbleibt.

Durch die Integration der Laserintensität über die Zeit lässt sich die Energie pro Fläche des Laserpulses, die als Laserpulsfluenz F bezeichnet wird (siehe **Abbildung 2.16a**), bestimmen:⁸²

$$F(r, z = 0) = \int I(r, z = 0, t) dt = F_p \exp\left(\frac{-2r^2}{\omega_0^2}\right) \quad (2.53)$$

F_p entspricht der Pulsspitzenfluenz. Diese kann durch den Zusammenhang mit der Laserpulsenergie E_p bestimmt werden, wobei E_p dem Flächenintegral von $F(r, z=0)$ entspricht:

$$E_p = \int_0^{2\pi} \int_0^{\infty} F(r, z = 0) d\phi r dr \quad (2.54)$$

Für die Laserpulsenergie E_p ergibt sich aus den Gleichungen 2.53 und 2.54 der Zusammenhang:

$$E_p = \frac{\pi \omega_0^2 F_p}{2}$$

Somit gilt für die Pulsspitzenfluenz:

$$F_p = \frac{2E_p}{\pi \omega_0^2}$$

Die für die Entfernung des Materials mittels einer der zuvor beschriebenen Ablationsmechanismen erforderlichen Energie pro Fläche wird als Ablationsschwelle F_{AS} bezeichnet. Liegt die Laserpulsfluenz $F(r, z=0)$ für einen Teil des Radius r des Laserpulses oberhalb der Ablationsschwelle entsteht ein Ablationskrater mit dem Durchmesser D . Dabei gilt für den Durchmesser des Ablationskraters D für die Laserstrukturierung mittels gaussförmigen Puls und einer konstanten Ablationsschwelle die folgende Beziehung:

$$D^2 = 4\omega_a^2 = 2\omega_0^2 \ln\left(\frac{F_p}{F_{AS}}\right) = 2\omega_0^2 \ln\left(\frac{E_p}{E_{AS}}\right)$$

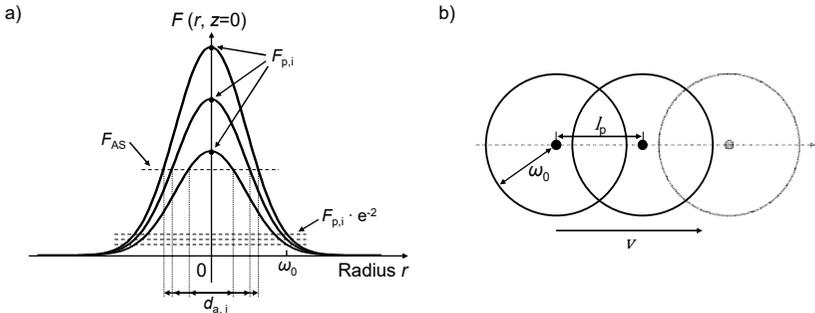


Abbildung 2.16. Visualisierung von wichtigen Parametern der Laserstrukturierung. (a) Schematische Darstellung der Laserpulsflussverteilung $F(r, z=0)$ in Abhängigkeit des Pulsradius r für mehrere gaußförmige Laserpulse unterschiedlicher Pulsspitzenfluenszen $F_{p,i}$. (b) Schematische Darstellung der Überlappung der Durchmesser angrenzender Laserpulse.

Dieser logarithmische Zusammenhang zwischen F_{AS} und D ermöglicht die präzise Bestimmung der Ablationsschwelle durch Extrapolation der Ergebnisse für unterschiedliche Laserpulsfluenszen, bei denen $F_p > F_{AS}$ gilt.¹¹⁹

Für die Laserstrukturierung von Linien mittels Laserpulsen ist die Überlappung der Flächen nachfolgender Pulse entscheidend, um die vom Material effektiv erfahrene Laserintensität korrekt berechnen zu können. Das Überlappungsverhältnis OL (englisch *Overlap*) hängt von der Distanz zwischen den Mittelpunkten benachbarter Pulse l_p und deren Radius ω_0 ab (siehe **Abbildung 2.16b**). Die Distanz l_p ergibt sich dabei aus der Laserstrukturierungsgeschwindigkeit v geteilt durch die Laserpulsrate f . Das Überlappungsverhältnis OL entspricht somit:

$$OL = 1 - \frac{l_p}{2\omega_0} = 1 - \frac{v}{2\omega_0 f}$$

Die Variation der eingesetzten Pulsspitzenfluenszen führen aufgrund der konstanten Ablationsschwelle des Materials und bei gleichbleibendem Laserpulsradius zu einer Änderung des Überlappungsverhältnisses der Ablationskraterdurchmesser. Da für ideale Ergebnisse bei der Laserstrukturierung duktiler metallischer Dünnschichten insbesondere das Überlappungsverhältnis der Ablationskraterdurchmesser entscheidend ist, bedarf es einer separaten Definition dieses Verhältnisses.¹⁰⁵ Das Überlappungsverhältnis angrenzender Ablationskrater OL_a wird deshalb wie folgt definiert:

$$OL_a = 1 - \frac{v}{2\omega_a f}$$

Die eingeführten Parameter der Laserstrukturierung ermöglichen eine umfassende Beschreibung der in dieser Arbeit durchgeführten Laserstrukturierungsprozesse von Dünnschichten. Dies trägt nicht nur zum Verständnis der zugrundeliegenden physikalischen Prozesse bei, sondern ermöglicht auch das Reproduzieren der präsentierten Ergebnisse.

2.3 Grundlagen der Farbwahrnehmung

Farbe spielt eine zentrale Rolle in der Gestaltung von von nahezu allen Objekten des Alltags wie Kleidungsstücken, Dekorationsartikeln, Fahrzeugen sowie bei der Gestaltung von Hausfassaden und Dächern, da der Farbeindruck eine der wichtigsten ästhetischen Eigenschaften darstellt. Dies trifft auch auf die PV, insbesondere auf die gebäudeintegrierte PV, zu, wo neben der effizienten Energiegewinnung auch die ästhetische Akzeptanz durch die Öffentlichkeit essenziell ist. Die Farbwahrnehmung des Menschen ist dabei ein komplexer Prozess, der von der spektralen Zusammensetzung des Lichts, das von einer Oberfläche reflektiert oder durchgelassen wird, sowie von physiologischen und psychologischen Reaktionen des Betrachters abhängt. Die objektive Quantifizierung von Farbe, die für die Entwicklung und Bewertung von BIPV-Elementen entscheidend ist, ist daher nicht trivial. Aus diesem Grund werden im Folgenden die Grundlagen der menschlichen Farbwahrnehmung erörtert und die Vorgehensweise zur Quantifizierung des Farbeindrucks präsentiert.

2.3.1 Farbwahrnehmung des Menschen

Die Farbwahrnehmung des Menschen basiert auf der visuellen Wahrnehmung, die durch die Aufnahme optischer Reize durch verschiedene Sinneszellen des Auges und deren anschließende Interpretation im Gehirn erfolgt.¹²⁰ Dabei wird zwischen dem skotopischen Sehen, welches bei geringer Helligkeit vorherrscht (Nachtsehen) und durch die sogenannten Stäbchen (englisch *Rods*) ermöglicht wird, und dem photopischen Sehen, das nur bei höheren Lichtintensitäten funktioniert (Tagsehen) und durch die sogenannten Zapfen möglich wird, unterschieden.¹²¹ Während das skotopische Sehen lediglich Helligkeitsunterschiede verarbeitet, ermöglicht das photopische Sehen durch die Zapfen auch das Wahrnehmen von Farben.

Die Zapfen des menschlichen Auges sind spezifisch an unterschiedliche Wellenlängen des Lichts angepasst und können in drei Typen unterteilt werden: S-Zapfen (englisch *Short*), M-Zapfen (englisch *Medium*) und L-Zapfen (englisch *Long*). Diese weisen jeweils unterschiedliche Absorptionsspektren mit Absorptionsmaxima bei etwa 420 nm, 534 nm und 564 nm (siehe **Abbildung 2.17a**).¹²² Trifft Licht einer bestimmten Wellenlänge ins Auge, absorbieren die Photorezeptoren dieses Licht entsprechend dessen Wellenlänge unterschiedlich stark. Die dabei erzeugten elektrischen Signale werden vom Gehirn verarbeitet und interpretiert, was die Differenzierung verschiedener Wellenlängen im Bereich des sichtbaren Lichts von etwa 400 bis 700 nm ermöglicht.

Die sogenannten Spektralfarben resultieren aus monochromatischem Licht und werden anhand des entsprechenden elektromagnetischen Spektrums, wie in

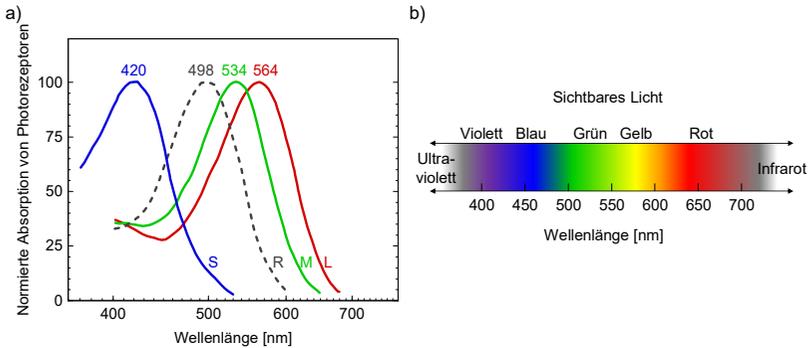


Abbildung 2.17. Licht- und Farbwahrnehmung des Menschen. (a) Normierte Absorptionsspektren der Photorezeptoren des Menschen. Das photopische Sehen erfolgt durch Absorption der Photonen in S-, M- und L-Zapfen, während das skotopische Sehen durch die lichtempfindlicheren Stäbchen (R) ermöglicht wird. Die beim photopischen Sehen auftretenden elektrischen Signale werden im Gehirn als Farbeindruck interpretiert.¹²² (b) Bereich des Spektrums der elektromagnetischen Strahlung der für den Menschen sichtbar ist und ungefähre Zuordnung der wahrgenommenen Farben.¹²³

Abbildung 2.17b dargestellt, definiert. Dagegen entsteht der überwiegende Teil der Farbeindrücke im Alltag durch sogenannte Mischfarben, die einer Überlagerung verschiedener Spektralfarben unterschiedlicher Intensitäten entsprechen. Aufgrund der psychologischen Komponente der Farbwahrnehmung, also der je nach Mensch unterschiedlichen Verarbeitung und Interpretation der elektrischen Signale im Gehirn, kann insbesondere für Mischfarben nicht einfach von dem Lichtspektrum auf den Farbeindruck geschlossen werden. Stattdessen bedarf die Quantifizierung der Farbwahrnehmung des Menschen zunächst einer Standardisierung.

2.3.2 Quantifizierung des Farbeindrucks

Zur Standardisierung der Farbwahrnehmung wurden Experimente mit mehreren normalsichtigen Personen durchgeführt, aus denen drei Funktionen abgeleitet wurden. Diese definieren die gemittelte Empfindlichkeit der drei Zapfentypen (S, M, L) für unterschiedliche Spektralfarben. Basierend auf diesen Experimenten entwickelte die Commission Internationale de l'Éclairage (CIE) 1931 den sogenannten Normalbeobachter (Standard Observer) und führte die \bar{r} -, \bar{g} -, \bar{b} -Farbgleichfunktionen ein.¹²⁴ Da sich diese Funktionen auf die Farben der im Versuch verwendeten Lichtquellen beziehen und auch negative Werte aufweisen, erfolgte eine lineare Transformation in die $\bar{x}(\lambda)$ -, $\bar{y}(\lambda)$ -, $\bar{z}(\lambda)$ -Spektralwertfunktionen (siehe **Abbildung 2.18a**).¹²⁵ Diese Transformation wurde so gewählt, dass $\bar{y}(\lambda)$

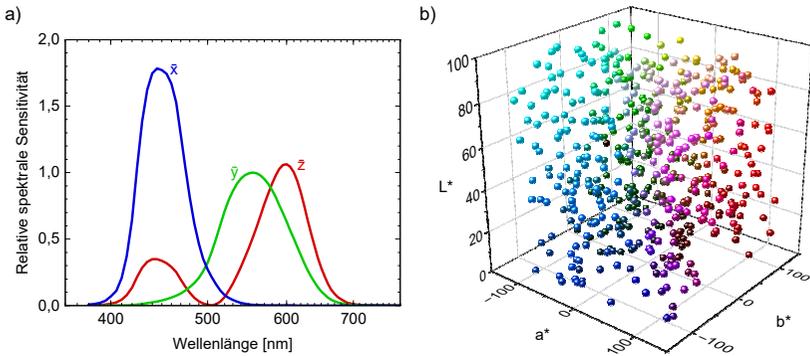


Abbildung 2.18. Etablierte Standardisierung zur Quantifizierung und Darstellung des Farbeindrucks. (a) Resultierende Spektralwertfunktionen des CIE 1931 Normalbeobachters für 2° Sehwinkel. (b) Dreidimensionale Darstellung des CIELAB Farbraums mit 500 zufällig gewählten Tripel an Farbkordinaten L^* , a^* und b^* .

gerade dem Helligkeitsempfinden des Menschen entspricht. Durch die Integration der spektralen Strahlungsintensität S des vom Objekt transmittierten oder reflektierten Lichts multipliziert mit der jeweiligen Spektralwertfunktion können so drei Farbwerte bestimmt werden, die als Tristimulus-Werte X , Y und Z bezeichnet werden und den Farbeindruck eindeutig wiedergeben:

$$\begin{aligned} X &= \int S(\lambda) \bar{x}(\lambda) d\lambda \\ Y &= \int S(\lambda) \bar{y}(\lambda) d\lambda \\ Z &= \int S(\lambda) \bar{z}(\lambda) d\lambda \end{aligned} \quad (2.55)$$

Der durch diese Tristimulus-Werte aufgespannte Raum wird als CIE 1931 XYZ Farbraum bezeichnet. Für eine bessere Übersichtlichkeit wird dieser meist in eine 2-dimensionale Darstellung, die CIE-xy Normfarbtafel, vereinfacht. Dabei wird ausgenutzt, dass $\bar{y}(\lambda)$ dem Helligkeitsempfinden entspricht und so unter Kenntnis der relativen Helligkeit Y der Farbeindruck jeder beliebigen Farbe durch lediglich zwei Koordinaten in einer Fläche dargestellt werden kann. Die beiden Farbkordinaten x und y ergeben sich aus der Normierung von X , Y und Z zu:

$$\begin{aligned} x &= \frac{X}{X + Y + Z} \\ y &= \frac{Y}{X + Y + Z} \end{aligned} \quad (2.56)$$

Diese ursprünglich entwickelte Darstellungsform erwies sich als nachteilig für die konsistente Wiedergabe von Farbunterschieden, sodass eine Diskrepanz zwischen den Abständen der Farbkoordinaten und den wahrgenommenen relativen Änderungen des Farbeindrucks für den Normalbeobachter besteht. Eine gleichmäßigere Darstellung der Farbkontraste wird durch die Transformation in den CIE 1976 Lab Farbraum erreicht. Hierbei entspricht die Koordinate L^* der Helligkeit der Farbe, während auf der a^* -Achse Grün (negativer Bereich) und Rot (positiver Bereich) und auf der b^* -Achse Blau (negativer Bereich) und Gelb (positiver Bereich) gegenüberliegen (siehe **Abbildung 2.18b**). Die gleichmäßige Darstellung der Farbkontraste wird durch die Berücksichtigung der logarithmischen Helligkeitswahrnehmung des Menschen durch Umrechnungsterme bei der Transformation erreicht.^{126,127} Die in der vorliegenden Arbeit gewählte Methode zur Messung des transmittierten Lichtspektrums der Bauteile und die Transformation der Tristimulus-Werte in Farbkoordinaten des CIELAB Farbraums werden im Abschnitt 3.2.3.2 näher erläutert.

3 Fertigungs- und Charakterisierungsverfahren

Im folgenden Kapitel werden die verwendeten Fertigungs- und Charakterisierungsverfahren vorgestellt, um den Leserinnen und Lesern ein umfassendes Verständnis zu vermitteln und zudem die Reproduzierbarkeit der präsentierten Ergebnisse zu gewährleisten. Die Vorstellung der Fertigungsverfahren umfasst sowohl die eingesetzten Beschichtungsverfahren zur Abscheidung der funktionalen Schichten als auch den Aufbau und die Funktion des Laserstrukturierungssystems zur monolithischen Verschaltung und weiteren Strukturierung der PV-Bauelemente. Abschließend werden zudem die grundlegenden Layouts der hergestellten Solarzellen- und Module vorgestellt. Der zweite Teil des Kapitels widmet sich den Charakterisierungsverfahren, die für die präzise Analyse der topographischen, elektrischen und optischen Eigenschaften der funktionalen Schichten, der Strukturierungslinien sowie der fertigen Solarzellen- und Module erforderlich sind. Dabei werden das jeweilige Messprinzip und die aus der Messung resultierenden qualitativen Erkenntnisse sowie quantitativen Kennwerte der Charakterisierungsverfahren für die spezifische Anwendung der Analyse Perowskit-basierter PV erläutert.

3.1 Fertigungsverfahren

Für die Fertigung von Perowskit-basierten Solarzellen und Solarmodulen sind verschiedene Fertigungsverfahren für die Schichtherstellung und -strukturierung, mehrere Layouts zur Definition der Flächen der PV-Bauelemente sowie diverse Ausgangsstoffe notwendig. Im Folgenden sollen zunächst die in der vorliegenden Arbeit genutzten Beschichtungsverfahren beschrieben werden. Anschließend wird das für die Laserstrukturierung der Solarmodule speziell angefertigte und modifizierte Laserstrukturierungssystem vorgestellt. Des Weiteren wird auf das Layout der Standardsolarzellen, die als Referenzen dienen, und auf das Layoutkonzept für die Strukturierung und Verschaltung der Solarmodule eingegangen. Zuletzt sind die standardmäßig genutzten funktionalen Schichten, die dazugehörigen Fertigungsschritte und Prozessparameter sowie die jeweils genutzten Materialien dokumentiert.

3.1.1 Rotationsbeschichtung

Die Rotationsbeschichtung (englisch *Spincoating*) ist eine weit verbreitete lösungsbasierte Abscheidemethode zur Fertigung dünner Schichten durch das Auftragen einer Flüssigkeit, die unter Einwirkung von Zentrifugalkräften gleichmäßig verteilt wird. Die Methode ist besonders in der Mikroelektronik und Photovoltaik zur Erzeugung von dünnen Schichten aus organischen und anorganischen Materialien etabliert.

Der Prozess der Rotationsbeschichtung beginnt mit der mechanischen oder vakuumbasierten Fixierung des zu beschichteten Substrats auf einem Drehteller (englisch *Chuck*). Anschließend wird das als Lösung präparierte abzuscheidende Material auf das Substrat getropft und das Substrat durch den Drehteller in Rotation versetzt. Beim Rotationsvorgang kommt es zu einem Gleichgewicht zwischen der sich ausbildenden Zentrifugalkräfte und der Adhäsion zwischen Lösung und Substrat, wodurch eine gleichmäßige Verteilung der Lösung auf dem Substrat erzeugt wird. Die Trocknung der Lösung erfolgt durch das Ausdampfen des Lösungsmittels noch während der Rotation und anschließendem Ausheizen auf einer Heizplatte oder durch das Herabsetzen der Löslichkeit (englisch *Quenching*) und resultierendem Ausfall des Feststoff durch Zugabe eines zweiten Lösungsmittels. Die Dicke der Schicht kann dabei durch die Prozessparameter wie der Rotationsgeschwindigkeit, der Drehbeschleunigung, der Viskosität der Lösung, der Konzentration des gelösten Feststoffs und der Dauer der Rotation präzise eingestellt werden. Neben der präzisen und reproduzierbaren Herstellung dünner Schichten ermöglichen die Rotationsbeschichtungssysteme geringe Herstellungszeiten und weisen weiterhin sehr niedrige Investitionskosten auf.

Während die Rotationsbeschichtung deshalb das meistgenutzte Fertigungsverfahren für die Herstellung von Dünnschichten der Perowskit-basierten PV darstellt, ist die Skalierung aufgrund der inhomogenen Prozessbedingungen für größere Flächen sowie der ansteigenden Zentrifugalkräfte, die auf das Substrat einwirken, problematisch.

Da für die vorliegende Arbeit unterschiedliche Rotationsbeschichtungssysteme verwendet wurden, zwischen denen jedoch keine praktisch relevanten Unterschiede bestehen, wird auf deren Auflistung verzichtet. Stattdessen werden die charakterisierenden Prozessparameter, die für die Herstellung der unterschiedlichen Dünnschichten verwendet wurden, in Kapitel 3.1.6 vorgestellt.

3.1.2 Klingenschicht

Die Klingenschicht (englisch *Blade Coating* oder *Doctor Blade Coating*) ist eine lösungsbasierte Abscheidemethode zur Herstellung dünner Filme, die eine Lösung mittels bewegter Klinge und Bildung eines Meniskus auf einem Substrat verteilt. Das Verfahren wird dabei vorwiegend zur Herstellung gleichmäßiger Dünnschichten auf größeren flachen Oberflächen von Bauteilen in der Elektronik- und Chemieindustrie genutzt.

Das Klingenschichtverfahren beginnt mit der Platzierung und Fixierung des zu beschichtenden Substrats auf einer horizontalen Unterlage und der Aufbringung einer vorbereiteten Lösung des Beschichtungsmaterials an einem Ende des Substrats. Die eigentliche Beschichtung erfolgt, indem eine justierbare Klinge (englisch *Doctor Blade*) über die Oberfläche des Substrats gezogen wird. Die Klinge trägt dabei überschüssiges Material ab und hinterlässt so eine gleichmäßige Schicht. Die Trocknung der Lösung erfolgt zumeist durch das Erhitzen des beschichteten Substrats auf einer Heizplatte, wodurch das Lösungsmittel verdampft und eine feste Schicht zurückbleibt. Des Weiteren kann zur Trocknung das Substrat in eine Vakuumkammer gegeben werden, in der durch das Herabsetzen der Siedetemperatur der Lösemittel für niedrigere Drücke ein schnelles Ausgasen erfolgt. Die Kontrolle über Prozessparameter wie die Geschwindigkeit, dem Winkel und Abstand der Klinge zum Substrat sowie die Viskosität der Lösung ermöglicht es, die Dicke der Schicht genau zu steuern. Aufgrund der genauen Einstellbarkeit der Schichtdicke wird die Klingenschicht häufig zur Herstellung von Perowskit-Halbleiterschichten sowie von weiteren lösungsbasiert herstellbaren funktionalen Schichten verwendet. Während das Beschichtungsverfahren skalierbar ist, stellt die Vergrößerung der Fläche aufgrund der Notwendigkeit homogener Prozessbedingungen auf der gesamten Substratfläche insbesondere bei der Trocknung eine große Herausforderung dar.

Für die in dieser Arbeit mittels Klingenbeschichtung hergestellten Schichten wurde die Klingenbeschichtungsapparatur ZAA 2300 der Zehntner GmbH sowie ähnliche Produktversionen mit nahezu identischem Aufbau eingesetzt. Die charakterisierenden Prozessparameter sowie die Bestandteile der eingesetzten Lösungen, die für die jeweils hergestellten Schichten verwendet wurden, sind detailliert in Kapitel 3.1.6 aufgeführt.

3.1.3 Beschichtung mittels physikalischer Gasabscheidung

Die Bezeichnung der physikalischen Gasphasenabscheidung (PVD, englisch *Physical Vapor Deposition*) beschreibt eine Reihe von vakuumbasierter Beschichtungsverfahren, die verwendet werden, um dünne Filme durch die Kondensation von verdampften Materialien auf verschiedenen Substraten zu erzeugen. Diese Verfahren werden intensiv in Industrien wie der Mikroelektronik, der Materialwissenschaft und der Photovoltaik eingesetzt, um dünne Schichten aus Metallen, Oxiden und Halbleitern zu fertigen. PVD-Prozesse zeichnen sich durch ihre Fähigkeit aus, Schichten mit hoher Reinheit, exzellenter Adhäsion und präziser Kontrolle über die Schichtdicke und Zusammensetzung zu erzeugen. Der eigentliche Prozess erfolgt in einer Vakuumkammer, wo das Beschichtungsmaterial durch unterschiedliche Verfahren wie dem thermischen Verdampfen (englisch *Thermal Evaporation*), dem Elektronenstrahlverdampfen (englisch *Electron Beam Evaporation*), der Kathodenzerstäubung (englisch *Sputtering*), dem Laserstrahlverdampfen (englisch *Laser Beam Evaporation*) oder der Bogenverdampfung (englisch *Arc Evaporation*) in die Gasphase überführt wird. Während diese Beschichtungsverfahren mit hohen Investitionskosten verbunden sind, erlaubt die physikalischen Gasabscheidung eine einfache Skalierung mit gleichbleibenden Prozessbedingungen, weshalb es für eine Schlüsseltechnologie für die industrielle Herstellung von Perowskit-PV betrachtet wird. Im Folgenden soll auf die in dieser Arbeit genutzten PVD-Beschichtungsverfahren genauer eingegangen werden.

Thermisches Verdampfen, oft auch als Widerstandsverdampfen bezeichnet, ist ein Prozess der physikalischen Gasphasenabscheidung (PVD), die in einem Hochvakuumsystem durchgeführt wird. In diesem Prozess wird das zu verdampfende Material in einem hitzebeständigen Tiegel oder Schiffchen, die meist aus extrem hitzebeständigen Materialien wie Wolfram bestehen, platziert. Die Tiegel oder Schiffchen werden durch hohe direkt applizierte Ströme oder mittels Induktion induzierter Ströme sowie durch den deren elektrischen Widerstand erhitzt, wodurch indirekt das zu verdampfende Material bis zum Erreichen dessen Dampfphase aufgeheizt wird. Die verdampften Atome oder Moleküle steigen in der Vakuumkammer auf und kondensieren unter Bildung einer dünnen Schicht auf dem

kälteren Substrat. Die Verdampfungsrate, welche kritisch für die gleichmäßige und reproduzierbare Schichtbildung ist, erfolgt oft meist über kalibrierte Schwingquarze. Das thermische Verdampfen ermöglicht dabei eine sehr genaue Einstellung der gewünschten Schichtdicke durch Adaption der Verdampfungsrate mittels applizierter Ströme und der gewählten Dauer der Beschichtung. Für die vorliegende Arbeit wurde eine Verdampfungsanlage des Modells Coat 320 der Vactec GmbH genutzt, die ein Hochvakuum von etwa $1 \cdot 10^{-6}$ mbar erzeugt und durch die dadurch hohen mittleren freien Weglängen qualitativ hochwertige und reine Schichtfertigung ermöglicht.

Das **thermische Koverdampfen** stellt eine besondere Form des thermischen Verdampfens vor, bei der verschiedene Materialien gleichzeitig in einem einzigen Beschichtungsprozess in mehreren Tiegeln verdampft werden, um komplexere Schichten mit einstellbaren Materialeigenschaften zu erzeugen. Durch Steuerung der individuellen Verdampfungsraten der Ausgangsstoffe durch separat kontrolliertes Aufheizen der Tiegel wird eine direkte Herstellung gemischter oder gradient-behafteter Dünnschichten ermöglicht. So kann für die Herstellung der Perowskit-Halbleiterschichten die stöchiometrische Zusammensetzung exakt gesteuert und so letztlich die optoelektronischen Eigenschaften bestimmt werden. Hierzu ist üblicherweise noch das nachfolgende Ausheizen zur Kristallisation der Perowskit-Halbleiterschicht notwendig. Die in der vorliegenden Arbeit koverdampften Perowskit-Halbleiterschichten wurden in einer Verdampfungsanlage des Modells PEROVap Verdampfungssystem der CreaPhys GmbH (M. Braun Inertgas-Systeme GmbH) hergestellt.

Bei der Beschichtung mittels **Kathodenzerstäubung** (Sputtern) wird das abzuscheidende Material als Festkörper (Target) unter Vakuumbedingungen von energiereichen Ionen, typischerweise Argonionen, bombardiert. Die Ionen werden dabei in einer Plasmaentladung erzeugt und auf das Target mittels elektrischem Feld beschleunigt. Beim Aufprall der Ionen auf das Target werden Atome oder Moleküle des Targetmaterials durch den physikalischen Stoßprozess herausgeschlagen und direkt in die Gasphase überführt. Die freigesetzten Partikel bewegen sich weg vom Target und kondensieren als Dünnschicht auf einem gegenüberliegenden Substrat. Dieser Prozess ermöglicht eine außerordentlich gleichmäßige Beschichtung auch auf komplex geformten Oberflächen und ist besonders geeignet für Materialien, die durch thermisches Verdampfen schwer zu handhaben sind. Die Schichtdicke beim Sputtern kann dabei durch Anpassung der zur Beschleunigung des Plasmas angelegten Spannungen, der Prozessdauer und des Substrat-Target-Abstands präzise gesteuert werden. Die Materialzusammensetzung und die daraus folgenden Eigenschaften der Schichten können durch die Auswahl und den Partialdruck des Prozessgases eingestellt werden. Das Beschichtungsverfahren wird dabei häufig zur Herstellung qualitativ

hochwertiger, hochreiner und dichter Verschleißschutzschichten sowie elektrischer und optischer Schichten verwendet. Die in der vorliegenden Arbeit hergestellten transparenten leitfähigen Oxidschichten wurden mit einer Sputteranlage des Typs Pro Line PVD 75 der Kurt J. Lesker Company GmbH gefertigt.

Die Beschichtung mittels **Elektronenstrahlverdampfen** wird insbesondere für die Herstellung hochreiner und dünner Schichten aus Materialien mit hohen Schmelzpunkten wie Oxiden, Metallen oder Halbleitern genutzt. Das Beschichtungsmaterial wird dabei innerhalb der Vakuumkammer in einem Tiegel durch einen fokussierten, hochenergetischen Elektronenstrahl lokalisiert erhitzt und verdampft. Das selektive Erhitzen des Materials erlaubt eine präzise Einstellung der Verdampfungsrate und minimiert zudem das Risiko von Verunreinigungen durch verdampfende Fremdstoffe. Das Beschichtungsverfahren wird dabei häufig für die Herstellung der selektiven Ladungsträgertransport- sowie Passivierungsschichten von Perowskit-basierter PV, die nur wenige Nanometer in der Dicke messen, verwendet. Die in der vorliegenden Arbeit mittels Elektronenstrahlverdampfen hergestellten Schichten wurden mit einem gloveboxintegrierten System der Angstrom Engineering Inc. gefertigt.

3.1.4 Laserstrukturierung

Für die Laserstrukturierung von Dünnschichten für die Photovoltaik ist es notwendig, einerseits präzise, qualitativ hochwertige und defektfreie Strukturierungen zu erzeugen und andererseits industriellen Anforderungen gerecht zu werden. So ist für eine erfolgreiche Übertragung eines entwickelten Strukturierungsprozesses in industrielle Fertigungslinien die Verwendung von kostengünstigen, jedoch zuverlässigen Komponenten, die bereits in der Industrie etabliert sind, unerlässlich. Um dabei eine hohe Produktionseffizienz zu gewährleisten, sind hohe Laserstrukturierungsgeschwindigkeit und eine gute Reproduzierbarkeit notwendig. Zudem ist eine hohe Fokussierung des Laserstrahls sowie eine genaue Ausrichtung der Strukturierungslinien entscheidend, um Strukturierungslinien minimaler Breite und geringe inaktive Verschaltungsflächen sicherzustellen. Ein weiterer kritischer Aspekt ist der Schutz der empfindlichen funktionalen Schichten wie der Perowskit-Halbleiterschicht vor Umwelteinflüssen wie Sauerstoff und Wasser. Darüber hinaus ist insbesondere bei mechanisch getriebener Ablation die Wiederablagerung von Ablationsmaterial zu verhindern, um Defekte sowie reduzierte Wirkungsgrade der PV-Bauelemente zu vermeiden.

Die genannten Anforderungen und Herausforderungen wurden mit einem speziell angefertigten Laserstrukturierungssystem (Bergfeld Lasertech GmbH) sowie dessen Modifikation durch weitere Komponenten gelöst. Der Aufbau wird im Folgenden erläutert. Alle Laserstrukturierungsprozesse in der vorliegenden Arbeit wurden mit

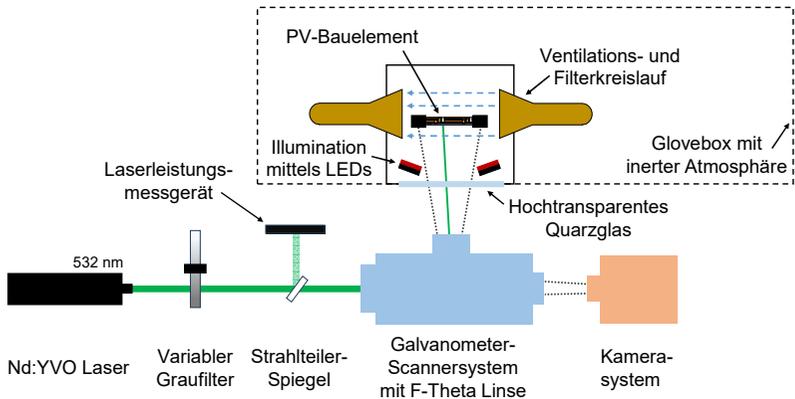


Abbildung 3.1. Schematische Darstellung des für die in der vorliegenden Arbeit hergestellten Laserstrukturierungslinien genutzten Laserstrukturierungssystems. Das optische System einschließlich Laser, Leistungsmessung und -einstellung, Scanner und Kamera befindet sich außerhalb einer inerteren Glovebox. Die Probenkammer einschließlich des zu strukturierenden PV-Bauelements, der LEDs für die Illumination der Referenzmarkierungen und des Zu- und Abflusses der Stickstoffströmung des Ventilations- und Filtersystems befinden sich innerhalb der inerteren Glovebox.

diesem Gesamtsystem durchgeführt. Die charakterisierenden Parameter sind innerhalb der Ergebniskapitel dargestellt.

Das Gesamtsystem zur Laserstrukturierung besteht zunächst aus einem geschlossenen optischen System, das unter einer Glovebox montiert ist, sowie einer Probenkammer innerhalb der Glovebox (siehe **Abbildung 3.1**). Das optische System kombiniert dabei mehrere in der Industrie etablierte Standardkomponenten. Der auf Neodym-dotiertem Yttrium-Orthovanadat (Nd:YVO₄) basierende Laser (PICOLO MOPA-10, INNOLAS LASER GMBH) erzeugt Pulse mit einer Dauer von etwa einer Nanosekunde (Q-Switch), bei einer Pulsrate von 10 kHz und einer Wellenlänge von 1064 nm, die durch Frequenzverdopplung auf 532 nm reduziert werden können. Um bei der Einstellung der gewünschten Laserpulsfluenzen die Oszillator- und Verstärkerströme innerhalb des idealen Betriebsbereichs zu halten und dennoch einen breiten Pulsspitzenfluenzen von über zwei Größenordnungen ($0,01 \text{ J cm}^{-2} < F_p < 5 \text{ J cm}^{-2}$) zu ermöglichen, wird der Laser zusätzlich durch einen variablen Graufilter in seiner Leistung moduliert. Um die Pulsspitzenfluenzen präzise einzustellen, die Werte zu erfassen und temperatur- oder betriebszustandsbedingte Schwankungen bei konstanten Stromeinstellungen zu ausgleichen zu können, wird ein kleiner Teil des Laserlichts ($\approx 6\%$) durch einen Strahlteiler auf ein Messgerät zur Leistungsmessung reflektiert. Eine hohe Laserstrukturierungsgeschwindigkeit von bis zu 15 m/s wird durch den Einsatz eines

präzisen und schnellen Galvanometer-Scannersystems erreicht. Eine F-Theta-Linse ermöglicht die Fokussierung des Laserstrahls auf einer planaren Fokusebene (Brennweite $f = 255$ mm) bei gleichbleibendem Pulsdurchmesser $2 \cdot \omega_0$ von etwa $50 \mu\text{m}$, wobei der Probenhalter in der Höhe verstellbar ist, um die Fokusebene optimal auf unterschiedliche Probendicken oder Versuchsanordnungen einzustellen. Die Trennung des Systems in zwei Teilsysteme erleichtert den Zugang zum optischen System für Wartungsarbeiten und minimiert durch die Integration der Probenkammer in die Glovebox Gesundheitsrisiken durch die chemischen Bestandteile der PV-Bauteile sowie das ablatierte Material. Die inerte und staubfreie Atmosphäre der Glovebox schützt die empfindlichen funktionalen Schichten der PV-Bauelemente vor Degradation und Beschädigungen. Ein hochtransparentes optisches Fenster ermöglicht die Transmission des Laserstrahls vom optischen System in die hermetisch dichte Glovebox bzw. Probenkammer. Während des Laserstrukturierens befinden sich die PV-Bauelemente durch ein geschlossenes Ventilations- und Filtersystem in einer permanenten laminaren Stickstoffströmung, was die Wiederablagerung von ablatiertem Material verhindert. Die integrierte Kamera ermöglicht zudem die präzise Referenzierung der Laserstrukturierungslayouts anhand von Markierungen auf den Substraten, die mittels LEDs beleuchtet werden, und gewährleistet so minimale Toleranzen bei der Positionierung der aufeinanderfolgenden P1-P3 Laserstrukturierungslinien. Um die Komplexität des Prozesses für einen möglichen Transfer in die Industrie zu reduzieren, wird der Laser trotz der zahlreichen Einstellungsmöglichkeiten des Systems mit nur einer Ablationswellenlänge (hier 532 nm) und einer kontinuierlichen Wiederholrate (hier 10 kHz) betrieben.

3.1.5 Layout der Solarzellen und Solarmodule

Das verwendete Solarzellenlayout ist auf die forschungsseitigen Anforderungen optimiert. Ausgangsbasis hierfür ist ein Glassubstrat mit einer vorstrukturierten Frontelektrode, deren innere Streifen eine Breite von $3,5$ mm aufweisen (siehe **Abbildung 3.2a**). Im Anschluss erfolgt die Abscheidung aller funktionalen Materialschichten der Solarzelle bis zur Rückelektrode (exklusive) und die Wiederfreilegung der Frontelektrode im oberen und unteren Bereich des Substrats (siehe **Abbildung 3.2b**). Zuletzt wird die Rückelektrode unter Verwendung einer Depositionsmaske zu deren Strukturierung abgeschieden. Durch die Überlappungen der Front- und Rückelektrode werden pro Substrat vier separate Solarzellen mit einer Fläche von je $10,5 \text{ mm}^2$ ($3,5 \text{ mm} \times 3 \text{ mm}$) definiert (siehe **Abbildung 3.2c**). Die kleine Substratfläche ermöglicht selbst bei Verwendung laborüblicher kleinerer Abscheidensysteme in Kombination mit der Fertigung mehrerer Solarzellen pro Substrat die Herstellung großer Stückzahlen zum

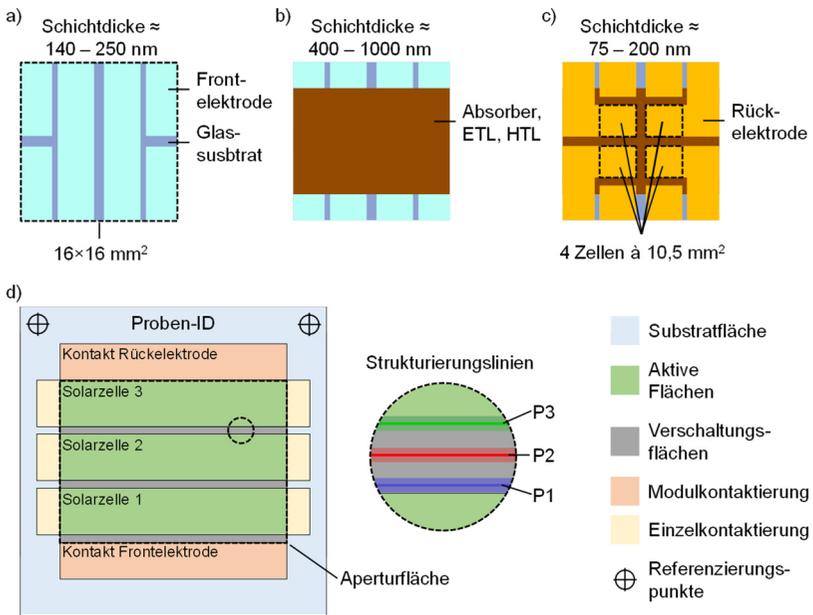


Abbildung 3.2. (a-c) Schematische Darstellung des für die Herstellung der Referenzsolarzellen verwendeten Layouts (Draufsicht). (a) Glassubstrat mit vorstrukturierter Frontelektrode. (b) Abscheidung aller funktionaler Schichten der Solarzelle mit Ausnahme der Elektroden. Im oberen und unteren Substratbereich wird nachträglich die Frontelektrode wieder freigelegt. (c) Abscheidung der Rückelektrode mit Strukturierung mittels Depositionsmasken. Durch die Überlappung der Front- und Rückelektroden ergeben sich pro Substrat 4 getrennte Solarzellen. (d) Schematische Darstellung des für die Herstellung der Perowskit-Solarmodule verwendeten Layoutkonzepts und Kategorisierung der sich ergebenden Flächen (Draufsicht). Ein Solarmodul umfasst dabei je nach Substratgröße und optimierter Zellbreite n Solarzellenstreifen, die mittels der Strukturierungslinien P1-P3 miteinander jeweils verschaltet sind. Das Gesamtsolarmodul kann dabei durch die zwei großen Kontaktflächen und die einzelnen Solarzellenstreifen durch die kleineren seitlichen Kontaktflächen elektrisch kontaktiert werden.

Erreichen statistischer Relevanz bei gleichzeitigem geringen Materialverbrauch. Für die Herstellung der Solarmodule wird dagegen nicht auf ein standardisiertes Layout zurückgegriffen sondern stattdessen ein auf die jeweilige Substratgröße und die optimierte Solarzellenstreifenbreite angepasstes und selbstentworfenes Solarmodullayout verwendet. Im Folgenden soll deshalb auf das grundlegende Konzept der Solarmodullayouts eingegangen werden. Die in den späteren Ergebniskapiteln jeweils genutzten Solarmodullayouts sind an entsprechenden Stellen beschrieben und dargestellt.

Ein Solarmodul besteht aus n Solarzellen, welche durch die Strukturierungslinien P1, P2 und P3 der in Kapitel 2.1.4 vorgestellten monolithischen Verschaltung in Serie verbunden sind (siehe **Abbildung 3.2d**). Die Verschaltungsflächen bilden dabei inaktive Bereiche zwischen den aktiven Solarzellenstreifen. Die Gesamtfläche der Solarzellenstreifen und der Verschaltungen ergeben die Aperturfläche des jeweiligen Solarmoduls. Das Solarmodul einschließlich aller Solarzellenstreifen kann durch zwei große Kontaktflächen am oberen und unteren Ende elektrisch kontaktiert werden, wobei sich die Orientierung der Kontaktierung mit der Rückelektrode (oben) und der Frontelektrode (unten) aus der Reihenfolge der P1-P3 Strukturierungslinien ergibt. Zusätzlich können durch kleinere Kontaktflächen an den jeweiligen Seiten der Solarzellenstreifen diese ebenfalls individuell oder eine Anzahl $m < n$ in Reihe kontaktiert werden. Die exakte Ausrichtung und Positionierung der Strukturierungslinien wird durch die Fertigung von Referenzierungspunkten in der oberen linken und rechten Ecke ermöglicht. Zur eindeutigen Identifikation des PV-Bauteils wird zudem eine einzigartige Proben-ID eingraviert.

3.1.6 Spezifikationen der Schichtherstellung und verwendete Ausgangsstoffe

Die Grundlage für die Aufskalierung bilden eine Vielzahl an Materialbeschichtungsverfahren, die für die Herstellung der zuvor eingeführten Solarzellen innerhalb der Forschungsgruppe optimiert wurden. Einige dieser Fertigungsschritte und deren Parameter konnten ebenfalls für die Herstellung der Solarmodule übernommen werden und sind im Folgenden dargestellt.

Lösemittel:

Für die Herstellung der in der vorliegenden Arbeit präsentierten Solarzellen und -module wurden verschiedene Lösemittel verwendet, um sowohl Reinigungsschritte durchzuführen als auch Lösungen herzustellen. Bei den Lösemitteln handelt es sich um Chlorbenzol (CB, Sigma-Aldrich, CAS: 108-90-7), *N,N*-Dimethylformamid (DMF, Sigma-Aldrich, wasserfrei, 99.8%, CAS: 68-12-2), Dimethylsulfoxid (DMSO, Merck, wasserfrei, $\geq 99.9\%$, CAS: 67-68-5), Ethanol (99.8%, VWR Chemicals, CAS: 67-17-5), Ethylacetat (Sigma-Aldrich, CAS: 141-78-6) und Isopropanol (VWR, Chemicals, 67-63-0).

Glassubstrate mit ITO-Beschichtung:

Die standardmäßig verwendeten Glassubstrate werden bereits mit Indium-Zinn-Oxid-Beschichtung (ITO, CAS: 50926-11-9, 140 nm Schichtdicke) von der Luminescence Technology Corporation bezogen. Für die Herstellung der Referenzsolarzellen wird ein 64 mm \times 64 mm Format mit vorstrukturierter Frontelektrode genutzt, das anschließend in 16 mm \times 16 mm Substrate unterteilt

wird. Für die Herstellung der Module wird ein 128 mm × 128 mm ohne Vorstrukturierung genutzt und ebenfalls auf das jeweils notwendige Maß zugeschnitten. Der Flächenwiderstand der ITO-Frontelektrode beträgt $R_{FE}^0 \leq 15 \Omega \square^{-1}$. Die Glassubstrate werden vor der Abscheidung weiterer Materialschichten für je 10 Minuten nacheinander in einem Glasgefäß mit einer Seifenlösung, mit Aceton sowie mit Isopropanol in einem Ultraschallbad gereinigt und zuletzt mit einem dreiminütigem Sauerstoffplasma behandelt. In einigen Abschnitten der Arbeit wurde stattdessen mit unstrukturiertem IO:H (CAS 14332-21-9) beschichtete Glassubstrate verwendet. Die Beschichtung wurde entweder vom Zentrum für Sonnenenergie- und Wasserstoffforschung (ZSW) mit einem resultierenden Flächenwiderstand von $R_{FE}^0 \approx 10 \Omega \square^{-1}$, oder mittels Kathodenzerstäubung bei 3300 s Prozessdauer, einer resultierenden Dicke von 150 nm und einem Flächenwiderstand von $R_{FE}^0 \approx 25 \Omega \square^{-1}$ selbst hergestellt.

Frontseitige selektive Lochtransportschichten:

Für die skalierbare Herstellung von Solarzellen und Solarmodulen in Kapitel 4 wurde als HTL eine ≤ 5 nm dicke 2,2',7,7'-Tetrakis(*N,N*-diphenylamino)-9,9-spirobifluorene (Spiro-TTB, Luminescence Technology, CAS: 515834-67-0) mittels thermischer Verdampfung abgeschieden. Hierfür wurde das OPTIvap Verdampfungssystem (CreaPhys GmbH) verwendet.

Für die in Kapitel 5 und 6 präsentierten (Tandem-)Solarzellen wurde als HTL [2-(9*H*-Carbazol-9-yl)-ethyl]-Phosphonsäure (2PACz, TCI, CAS: 20999-38-6) in wasserfreiem Ethanol mit einer Konzentration von 1 mmol l⁻¹ gelöst und auf den präparierten ITO-Substraten mittels Rotationsbeschichtung bei 3000 U min⁻¹ und 30 s Dauer abgeschieden. Im Anschluss folgte ein Ausheizschritt bei 100°C für 10 min.

Für die skalierbare Herstellung der in Kapitel 5 und 6 präsentierten Tandem-Solarmodule wurde die vorherige 2PACz Lösung dagegen mittels Klängenbeschichtung und mit einer Raketengeschwindigkeit von 15 mm s⁻¹ aufgebracht. Die Trocknung erfolgte in Stickstoffatmosphäre und ebenfalls bei 100 °C für 10 min.

Perowskit-Halbleiterschichten:

Der in Kapitel 4 verwendete CH₃NH₃PbI₃ Perowskit-Absorber wurde durch thermisches Koverdampfen von Bleijodid (PbI₂, TCI Deutschland GmbH, 99,99% Reinheit, CAS: 10101-63-0) und Methylammoniumjodid (CH₃NH₃I, Luminescence Technology, >99,5% Reinheit, CAS: 14965-49-2) in einer PEROVap-Verdampfungsanlage (CreaPhys GmbH) hergestellt. CH₃NH₃I wurde nach jeder Abscheidung ausgetauscht, während PbI₂ für mehrere Verdampfungsläufe verwendet wurde. PbI₂ wurde mit einer Verdampfungsrate von 1,5 Å s⁻¹ und CH₃NH₃I mit einer Verdampfungsrate zwischen 2,0 und 2,5 Å s⁻¹ verdampft. Die Substrate wurden während der Abscheidung bei einer Temperatur von etwa 25 °C

gehalten.

Die Präkursorlösung der in Kapitel 5 und 6 verwendeten $\text{Cs}_{17}\text{FA}_{0,83}(\text{Pb}_{0,92}\text{Br}_{0,08})_3$ Perowskit-Halbleiterschichten wurde durch Auflösen von 0,83 mmol Formamidiniumiodid (FAI, 143 mg, Dyenamo, CAS: 879643-71-7), 0,17 mmol Cäsiumiodid (Csl, 44 mg, abcr, CAS: 7789-17-5), 0,88 mmol PbI_2 (444 mg, 10% Überschuss, TCI, CAS: 10101-63-0) und 0,12 mmol PbBr_2 (46 mg, TCI, CAS: 10031-22-8) in 1 ml Lösungsmittelgemisch aus DMF:DMSO im Volumenverhältnis 4:1 präpariert. Zusätzlich wurden 35 μl einer PbCl_2 :MACI-Lösung mit einem Molverhältnis von 1:1 in 1 ml DMSO als Passivierungszusatz zu der Perowskit-Präkursorlösung hinzugefügt. Die Präkursorlösung wurde mittels zweistufigem Rotationsbeschichtungsverfahren abgeschlossen: 1) Rotationsgeschwindigkeit: 1000 U min^{-1} , Beschleunigung: $2000 \text{ U min}^{-1} \text{ s}^{-1}$, Dauer: 10 s. 2) Rotationsgeschwindigkeit: 5000 U min^{-1} , Beschleunigung: $2000 \text{ U min}^{-1} \text{ s}^{-1}$, Dauer: 40 s. Zum Quenching der Präkursorlösung wurden 150 μl CB 20 s vor Ende der zweiten Stufe auf das Substrat gegeben. Die Substrate wurden im Anschluss 30 min bei $100 \text{ }^\circ\text{C}$ auf einer Heizplatte in inerter Atmosphäre getrocknet.

Die Präkursorlösung für die $\text{FA}_{0,8}\text{Cs}_{0,2}(\text{I}_{0,6}\text{Br}_{0,4})_3$ WBG-Perowskit-Halbleiterschicht wurde durch Auflösen von 82,5 mg FAI (GreatCell, CAS: 1415238-77-5), 40 mg FABr (CAS: 146958-06-7), 31,1 mg Csl (abcr, CAS: 7789-17-5), 17 mg CsBr (Alfa Aesar, CAS: 7787-69-1), 276,6 mg PbI_2 (Alfa Aesar, 99,999%, CAS: 10101-63-0) und 146,8 mg PbBr_2 (TCI, CAS: 10031-22-8) in einem 4:1 (V:V) Lösungsmittelsystem aus DMF:DMSO hergestellt. Die Klingenschichtung der Präkursorlösung wurde mit einer Rakelgeschwindigkeit von 15 mm s^{-1} durchgeführt und die Trocknung durch anschließendes Ausgasen im Vakuum für ca. 30 s bei geringer Stickstoffströmung ($200 \text{ cm}^3 \text{ min}^{-1}$) erreicht. Zuletzt wurden die Substrate für 20 min bei $150 \text{ }^\circ\text{C}$ auf einer Heizplatte ausgeheizt.

Die Präkursorlösung der $\text{Cs}_x(\text{FA}_{0,83}\text{MA}_{0,17})_{(1-x)}\text{Sn}_{0,5}\text{Pb}_{0,5}\text{I}_3$ NBG Perowskit-Halbleiterschichten wurde durch Auflösen von 275 mg FAI (GreatCell, CAS: 1415238-77-5), 63,6 mg Methyammoniumiodid (MAI, GreatCell, CAS: 14965-49-2), 372 mg Zinniodid (SnI_2 , Sigma-Aldrich, 99,999%, CAS: 7790-47-8), 469 mg PbI_2 (Alfa Aesar, 99,999%, CAS: 10101-63-0), 10,43 mg Blei-Thiocyanat ($\text{Pb}(\text{SCN})_2$, Sigma-Aldrich, 99,5%, CAS: 592-87-0) und 3,73 mg Zinnfluorid (SnF_2 , Sigma-Aldrich, 99%, CAS: 7783-47-3) in einer 9:1 (V:V) Mischung aus DMF:DMSO hergestellt. 1 ml dieser Präkursorlösung wurden 32 μl einer Csl-Lösung (1,5 M Csl in DMSO, abcr, CAS: 7789-17-5) hinzugegeben und wurde nochmal zu 1:1 (V:V) mit DMF verdünnt. Die fertige Präkursorlösung wurde mittels Klingenschichtung und einer Rakelgeschwindigkeit von 15 mm s^{-1} auf die Substrate aufgebracht und wie zuvor mittels Vakuum und leichter Stickstoffströmung getrocknet. Zuletzt wurden die Substrate für 7 min bei $100 \text{ }^\circ\text{C}$ auf einer Heizplatte ausgeheizt.

Rekombinationsschichten der Tandem-PV-Bauelemente:

Für die in Kapitel 5 und 6 präsentierten Tandem-Solarzellen und -module wurde nach der Abscheidung der WBG-Perowskit-Halbleiterschicht 1 nm Lithiumbis-(trifluormethansulfonyl)imid (LiF, Sigma Aldrich, CAS: 90076-65-6) und anschließend 15 nm C₆₀ (Alfa Aesar, 98%, CAS: 99685-96-8) durch thermische Verdampfung abgeschieden. Im Anschluss wurden 35 nm SnO_x mittels ALD zum Schutz des WBG-Perowskits gegenüber der in den nächsten Fertigungsschritten verwendeten Lösemittel beschichtet. Als eigentliche Rekombinationsschicht diente eine thermisch gedampfte 1 nm Goldschicht (Au). Zuletzt wurde eine 10-fach verdünnte wässrige Poly(3,4-ethyldioxythiophen)-poly(styrolsulfonat) Dispersion (PEDOT:PSS Dispersion, Sigma Aldrich, CAS: 155090-83-8) mittels Klingenbeschichtung mit 25 mm s⁻¹ Rakelgeschwindigkeit und 80 °C Substrattemperatur aufgetragen.

Rückseitige Elektronentransportschichten:

Für die in Kapitel 5 und 6 präsentierten Tandem-Solarmodule wurde vor Beschichtung mit C₆₀ und BCP eine 5 nm Phenyl-C₆₁-Buttersäuremethylester-Schicht durch Auftragen einer 10-fach verdünnten PCB-M-Lösung (PCBM, Sigma-Aldrich, 99.5%, 160848-22-6) mittels Klingenbeschichtung und anschließender Trocknung in einer Vakuumkammer ohne zusätzliches Heizen hergestellt.

Für die in Kapitel 4 präsentierten Solarzellen und -module wurden als ETL 25 nm C₆₀-Fulleren (Alfa Aesar, 98%, CAS: 99685-96-8) und 6 nm Bathocuproin (BCP, Luminescence Technology, CAS: 4733-39-5) abgeschieden.

Opake Rückelektroden:

Die opaken metallischen Rückelektroden aus Gold (CAS: 7440-57-5), Silber (CAS: 7440-22-4) oder Kupfer (CAS: 7440-50-8) wurden mittels thermischem Verdampfen in der Verdampfungsanlage Vactec Coat 320 hergestellt. Die Edelmetalle wurden von ESG Edelmetall-Service GmbH & Co. KG bezogen. Die Schichtdicke wurde für alle zu 75 nm standardisiert.

Transparente Rückelektroden:

Für die Herstellung der in Kapitel 5 präsentierten semitransparenten Solarmodule wurde mittels Kathodenzerstäubung eine transparente Rückelektroden-schicht aus Indium-Zinkoxid (IZO, Kurt J. Lesker Company GmbH, CAS 117944-65-7) oder Wasserstoff-dotiertem Indiumoxid (IO:H, Kurt J. Lesker Company GmbH, 14332-21-9) verwendet. Für IZO betrug die Einbrennzeit 600 s, die Beschichtungszeit 2550 s, die resultierende Schichtdicke etwa 165 nm und der Schichtwiderstand $R_{RE}^{\square} \approx 40 \Omega \square^{-1}$. Für IO:H entsprach die Einbrennzeit ebenfalls 600 s, die Beschichtungszeit 3300 s, die resultierende Schichtdicke etwa 150 nm und der Schichtwiderstand etwa $R_{RE}^{\square} \approx 25 \Omega \square^{-1}$.

3.2 Charakterisierungsverfahren

Im folgenden Abschnitt werden die Verfahren erörtert, welche zur Charakterisierung der einzelnen funktionalen Materialschichten, der laserstrukturierten Verschaltungslinien sowie der fertigen Solarzellen und Solarmodule verwendet wurden. Dabei wird sowohl auf das grundlegende Funktionsprinzip des jeweiligen Charakterisierungsverfahren, als auch auf die verwendeten experimentellen Aufbauten eingegangen. Die Charakterisierungsverfahren sind dabei nach der zu charakterisierenden Messgröße in Verfahren zur Charakterisierung der Oberflächeneigenschaften, der elektrischen Eigenschaften sowie der optischen Eigenschaften des jeweiligen Messobjekts unterteilt.

3.2.1 Oberflächencharakterisierung

Die für die Untersuchung der topographischen, morphologischen und chemischen Eigenschaften der Materialschichten sowie der Gräben der laserstrukturierten Verschaltungslinien verwendeten Charakterisierungsverfahren werden im Folgenden vorgestellt. Durch die Charakterisierungsverfahren werden beispielsweise die Schichtdicken, die Rauigkeit, die Defektdichte sowie die chemische Zusammensetzung des Messobjekts festgestellt.

3.2.1.1 Lichtmikroskopie

Die Lichtmikroskopie gehört zu den grundlegendsten Charakterisierungsverfahren und basiert auf dem Prinzip der Vergrößerung von Objekten durch ein System aus Linsen, die sichtbares Licht nutzen, um ein vergrößertes Bild eines kleinen oder mikroskopischen Objekts zu erzeugen.

Für die vorliegende Arbeit wurde die Lichtmikroskopie als schnelle und einfache Methode zur Beurteilung der Qualität und der Eigenschaften der durch das Laserstrukturierungssystem hergestellten Strukturierungslinien genutzt. Durch die individuelle Anpassung der Beleuchtung, sowohl durchscheinend (Transmissionsbeleuchtung) als auch draufscheinend (Reflektionsbeleuchtung), konnten unterschiedliche Aspekte der Schichtqualität untersucht werden. Die Modulation der Transmissionsbeleuchtung ermöglichte das Prüfen auf Residuen in den Gräben der Strukturierungslinien, auf Unterbrechungen der Strukturierungslinien, auf Schädigungen der darunterliegenden Materialschichten sowie auf Vorhandensein starker Schichtdickengradienten am Rand der Strukturierungslinien. Im Gegensatz dazu diente die Reflektionsbeleuchtung zur Beurteilung der Oberfläche, wodurch Defekte wie die Spanbildung der metallischen Rückelektroden oder das großflächige Abplatzen der spröden transparenten Rückelektroden sichtbar wurden. Zusätzlich wurde mithilfe einer an das

Lichtmikroskop gekoppelten Software die breite der Strukturierungslinien und Defekte vermessen. Dabei wurde in der vorliegenden Arbeit das Lichtmikroskop des Typs BH2-UMA von Olympus Corporation verwendet.

3.2.1.2 Weißlichtinterferometrie

Die Weißlichtinterferometrie ist ein hochpräzises optisches Messverfahren, das zur Untersuchung der Oberflächentopographie von Materialien verwendet wird. Das Verfahren basiert dabei auf dem Prinzip der Interferenz, bei dem Lichtwellen überlagert werden, um ein Interferenzmuster zu erzeugen, das Informationen über die Oberflächenstruktur liefert.

Bei der Weißlichtmikroskopie wird zunächst ein breitbandiges Lichtspektrum durch eine Halogen- oder LED-Lampe erzeugt und mittels Mikroskopobjektiv häftig als Messstrahl auf die Probe fokussiert und von dieser zum Teil reflektiert. Die andere Hälfte dient als Referenzstrahl und trifft stattdessen auf eine Referenzfläche. Die beiden Strahlen werden nach der Reflexion wieder zusammengeführt, wobei sie aufgrund der unterschiedlichen Weglänge Phasenverschiebungen aufweisen, die wiederum Interferenzmuster ergeben. Da das Licht verschiedene Wellenlängen enthält, erzeugt jede Wellenlänge ein leicht unterschiedliches Interferenzmuster, was zu einem charakteristischen Muster führt, das als Interferenzspektrum bezeichnet wird. Die Analyse des Interferenzspektrums ermöglicht die Aufschlüsselung der Topographie der Oberfläche, wobei die Auflösungsgrenze deutlich unterhalb der Wellenlängen des Lichtspektrums im Bereich weniger nm liegt.¹²⁸

In der vorliegenden Arbeit wurde die Weißlichtinterferometrie einerseits zum Vermessen der aus den Beschichtungsverfahren resultierenden Dicken der funktionalen Schichten und andererseits zur genaueren Analyse der Ergebnisse der Laserstrukturierung verwendet. Hinsichtlich der P1 Strukturierungslinie ermöglichte die Weißlichtinterferometrie eine genaue Analyse der Rauheit und Defektdichte der Gräben sowie deren Ränder, sodass die Parameter der Laserstrukturierung zur Vermeidung von Kurzschlüssen optimiert und durchgängig bedeckende Schichten hergestellt werden konnten. Für die P2 Strukturierungslinie wurde insbesondere die vollständige Ablation der Perowskit-Halbleiterschicht bei gleichzeitigem Vermeiden von Beschädigungen der Frontelektrode untersucht, um minimale Kontaktwiderstände zu erzielen. Des Weiteren ermöglichte die Weißlichtinterferometrie die genaue Untersuchung des Ablöseverhaltens und der damit verbundenen Spannbildung der metallischen Rückelektrode für die P3 Strukturierungslinie. Für die in der vorliegenden Arbeit präsentierten Weißlichtinterferometrieaufnahmen wurde das Modell ContourGT 3D Optical Profiler der Bruker Corporation verwendet.

3.2.1.3 Rasterelektronenmikroskopie

Die Rasterelektronenmikroskopie (REM) ist ein bildgebendes Verfahren, das zur detaillierten Untersuchung der Oberflächenstruktur und -morphologie von Materialien verwendet wird. Im Gegensatz zur Lichtmikroskopie, die sichtbares Licht nutzt, verwendet das REM einen fokussierten Elektronenstrahl, um hochauflösende Bilder von Proben zu erzeugen.

Bei der Rasterelektronenmikroskopie wird zunächst ein Elektronenstrahl durch beispielsweise eine Wolframfilamentkathode erzeugt und mittels Anode sowie hohen Spannungen von bis zu 30 kV beschleunigt. Der Elektronenstrahl wird weiter durch elektromagnetische Linsen sehr präzise fokussiert und durch Spulen rasterförmig auf der Probenoberfläche bewegt. Durch Wechselwirkungen zwischen den Elektronen und den Atomen der Probe werden unterschiedliche Signale erzeugt. Die für die Oberflächentopographie wichtigen sekundären Elektronen entstehen dabei durch die inelastische Streuung von Primärelektronen des Elektronenstrahls. Die sekundären Elektronen werden von Detektoren erfasst und die resultierenden elektrischen Signale zur Darstellung der Oberflächenstruktur verarbeitet.

In der vorliegenden Arbeit wurden REM-Messungen zur genauen Untersuchungen der von der Laserstrukturierung resultierenden Oberflächen in Gräben der Strukturierungslinien und anliegenden Bereichen verwendet. Um das statische Aufladen nicht leitfähiger Materialsichten zu vermeiden, wurde für einige Messungen eine 3 nm dicke Platinschicht in einem kleinen Kathodenzerstäubungsbeschichtungssystem (EM ACE200, Leica Microsystems) abgeschieden. Des Weiteren wurde für die Untersuchung der Perowskit-Halbleiterschichten lediglich 5-10 keV als Beschleunigungsspannung verwendet, um Degradationseffekte zu vermeiden. Für die REM-Messungen wurde in der vorliegenden Arbeit ein Elektronenmikroskop des Modells LEO Gemini 1530 von Carl Zeiss AG verwendet.

3.2.1.4 Energiedispersive Röntgenspektroskopie

Die Energiedispersive Röntgenspektroskopie (EDX) wird häufig in Kombination mit der Rasterelektronenmikroskopie verwendet und gibt Auskunft über die elementare Zusammensetzung der Materialien bzw. deren Oberflächen. Das Verfahren beruht dabei auf der Wechselwirkung von Röntgenstrahlen mit den Elektronen der Atome des Materials und den auftretenden charakteristischen Röntgenemissionen.

Für die Energiedispersive Röntgenspektroskopie wird ein Elektronenstrahl auf das Probenmaterial fokussiert, der Elektronen der inneren Schalen der Atome des Probenmaterials herausschlägt. Diese nun freien Energieniveaus der Elektronen

werden von Elektronen aus höheren Energieniveaus unter Abgabe der überschüssigen Energie in Form von Röntgenstrahlen wieder aufgefüllt. Die Energien der Röntgenstrahlen sind dabei einzigartig für jedes Element. Durch die Detektion der Röntgenstrahlen, dem Wandeln in elektrische Signale und die anschließende Analyse der Intensität und Maxima im Energiedispersionspektrum wird die Korrelation zu vorhandenen Elementen ermöglicht.

In der vorliegenden Arbeit wurde durch die energiedispersive Röntgenspektroskopie die Qualität der Laserstrukturierung insbesondere hinsichtlich vollständiger Entfernung der jeweils abzutragenden Materialschichten beurteilt. Für die Durchführung der Messungen wurde ein integriertes EDX-System des REM (LEO Gemini 1530, Carl Zeiss AG) genutzt.

3.2.2 Elektrische Charakterisierung

In diesem Abschnitt werden die für die Charakterisierung der elektrischen Kenngrößen genutzten Verfahren erläutert. Dabei dienen die Charakterisierungsverfahren sowohl zur quantitativen Bestimmung der Kenngrößen der Solarzellen und Solarmodule, als auch zur qualitativen Identifikation von Defekten, Materialinhomogenitäten oder Schichtdickenunterschieden.

3.2.2.1 Stromdichte-Spannungsmessung

Stromdichte-Spannungsmessungen (J - V) sind ein zentrales Verfahren zur Bestimmung der elektrischen Eigenschaften von Solarzellen und Solarmodulen, da durch die sich daraus ergebenden Stromdichte-Spannungskennlinien zahlreiche charakterisierende Kenngrößen direkt ablesbar oder leicht ableitbar sind, wie es in Kapitel 2.1.2 beschrieben wurde. Die Messungen werden unter Standardtestbedingungen (STC) durchgeführt, wobei diese die Parameter der Beleuchtung, Temperatur und Luftmasse festlegen, um eine hohe Vergleichbarkeit und Reproduzierbarkeit der Ergebnisse zu gewährleisten. Die Beleuchtung entspricht dabei dem AM1.5G-Spektrum, das das globale Sonnenspektrum für die Transmission durch das 1,5-fache der Luftmasse der Erde beschreibt, was einem Einfallswinkel von $48,2^\circ$ und einer Lichtintensität von 1000 W m^{-2} entspricht. Zudem werden die PV-Elemente konstant auf $25 \text{ }^\circ\text{C}$ gehalten.

In der vorliegenden Arbeit wurden die J - V -Messungen mit einem Einlampensolarsimulator des Typs Oriol Sol3A von Newport durchgeführt, der eine Xenon-Lampe verwendet. Die Lichtintensität wurde mithilfe einer zertifizierten Silizium-Referenzsolarzelle mit einem KG5-Filter, ebenfalls von Newport, kalibriert. Die Einstellung der Temperatur der Solarzellen auf STC-Bedingungen erfolgte über ein im Probenhalter integriertes Peltier-Element sowie einem damit verbundenen

Temperatursensor und Microcontroller. Für die Solarmodule wurden die Messungen dagegen ohne Kühlung bei nominaler Betriebstemperatur durchgeführt (englisch *Nominal Operating Condition Temperature*, NOCT). Damit auch Aussagen über die Bauteilhysterese für mehrere Solarzellen aber auch gegenüber Solarmodulen vergleichbar waren, wurde die konstant gewählte Scanrate von 600 mV s^{-1} für Solarzellen auf Solarmodule mit der Anzahl der vorhandenen Solarzellenstreifen multipliziert und übernommen. Da es für Perowskit-PV-Elemente häufig zu dem sogenannten Light-Soaking-Effekt kommt, also der Verbesserung des Wirkungsgrads mit steigender Beleuchtungsdauer, wurden jeweils mehrere Messungen in kurzen zeitlichen Abständen durchgeführt und das beste Ergebnis dargestellt. Weiterhin wurde für die Messungen der Kurz- und Langzeitstabilität des Wirkungsgrads die Methode der Lastensprünge (englisch *Perturb and Observe*) zum Bestimmen des Maximum Power Points verwendet.

3.2.2.2 Externe Quanteneffizienz

Die externe Quanteneffizienz (EQE) beschreibt den wellenlängenabhängigen Anteil der auf ein photoaktives Material einfallenden Photonen, die durch die Erzeugung eines Elektron-Loch-Paares, deren Dissoziation und letztlich deren erfolgreiche Extraktion zum erzeugten Strom beitragen. Dementsprechend wird für die Bestimmung der $EQE(\lambda)$ die Anzahl der extrahierten Elektronen pro Wellenlänge $N_e(\lambda)$ sowie die Anzahl der einfallenden Photonen pro Wellenlänge $N_\gamma(\lambda)$ gemessen. Die $EQE(\lambda)$ ergibt sich somit zu:

$$EQE(\lambda) = \frac{N_e(\lambda)}{N_\gamma(\lambda)} = \frac{hc J(\lambda)}{e\lambda\Delta\lambda \phi_L(\lambda)} \quad (2.57)$$

Dabei lässt sich $N_e(\lambda)$ auch als die Ladungsträgerstromdichte $J(\lambda)$ geteilt durch deren Ladung e und $N_\gamma(\lambda)$ auch als Verhältnis der spektralen Strahlungsintensität $\phi_L(\lambda)$ zu der wellenlängenabhängigen Energie des jeweiligen Photons E_λ ausdrücken. Verwendet man für die spektrale Strahlungsintensität das Standardsonnenspektrum AM1.5G kann durch eine EQE-Messung auch die Kurzschlussstromdichte der Solarzelle ermittelt werden. Für die Kurzschlussstromdichte mittels EQE-Messung gilt dann:

$$J_{SC, EQE} = \int_0^\infty \frac{e\lambda}{hc} EQE(\lambda) \phi_L(\lambda) d\lambda \quad (2.58)$$

Da für diese Methode zur Bestimmung der Kurzschlussstromdichte keine Fläche eingeht, stellt sie insbesondere für Solarzellen, deren Fläche mittels Depositionsmasken definiert werden und größere Toleranzen aufweisen, eine genauere Alternative dar.

Für die in der vorliegenden Arbeit durchgeführten EQE-Messungen wurde das PVE300 EQE-System der Bentham Instruments Ltd genutzt. Das System integriert eine Xenon-Kurzbogen- und eine Halogen-Lampe als Leuchtquellen und ermöglicht mittels Monochromator die Aufteilung des Spektrum in 10 nm Intervallen zur Beleuchtung der Solarzelle. Die spektrale Strahlungsintensität wird dabei mittels Silizium-Solarzelle kalibriert. Je nach gewählter Schattenmaske werden $0,5 \text{ mm}^2$ bis 1 mm^2 der Fläche der Solarzellen bei der Messung beleuchtet. Da die dabei erzeugten Ströme sehr gering ausfallen, wird zu deren Verstärkung ein Lock-In-Verstärker sowie ein Chopper mit einer Frequenz von etwa 580 Hz verwendet.

3.2.2.3 Laserstrahlinduzierte Strommessung

Die laserstrahlinduzierte Strommessung (englisch *Light Beam Induced Current Measurement*, LBIC) ermöglicht die orts aufgelöste Untersuchung der Stromerzeugungs- und Extraktionseffizienz von PV-Bauteilen durch die sukzessive Beleuchtung eines kleinen Teilbereichs der Bauteilfläche mittels Laserstrahl. Durch das Auftragen der resultierenden Ströme über die Positionskordinaten können durch Inhomogenitäten bei der Stromerzeugung und -extraktion auf Defekte, Schichtdickenunterschiede und Veränderungen der Materialqualität als auch auf die Qualität der laserstrukturierten Verschaltungslinien geschlossen werden.¹²⁹

Bei einer LBIC-Messung wird ein fein fokussierter Laserstrahl zur Beleuchtung eines kleinen Teilbereichs der Solarzelle oder des Solarmoduls genutzt. Es entsteht bei ausreichender Photonenenergie ein Elektron-Loch-Paar im Absorbermaterial, welches bei geeignetem Aufbau und Qualität der Solarzelle getrennt, extrahiert und als Strom aufgezeichnet wird. Durch sukzessives Abrastern der Probe wird eine Karte des ortsabhängigen Stroms erstellt, welche anschließend qualitativ als auch quantitativ ausgewertet werden kann.¹³⁰

Eine schematische Darstellung des für die vorliegende Arbeit aufgebauten und verwendeten LBIC-Systems ist in **Abbildung 3.3** gezeigt. Der Laserstrahl wurde dabei von einer 530 nm Laserdiode erzeugt, deren Leistung durch ein Laserleistungsmessgerät überwacht und durch den Strom- und Temperaturregler eingestellt werden konnte. Der Strahl wurde anschließend umgelenkt und 3 cm oberhalb des PV-Bauelements auf eine Strahltaillenbreite in der Fokusebene (Höhe der Absorberschicht) von etwa $50 \mu\text{m}$ fokussiert. Das PV-Bauelement wurde auf einem automatisierten X-Y-Positioniersystem befestigt, durch das transparente Substrat beleuchtet und auf der Materialseite kontaktiert. Aufgrund der sehr geringen resultierenden Ströme wurde ein Lock-In-Verstärker (SR830, Stanford Research Systems) und ein Chopper-Rad (Thorlabs Inc.) bei einer Frequenz von 470 Hz verwendet, um das Signal-Rausch-Verhältnis zu verbessern. Die Aufzeichnung und Auswertung der Daten wurden durch ein Labview-Skript

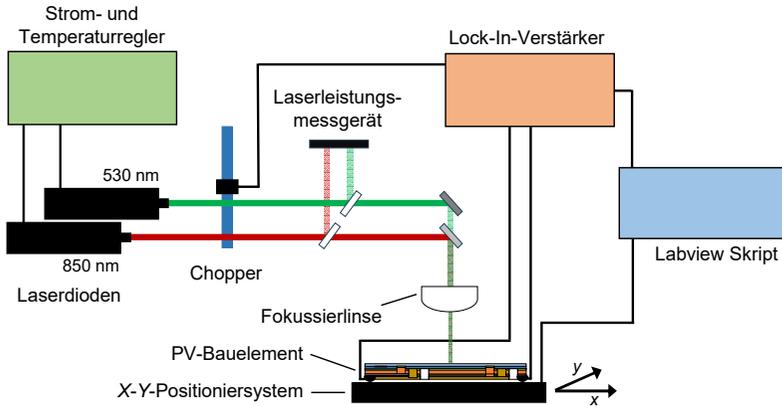


Abbildung 3.3. Schematische Darstellung des verwendeten Aufbaus für Laserstrahlinduzierte Strommessungen (LBIC). Der Aufbau umfasst zwei Laserquellen, die mittels Strom- und Temperaturregler sowie durch die Laserleistungsüberwachung eingestellt werden. Die Laserstrahlen treffen nach deren Fokussierung substratseitig auf das PV-Bauelement. Die resultierenden Ströme werden durch den Lock-In-Verstärker gemessen und mittels Skript aufgezeichnet. Das Abrastern der Probe wird durch ein X-Y-Positioniersystem mit $< 10 \mu\text{m}$ Positionierungstoleranz ermöglicht.

durchgeführt. Die Auflösung wurde aufgrund der Dauer der Messungen meist durch die gewählte Rastereinstellung limitiert und entsprach, wenn nicht explizit im Text beschrieben, $0,2 \text{ mm}$ in X-Richtung und $0,5 \text{ mm}$ in Y-Richtung. Für Messungen unverkapselter PV-Bauelemente wurde eine Stickstoffströmung auf die Probe gerichtet, um Degradationsprozesse aufgrund der Umgebungsluft zu verlangsamen. Für die Messung der Tandem-PV-Bauelemente war zur Differenzierung der beiden unterschiedlichen Absorberschichten die Verwendung eines zweiten Lasers mit größerer Wellenlänge (850 nm) notwendig.¹³¹

3.2.2.4 Photolumineszenz

Durch Photolumineszenz-Messungen (PL) können wichtige elektronische und optische Eigenschaften von Halbleitermaterialien, wie Defekte und Rekombinationsmechanismen, qualitativ und quantitativ bestimmt werden. Bei der Photolumineszenz wird das Material durch Bestrahlung mit Licht einer Energie, die größer ist als die der Bandlücke der Absorberschicht, angeregt, woraufhin es unter anderem zur strahlenden Rekombination der Ladungsträger und der Emission von Photonen der Bandlückenenergie kommt. Diese emittierten Photonen werden detektiert und analysiert, um Rückschlüsse auf die Qualität und Zusammensetzung des Materials zu ziehen. Während die zeitlich aufgelöste Messung der

Photolumineszenzintensität nach einem Anregungspuls die Bestimmung der Lebensdauerkonstanten der Ladungsträger sowie Rückschlüsse über die dominanten Rekombinationsmechanismen erlaubt, wurde in der vorliegenden Arbeit ein bildgebendes Verfahren im Gleichgewichtszustand verwendet. Dabei wird die gesamte Probenfläche durch eine Lichtquelle geeigneter Wellenlänge dauerhaft angeregt und das PL-Signal in Abhängigkeit der Position durch eine hochauflösende Kamera aufgenommen. Dadurch kann auf Defekte der funktionalen Materialschichten, sowie auf Schichtdickenunterschiede oder Gradienten in der chemischen Zusammensetzung geschlossen werden.

Für die in der vorliegenden Arbeit durchgeführten PL-Aufnahmen wurde eine Quantalux sCMOS 2.1 Megapixel Kamera von Thorlabs Inc. verwendet. Die Proben wurden mit einer blauen LED (470 nm) angeregt, wobei die Kamera vom Anregungslicht durch einen 665 nm Langpassfilter (Edmund Optics Inc.) abgeschirmt wurde. Je nach Bandlückenenergie wurden ein 760 nm Langpassfilter oder ein 775 nm Kurzpassfilter (Edmund Optics Inc.) genutzt, welche auf einem bewegten Rad vor der Kamera montiert waren.

3.2.2.5 Transferlängen-Methode

Die Transferlängen-Methode (TLM) erlaubt eine präzise Analyse der elektrischen Widerstände die in Verschaltungslinien von elektrischen Dünnschicht-Bauteilen auftreten und ermöglicht so die Abschätzung der damit verbundenen Gesamtleistungsverluste.¹³² Durch die TLM wird der (spezifische) Kontaktwiderstand des hergestellten elektrischen Kontakts quantifiziert, wobei durch die dazugehörige Transferlängen-Theorie die nicht-lineare Veränderung des resultierenden Kontaktwiderstands bei Variation der geometrischen Maße des Kontakts beschrieben wird (vergleiche Kapitel 2.1.5).⁸⁶

Bei der TLM wird der Schichtstapel der Solarzelle oder des Solarmoduls verwendet. Durch die Nutzung eines abweichenden Layouts für die Laserstrukturierung (siehe **Abbildung 3.4a**) ergeben sich mehrere getrennte Rückkontaktstreifen der Länge l . Die Rückkontaktstreifen sind durch die P2-Strukturierungslinien mit einer Breite von w_{P2} elektrisch mit der Frontelektrode verbunden, wobei der Abstand dieser Strukturierungslinien jeweils von der ersten Strukturierungslinie w_n entspricht. Durch das Anlegen einer Spannung an jeweils 2 Rückkontaktstreifen und das Messen des resultierenden Stroms kann der Gesamtwiderstand R_T ermittelt werden. Die Permutation aller möglichen Rückkontaktstreifenpaare verringert bei der weiteren Auswertung den statistischen Fehler des Ergebnisses.^{82,133} Der Widerstand R_T ergibt sich entsprechend der schematischen Zeichnung zu:

$$R_T = R_C + R_{FE}(w) + R_C = \frac{R_{FE}^{\square}}{w_n} + 2 R_C \quad (2.59)$$

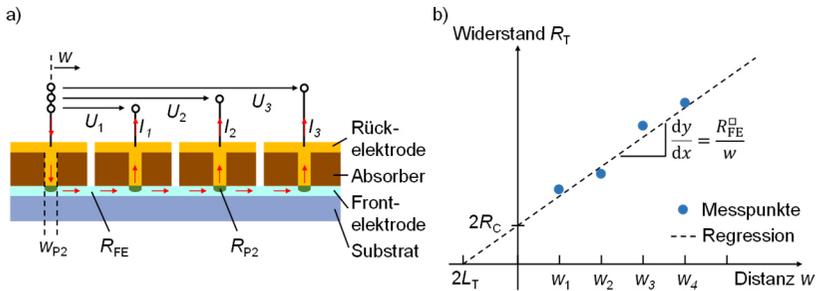


Abbildung 3.4. Experimentelle und rechnerische Ermittlung des Kontaktwiderstands R_{P2} der Verschaltungslinien von Dünnschicht-PV mittels Transferlängen-Methode. (a) Layout der funktionalen Schichten zur experimentellen Messung des elektrischen Gesamtwiderstands R_T . Die Breite der Kontaktierungslinie entspricht w_{P2} , die Distanz zum Messpunkt n ist w_n und die Länge der Streifen ist als l definiert. Die Messung der Ströme beim Anlegen einer Spannung ermöglicht die Berechnung von R_T . (b) R_T aufgetragen über die Distanz w . Der Schnittpunkt der Regressionsgeraden mit der y -Achse ergibt den doppelten Kontaktwiderstand $2 \cdot R_C$ und mit der x -Achse die doppelte Transferlänge $2 \cdot L_T$.

Durch das Auftragen der $R_{T, n}$ und Berechnung der Regressionsgerade ergeben sich grafisch als Schnittpunkt mit der y -Achse der doppelte Kontaktwiderstand R_C und als Schnittpunkt mit der x -Achse die doppelte Transferlänge L_T (siehe **Abbildung 3.4b**). Der spezifische Kontaktwiderstand kann wiederum durch die in Kapitel 2.1.5 vorgestellten Berechnungen bestimmt werden.

Die für die TLM-Messungen verwendeten Layouts der Laserstrukturierung werden im jeweiligen Ergebniskapitel beschrieben. Für das Messen der Strom-Spannungskurven wurde ein SMU-Gerät des Modells Series 2601 Sourcemeter von Keithley im Modus für Vierleitermessungen verwendet.

3.2.3 Optische Charakterisierung

Die optische Charakterisierung ist für optoelektronische Bauelemente wie Solarzellen essenziell, um die Funktionalität einzelner Schichten hinsichtlich des Transmissions-, Reflexions- und Absorptionsgrads bewerten und verbessern zu können. Zudem ist insbesondere für BAPV- oder BIPV-Bauelemente zudem der optische Eindruck einschließlich der Farbwirkung ein weiteres wichtiges Qualitätskriterium. Im Folgenden werden deshalb die in der vorliegenden Arbeit genutzten Verfahren zur optischen Charakterisierung der PV-Bauelemente vorgestellt.

3.2.3.1 UV-VIS-NIR-Spektrophotometrie

Die UV-Vis-NIR-Spektrophotometrie ist eine grundlegende Methode zur Untersuchung der optischen Eigenschaften von Flüssigkeiten, Feststoffen und Dünnschichten wie die Lichtabsorption, -transmission und -reflexion über ein breites Spektrum von ultraviolett (UV) bis nahinfrarotem (NIR) Licht. Die Charakterisierungsmethode ermöglicht für PV-Bauelemente das Optimieren der Schichten und Schichtdicken hinsichtlich minimaler Reflexions- und Absorptionsverluste und maximaler resultierender Wirkungsgrade des PV-Bauelements. Zusätzlich erlaubt die Feststellung des wellenlängenabhängigen Absorptionskoeffizienten des Halbleiters die Berechnung der Bandlücke E_G .

Für die UV-Vis-NIR-Spektrophotometrie wird das Licht einer polychromatischen Lichtquelle, wie beispielsweise einer Deuteriumlampe für den UV-Bereich und einer Halogenlampe für den sichtbaren und NIR-Bereich, durch einen Monochromator in spektrale Bereiche variabler Breite zerlegt. Das Licht trifft anschließend auf die Probe, wobei je nach Versuchsanordnung meist der Transmissions- und Reflexionsgrad gemessen werden. Durch den Zusammenhang des Transmissionsgrads $T(\lambda)$, des Reflexionsgrads $R(\lambda)$ sowie des Absorptionsgrads $A(\lambda)$, lässt sich auf letzteren durch Bestimmung der anderen beiden Größen schließen:

$$A(\lambda) = 1 - R(\lambda) - T(\lambda) \quad (2.60)$$

Durch das Einsetzen dieser optischen Kenngrößen in das Lambert-Beer-Gesetz und dem Umstellen nach dem Absorptionskoeffizienten $\alpha(\lambda)$ lässt sich dieser ebenfalls für die Schichtdicke d des Materials ermitteln:

$$\alpha(\lambda) = \frac{\ln\left(\frac{1 - R(\lambda)}{T(\lambda)}\right)}{d} \quad (2.61)$$

Um bei den Messungen Messungenauigkeiten durch Streuung und diffuser Reflexion zu vermeiden, wird meist eine Ulbricht-Kugel verwendet, die eine stark diffus reflektierende weiße Beschichtung an der Innenseite aufweist. Während bei der Transmissionsmessung die Probe an einer kleinen Öffnung an der Vorderseite fixiert ist, ist sie bei der Reflexionsmessung an der Rückseite befestigt. Durch zwei Lichtfallen kann der direkt transmittierte Teil des Lichts $T_S(\lambda)$ von dem diffus transmittierten Teil $T_D(\lambda)$, als auch der spiegelnd reflektierte $R_S(\lambda)$ vom diffus reflektierten Teil $R_D(\lambda)$ differenziert werden. Aus den Kenngrößen lässt sich der Streuanteil bei Transmission $D_T(\lambda)$ und Reflexion $D_R(\lambda)$ bestimmen:

$$D_T(\lambda) = \frac{T_D(\lambda)}{T_D(\lambda) + T_S(\lambda)} \tag{2.62}$$

$$D_R(\lambda) = \frac{R_D(\lambda)}{R_D(\lambda) + R_S(\lambda)}$$

Für die in der vorliegenden Arbeit durchgeführten UV-Vis-NIR-Spektrophotometriemessungen wurde ein Spektrophotometer vom Typ Lambda 1050 (PerkinElmer) verwendet. Zur Kalibrierung wurden eine Silizium- sowie eine InGaAs Photodiode genutzt.

3.2.3.2 Farbmessung

Die Bestimmung des Farbeindrucks der PV-Bauelemente ist insbesondere für BAPV und BIPV essenziell, um eine hohe Akzeptanz der Öffentlichkeit gewährleisten zu können. Wie bereits in Kapitel 2.3 ist die Farbwahrnehmung des Menschen ein komplexer physiologischer und psychologischer Prozess. Entsprechend kann der Farbeindruck des reflektierten oder transmittierten Lichts eines Objekts nur indirekt über die für einen Normalbeobachter definierten Spektralwertfunktionen $\bar{x}(\lambda)$, $\bar{y}(\lambda)$ und $\bar{z}(\lambda)$ ermittelt werden. Die Berechnung der CIE 1931 XYZ Farbraum Koordinaten wurde dabei bereits in Kapitel 2.3.2 aufgezeigt. Da dieser Farbraum eine Diskrepanz zwischen den Abständen der Farbkoordinaten und den vom Normalbeobachter wahrgenommenen Farbkontrasten aufweist, werden die Koordinaten in den CIE 1976 Lab Farbraum transformiert. Die Umrechnung der Koordinaten X, Y und Z in die Helligkeitskoordinate L^* , die Grün-Rot-Koordinate a^* und die Gelb-Blau-Koordinate b^* erfolgt durch:

$$L^* = 116 \cdot f\left(\frac{Y}{Y_n}\right) - 16 \tag{2.63}$$

$$a^* = 500 \cdot \left(f\left(\frac{X}{X_n}\right) - f\left(\frac{Y}{Y_n}\right) \right) \tag{2.64}$$

$$b^* = 200 \cdot \left(f\left(\frac{Y}{Y_n}\right) - f\left(\frac{Z}{Z_n}\right) \right) \tag{2.65}$$

$$f(t) = \begin{cases} \sqrt[3]{t} & , \quad t > \left(\frac{6}{29}\right)^3 \\ \frac{841}{108} \cdot t + \frac{4}{29} & , \quad t \leq \left(\frac{6}{29}\right)^3 \end{cases} \tag{2.66}$$

Für die Umrechnung muss weiter beachtet werden, dass die Normvalenzen X_n , Y_n und Z_n für unterschiedliche Normalbeobachter je nach definiertem Blickwinkel und

je nach Lichtart voneinander abweichen. Für die vorliegende Arbeit wurde ein Winkel von 10° und die Lichtart D65 gewählt, sodass $X_n = 94,811$, $Y_n = 100$ und $Z_n = 107,304$ gilt.

In der vorliegenden Arbeit wurde zum Messen des transmittierten Lichtspektrums das UV-Vis-NIR-Spektrophotometer Lambda 1050 (Perkin Elmer) verwendet. Alle weiteren Kalkulationen wurden automatisiert durch ein selbst geschriebenes Matlab Skript ausgeführt. Zudem wurde der Farbwiedergabeindex R_a (englisch *Color Rendering Index*) durch den Vergleich mit den 8 definierten Testfarben ermittelt.

4 Laserbasierte monolithische Verschaltung vollständig gedampfter Perowskit- Solarmodule

Im folgenden Kapitel wird die Aufskalierung von Perowskit-Solarzellen zu – Solarmodulen demonstriert, welche durch das Vergrößern gedampfter Flächen funktionaler Schichten sowie die laserbasierte Herstellung monolithischer serieller Verschaltung einzelner Zellstreifen ermöglicht wird, und die Voraussetzung für einen erfolgreichen Technologietransfer der Perowskit-PV in die Industrie darstellt.

Zunächst wird die Notwendigkeit einer effizienteren Aufskalierung von Perowskit-Photovoltaik anhand des Stands der Technik aufgezeigt und hierfür relevante Verfahren und Strategien vorgestellt. Davon ausgehend werden die Bearbeitungsparameter der Laserstrukturierung zur Herstellung der monolithischen seriellen Verschaltung detailliert optimiert und die Qualität der resultierenden Strukturierungslinien einzeln qualitativ sowie deren charakteristischer elektrischer Widerstände quantitativ evaluiert. Auf diesen Ergebnissen aufbauend wird eine theoretische Optimierung des Modullayouts zur Minimierung der Aufskalierungsverluste durchgeführt und die Herstellung defektfreier aufgedampfter Schichten und die Integration der Verschaltungslinien für größere Flächen demonstriert. Anschließend werden die gewonnenen Erkenntnisse genutzt, um effiziente Perowskit-Solarmodule mit zuvor unerreichten minimalen Aufskalierungsverlusten herzustellen. Die Qualität der Ergebnisse wird zuletzt durch den Vergleich mit anderen Aufskalierungsstrategien für Perowskit-PV bestätigt.

*Die Konzeption, Umsetzung und Analyse der Ergebnisse wurden von mir als Hauptverantwortlicher dieses Forschungsvorhabens und ausführender Wissenschaftler der experimentellen Untersuchungen maßgeblich erarbeitet. Besonderer Betonung bedarf es der Unterstützung von T. Abzieher bezüglich dampfbasierter Abscheideverfahren und dazu geteilter Expertise, sowie von S. Bergfeld für den Erfahrungsaustausch zur Laserbearbeitung von Dünnschichten. Weitere unterstützende Beiträge sind in Tabelle 8.2 dargestellt. Ein Teil der gewonnenen Erkenntnisse wurde in Form einer Erstautorpublikation in der Fachzeitschrift *Progress in Photovoltaics* (D. Ritzer et al.¹³⁴) veröffentlicht. Die entsprechenden Inhalte sind dabei mit Erlaubnis von John Wiley & Sons mittels Copyright Clearance Center reproduziert, adaptiert und übersetzt worden.*

4.1 Aufskalierung von Perowskit-Solarmodulen

Perowskit-Photovoltaik stellt aufgrund der in Kapitel 2.1.3 vorgestellten exzellenten optoelektronischen Eigenschaften des Halbleiters den wohl vielversprechendsten Kandidaten für Photovoltaik der nächsten Generation dar.^{135–137} Tsutomu Miyasakas Entdeckung der Perowskit-basierten Solarzelle im Jahr 2009 folgte eine zügig an Popularität und Intensität gewinnende Erforschung, weshalb es möglich war, dass laborgefertigte Perowskit-Solarzellen nach weniger als eineinhalb Jahrzehnten bereits Wirkungsgrade von über 26% erreichen.^{27,71,138} Während die Technologie also grundsätzlich mit Wirkungsgraden etablierter Photovoltaiktechnologien wie kristallinem Silizium (c-Si), Kupfer-Indium-Gallium-Diselenid (CIGS) und Cadmiumtellurid (CdTe) mithalten kann, stellt die erfolgreiche Kommerzialisierung Forschung und Industrie vor Herausforderungen. So wird neben der Verbesserung der Langzeitstabilität von Perowskit-Photovoltaik und der Substitution toxischer Elemente funktionaler Schichten insbesondere das effiziente Aufskalieren zu industriell-relevanten Dimensionen als Schlüsselaufgabe betrachtet.^{48,139–142} Dabei benötigt effizientes Aufskalieren optimierte Prozesse, die exzellente Reproduzierbarkeit, Homogenität und Ausbeute unabhängig von der hergestellten Fläche gewährleisten und somit einen einfachen Prozesstransfer von Laboren zu industriellen Fertigungsstraßen ermöglichen.^{139,143}

Aufgrund des niedrigen Investitionsbedarfs als auch des einfachen und schnellen Testens von Materialkombinationen ist heute die Rotationsbeschichtung die gängigste Methode, um funktionale Schichten der Perowskit-Solarzellen in Forschungslaboren herzustellen.^{144–146} Die Übertragung der entwickelten Rotationsbeschichtungen auf größere Flächen ist dagegen eingeschränkt, da sich einerseits die Prozessbedingungen für größere Substratdimensionen ändern und eine Neuoptimierung der Parameter und Herstellungsschritte erforderlich machen und andererseits die auf das Substrat wirkende Zentripetalkraft die Drehgeschwindigkeit limitiert.^{147–149} Alternativen bieten dabei skalierbare lösungsbasierte Abscheidetechniken wie Klingenbeschichtung, Schlitzdüsenbeschichtung oder Tintenstrahldruck, welche bereits zu Beginn der eigenen Arbeit (2019/2020) die Skalierbarkeit von Perowskit-PV auf Flächen von bis zu 804 cm² bewiesen hatten.^{147,150} Dabei demonstrierten beispielsweise Deng *et al.* ein Perowskit-Solarmodul mit 29,5 cm² Aperturfläche und 18,6% stabilisiertem Wirkungsgrad, dessen Perowskit-Halbleiterschicht mittels Klingenbeschichtung hergestellt wurde.¹⁵¹ Weitere Aufskalierung der Fläche auf 144 cm² gelang Di Giacomo *et al.* unter Verwendung des Schlitzdüsenverfahrens, wobei in Kombination mit einem optimierten Trocknungsprozess 13,8% stabilisierter Wirkungsgrad erreicht wurde.¹⁵² Darüber hinaus demonstrierte Panasonic (Panasonic Corporation) ein Perowskit-Solarmodul mit 804 cm² Aperturfläche und

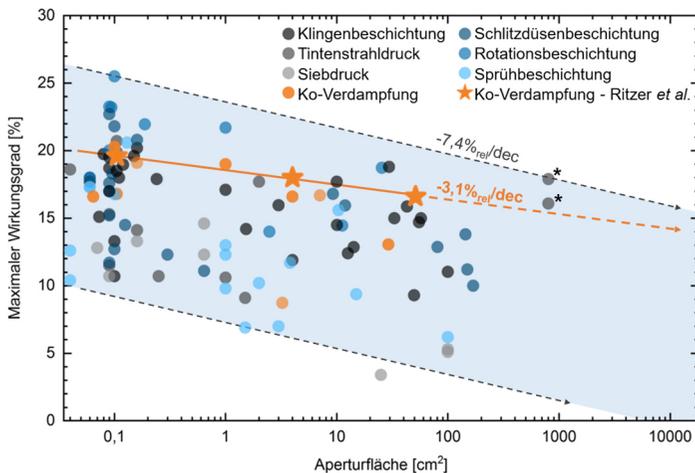


Abbildung 4.1. Maximaler Wirkungsgrad als Funktion der Aperturfläche für Perowskit-Solarzellen und -module, die mit verschiedenen skalierbaren Abscheidetechniken hergestellt wurden. Datenpunkte mit Asterisk (*) stellen aktuelle Solarmodulrekorde aus der Industrie dar. Die Aufskalierungsverluste von Perowskit-Solarzellen (typischerweise $0,1 \text{ cm}^2$) zu Modulen liegen bei $7,4\%_{\text{rel}}$ pro Größenordnung der aufskalierten Fläche ($\%_{\text{rel}} \text{ dec}^{-1}$). Übersetzte Abbildung aus Ritzer *et al.*^{134,153}

17,9% Wirkungsgrad.⁷² Trotz dieser Ergebnisse stellt die effiziente Aufskalierung eine der größten Herausforderung der Perowskit-Technologie dar, was sich durch die deutliche Abnahme der veröffentlichten Rekordwirkungsgrade bei Vergrößerung der Bauteildimensionen zeigt und in **Abbildung 4.1** veranschaulicht wird.¹³⁴ Dabei ist der Wirkungsgrad als Funktion der Aperturfläche für Perowskit-Solarzellen und – Solarmodule, welche unter Verwendung unterschiedliche Abscheidetechniken hergestellt wurden, dargestellt. Der Vergleich der Wirkungsgradrekorde für beliebig hergestellte Solarzellen und -module zu Beginn der eigenen Arbeit macht die hohen Aufskalierungsverluste von $7,4\%_{\text{rel}}$ pro Größenordnung (dec) aufskalierten Fläche deutlich.

Die Verringerung von Aufskalierungsverlusten der Perowskit-Photovoltaiktechnologie erfordert den Fokus auf zwei grundsätzliche Aspekte der Herstellung. Zum einen wird eine homogene und defektfreie Abscheidung aller funktionaler Schichten und zum anderen die Herstellung von seriellen Verschaltungen der Solarzellstreifen zu Modulen mit optimalen elektrischen Eigenschaften bei gleichzeitig minimaler lateraler Dimension notwendig.¹³⁹ Hinsichtlich der Schichtherstellung bieten lösungsbasierte Abscheidetechniken zwar potentiell hohen Durchsatz mittels Rolle-zu-Rolle-Verfahren, jedoch stellen die

inhärenten Prozesseigenschaften große Herausforderungen beim Aufskalieren dar.^{154,155} Insbesondere die Wechselwirkung von Lösemittel, Feststoffen, Substrat und Umgebung verhält sich mit zunehmender Fläche komplexer, was die präzise Einstellung von Prozessparametern und deren Überwachung schwierig macht.⁷⁴ Der zusätzliche Einsatz von Additiven und die Manipulation der Trocknungs- und Kristallisationsprozesse durch Gas- oder Lösemittelbeigabe (Quenching) kann dabei die Homogenität auf größeren Flächen verbessern.^{74,156,157} Diese Modifikationen führen aber letztendlich wiederum zu höherer Prozesskomplexität und erschweren spätere Optimierungen.¹⁵⁸

Als Alternative zu lösungsbasierten Abscheidetechniken rückte die Ko-Verdampfung von organischen und anorganischen Salzverbindungen zur Herstellung von Perowskit-PV in den Vordergrund, die zur Zeit des Verfassens der eigenen Arbeit nachweislich ausgezeichnete Homogenität für Flächen bis 21 cm² bot.^{67,159} Dabei sind bis heute dampfbasierte Abscheideverfahren die vorherrschende Herstellungstechnologie für die überwiegende Mehrheit kommerzialisierter optoelektronischer Bauteile, insbesondere für Dünnschicht-PV-Technologien. Die dominante Stellung dampfbasierter Verfahren in der Industrie beruht neben der guten Homogenität bei Materialzusammensetzung und Schichtdicke auch auf der hohen Produktionsausbeute.¹⁶⁰ Hinsichtlich der Anwendung zur Herstellung von Perowskit-Absorbern konnten mit diesem Verfahren bereits 2020 Wirkungsgrade von über 20% im Labor erreicht werden.¹⁶¹ Ebenso konnten unterschiedliche Zusammensetzungen von Absorbern realisiert werden. Beispielsweise wurden ko-verdampfte Multi-Kationen-Perowskite,¹⁶² welche Verbesserungen bei chemischer Stabilität und elektrischer Leistung bieten,⁵² Perowskit-Halbleiterschichten mit großer Bandlücke für Anwendung in Tandem-Solarzellen,¹⁶³ und Perowskit-Halbleiterschichten ohne Blei mit dadurch verringerter Toxizität demonstriert.¹⁶⁴ Trotz der intensiven Nutzung der Ko-Verdampfung in der Industrie, der gezeigten Diversität herstellbarer Perowskit-Absorber und exzellenter Skalierbarkeit existierten zum Zeitpunkt des Verfassens der eigenen Arbeit nur wenige Berichte über dampfbasierte Perowskit-Solarmodule. Zum einen demonstrierten Abzieher *et al.* (2019) einen vollständig aufgedampften Schichtstapel, wobei das resultierende Solarmodul mit einer Aperturfläche von 3,2 cm² einen Wirkungsgrad von 8,8% erreichte.¹⁶⁵ Ein Jahr später konnten Li *et al.* (2020) bereits ein Solarmodul mit 29,2 cm² Aperturfläche mit einem Wirkungsgrad von 13,1% vorzeigen.¹⁶⁶

Neben den Herausforderungen der Aufskalierung des Beschichtungsverfahrens erfordern Dünnschichtsolarmodule eine monolithische Verschaltung der Solarzellenstreifen, damit auftretende Widerstandsverluste aufgrund der begrenzten Leitfähigkeit des transparenten leitfähigen Oxids (TCO) nicht zu groß werden. Durch diese notwendige Verschaltung der Solarmodule resultieren jedoch,

wie in Kapitel 2.1.4 vorgestellt, zwei neue Verlustmechanismen, (1) der Kontaktwiderstand an den Verbindungsstellen zwischen Front- und Rückkontaktschicht und (2) die Verringerung der photovoltaisch aktiven Fläche.^{164,167} Um diese Aufskalierungsverluste für Dünnschichtsolarmodule zu minimieren, bedarf es der Auswahl und Optimierung geeigneter Strukturierungsmethoden. Die Realisierung der drei Strukturierungslinien einer solchen monolithischen Verschaltung (P1, P2, P3) erfolgt typischerweise durch mechanisches Ritzen,⁸⁷ chemisches Ätzen, Lift-Off-Verfahren,^{73,168} Laserstrukturierung⁸⁶ (auch Laserritzen) oder einer Kombination dieser Techniken. Während sich das mechanische Ritzen für die Herstellung der P2 und P3 Linien in CIGS-Solarmodulen durchgesetzt hat,⁸³ da die Laserstrukturierung für CIGS Schichtstapel zu temperaturbedingten Kurzschlüssen führt,^{88,89} hat sich dagegen für die Herstellung von Dünnschichtsolarmodulen auf Basis von amorphem Silizium (a-Si) oder Cadmiumtellurid (CdTe) die Laserstrukturierung als Industriestandard durchgesetzt.^{84,85} Dabei bietet die Laserstrukturierung Vorteile in Bezug auf hohe Durchsatzraten durch schnelle Scangeschwindigkeiten, geringem Werkzeugverschleiß sowie Wartungsaufwand und ist aufgrund der kontaktlosen Verarbeitung mit flexiblen Substraten kompatibel.¹⁶⁹ Entsprechend ist es von zentralem Interesse, die Laserstrukturierung von Perowskit-Solarmodulen zu optimieren und so Verschaltungen minimaler lateraler Weite sowie guten elektrischen Eigenschaften zu ermöglichen.^{73,170} Darauf abzielend haben Di Giacomo *et al.* (2020) gezeigt, dass die elektrischen Widerstandsverluste bei einer Aufskalierung der Aperturfläche um mehr als zwei Größenordnungen auf nur etwa 3%_{rel} begrenzt werden können.⁸⁶ Darüber hinaus haben Rakocevic *et al.* (2020) mittels der Entwicklung eines Punktkontakt-Verschaltungsschemas demonstriert, dass der Verlust in aktiver Fläche auf lediglich 1%_{rel} für ein 4 cm² Solarmodul minimiert werden kann.⁸⁷ Für diese und andere Studien wurden zur Strukturierung der Perowskit-Solarmodule allerdings mehr als eine Laserquelle, und häufig einschließlich Piko- und Femtosekunden-Laser eingesetzt.^{86,171–174} Während die kürzeren Pulszeiten in der Regel einen selektiveren Laserabtrag ermöglichen, steigt die Komplexität und damit auch der Preis solcher Laserquellen deutlich an.^{82,175} Aus Gründen der Wirtschaftlichkeit werden deshalb in Produktionsstätten kommerzialisierter Dünnschicht-PV-Technologien (z.B. a-Si oder CdTe) Laserquellen mit Pulszeiten im Nanosekundenbereich eingesetzt. Einen industriell realistischeren Ansatz verfolgend haben Ren *et al.* (2020) unter Verwendung einer einzigen 532 nm Laserquelle mit Pulsen im Nanosekundenbereich die Herstellung aller drei Verbindungslinien (P1, P2, P3) für ein rotationsbeschichtetes Perowskit-Solarmodul demonstriert und erzielten einen Wirkungsgrad von 18,7% für 25 cm² Aperturfläche bei 90,8% geometrischem Füllfaktor *GFF* und einem Referenzsolarzellenwirkungsgrad von 22%.¹⁷⁶ Des Weiteren haben Li *et al.* (2020) mittels 1064 nm ns Laserquelle für ein 7,1 cm² Perowskit-Solarmodul mit ko-

verdampfter Perowskit-Halbleiterschicht und lösungsbasierter Abscheidung der Transportschichten einen Wirkungsgrad von 16,7% bei 90,7% GFF und einem Referenzsolarzellenwirkungsgrad von 19,1% realisieren können.¹⁷⁷ Während diese Ergebnisse beeindruckende Fortschritte für Perowskit-Photovoltaik darstellen, zeigt die Diskrepanz der realisierten Aufskalierungsverluste von 14,8%_{rel} (Ren *et al.*) und 12,6%_{rel} (Li *et al.*) zu den theoretisch möglichen 3%_{rel} den weiteren Bedarf einer Optimierung sowohl der Laserstrukturierungs- als auch der Abscheideprozesse deutlich auf.

Ausgehend von diesen vielversprechenden Resultaten für Perowskit-Solarmodule soll als Antwort auf die noch bestehenden Herausforderungen der hohen Aufskalierungsverluste ein Prozess entwickelt werden, der diese auf Werte der etablierten PV-Technologien wie c-Si, CIGS und CdTe reduziert. Dabei wird im folgenden Kapitel durch die Kombination vollständig dampfbasierter Abscheidetechniken und Laserstrukturierung mittels Nanosekundenlaserquelle, beides etablierte Industrieprozesse für andere Dünnschichttechnologien, die einfache Vergrößerung der Bauteilfläche für Perowskit-PV demonstriert und die Übertragbarkeit in kommerzielle Produktionslinien gewährleistet. Um ideale monolithische Verschaltungen mit guten elektrischen Eigenschaften und minimaler Größe in den ko-verdampften Schichten zu ermöglichen, werden die Strukturierungslinien zunächst individuell und später gesamtheitlich optimiert. Die resultierenden Parameter werden anschließend genutzt, um das Modullayout auf minimale Aufskalierungsverluste durch elektrische Widerstände oder photovoltaisch inaktiver Fläche zu optimieren. Die Aufskalierung auf größere Flächen wird in einem nächsten Schritt mittels Photolumineszenzaufnahmen und laserstrahlinduzierten Strommessungen analysiert, um die homogene und defektfreie Herstellung der funktionalen Schichten und Verschaltungen zu überwachen. Unter Anwendung des entwickelten Prozesses zur Herstellung von Perowskit-Solarmodulen soll zuletzt die effiziente Aufskalierung um mehr als 2 Größenordnungen demonstriert werden, wobei die Aufskalierungsverluste erstmals die etablierter PV-Technologien erreichen soll.

Die Zielsetzungen des Kapitels lauten somit:

- 4-I. Entwicklung und Optimierung der Laserstrukturierung vollständig gedampfter Schichten opaker Perowskit-Photovoltaik mittels industriell-relevantem Nanosekundenlaser zur Herstellung monolithischer Verschaltungslinien mit exzellenten elektrischen Eigenschaften
- 4-II. Theoretische Optimierung der Modul- und Verschaltungsgeometrie von Perowskit-Solarmodulen auf Basis der erzielten Verschaltungseigenschaften zur Minimierung der Aufskalierungsverluste von Solarzelle zu -modul

- 4-III. Homogene, defektfreie und funktionale Aufskalierung vollständig gedampfter Schichten opaker Perowskit-Photovoltaik und integrierter laserstrukturierter monolithischer Verschaltungen
- 4-IV. Herstellung laserstrukturierter vollständig gedampfter Perowskit-Solarmodule mit Aufskalierung um mehrere Größenordnungen, hohen Wirkungsgraden und insbesondere minimalen Aufskalierungsverlusten

4.2 Optimierung der Strukturierungsprozesse für monolithisch verschaltete Perowskit-Solarmodule

Den Ausgangspunkt bildet die vollständig gedampfte Schichtstapelsequenz aus Indiumzinnoxid (ITO), 2,20,7,70-Tetra(N,N-di-p-tolyl)amino-9,9-spirobifluoren (spiro-TTB), Methylammoniumblei-Iodid ($\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$), Fulleren (C_{60}), Bathocuproin (BCP) und Gold (Au), mit der für eine Solarzelle mit $0,105 \text{ cm}^2$ Aperturfläche einen Wirkungsgrad von bis zu 19,5% erreicht werden konnte.¹⁷⁸ Da es sich um eine neuartige Kombination aus funktionalen Schichten, Herstellungsverfahren und Laserquelle handelt, wird im Folgenden eine detaillierte Optimierung der Verschaltung mittels Anpassung der Laserstrukturierungsparameter durchgeführt. Die Optimierung der Laserparameter zielt dabei auf die vollständige Ablation des Materials in den Strukturierungslinien, die Vermeidung der Entstehung von Materialänderungen und -defekten, sowie auf gute resultierende elektrische Eigenschaften ab. Für die Quantifizierung und der nachfolgenden Optimierung der elektrischen Eigenschaften ist es notwendig, die Strukturierungslinien individuell mithilfe dreier unterschiedlicher Layouts zu charakterisieren. Die optimierten Strukturierungslinien werden anschließend wieder zur funktionalen Verschaltung zusammengeführt, wobei durch präzise Positionierung im monolithischen Herstellungsprozess die laterale Weite der Verschaltung minimiert wird. Während die Laserstrukturierungsparameter sowie der Positionierungsprozess als direkter Ausgangspunkt zur Herstellung von Verschaltungen in Perowskit-Solarmodulen dient, werden die gemessenen charakteristischen Größen der Verschaltungen durch die Optimierung des Modullayouts mittels theoretischem Verlustmodell zur Minimierung entstehender Aufskalierungsverluste genutzt. Die Nutzung der vollständig vakuumprozessierten Schichtherstellung sowie des neu konzipierten

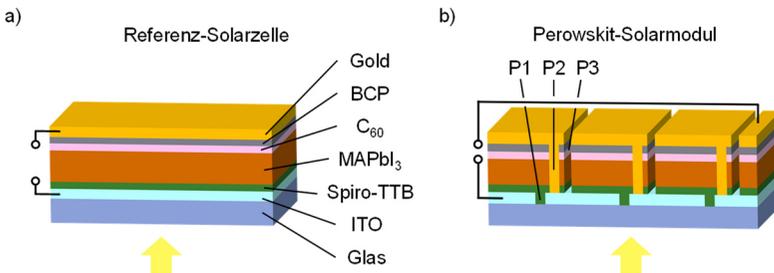


Abbildung 4.2. Schematische Darstellung des (a) vollständig gedampften Schichtstapels der Referenz-Solarzellen und b) des angestrebten monolithisch verschalteten Perowskit-Solarmoduls auf Basis des Schichtstapels der Referenz-Solarzelle. Die Strukturierungslinien P1, P2 und P3 sollen mittels optimiertem Laserstrukturierungsprozess hergestellt werden.

und auf in der Industrie etablierten kostengünstigen Komponenten basierten Laserstrukturierungssystemen ermöglicht dabei den späteren Prozesstransfer in industrielle Fertigungslinien.

4.2.1 Strukturierungsprozess der Frontkontaktschicht – P1

Die Strukturierungslinie P1 einer monolithischen Verschaltung sorgt für die elektrische Isolierung der Frontkontaktschichten (-elektroden) nebeneinanderliegender Zellstreifen im Solarmodul. Im Fall des hier genutzten Schichtstapels entspricht dies der Unterteilung des transparenten leitfähigen Oxids ITO. Dabei soll eine vollständige Ablation des ITOs in der Strukturierungslinie erreicht werden, ohne dass Materialänderungen oder –defekte im umliegenden oder darunterliegenden Material auftreten.

Die Lichtmikroskopieaufnahmen in **Abbildung 4.3a** geben dabei einen fundamentalen Einblick auf den Effekt unterschiedlicher maximaler Pulsspitzenfluenzen F_p bei gleichbleibender Laserstrukturierungs-geschwindigkeit v . Während es bei niedriger Pulsspitzenfluenz zu keiner sichtbaren Materialablation oder -änderung kommt, führt eine Pulsspitzenfluenz von $2,0 \text{ J cm}^{-2}$ bereits zu einer deutlichen Ablation (siehe **Abbildung 4.3a und b**). Eine weitere Steigerung führt zu eintretenden Materialschäden des Glassubstrats, wie in **Abbildung 4.3c** gezeigt, was aufgrund entstehender Rauigkeiten zu Kurzschlüssen in späteren Dünnschichtmodulen führen kann. Da eine rein optische Analyse nicht ausreicht, um gute Resultate für Solarmodule sicherzustellen, werden die Strukturierungslinien des Weiteren auf elektrische Eigenschaften sowie Ablationsqualität untersucht.

Die charakteristische elektrische Eigenschaft der P1 ist ein idealerweise unendlicher Widerstand zwischen den Frontkontaktschichten nebeneinanderliegender

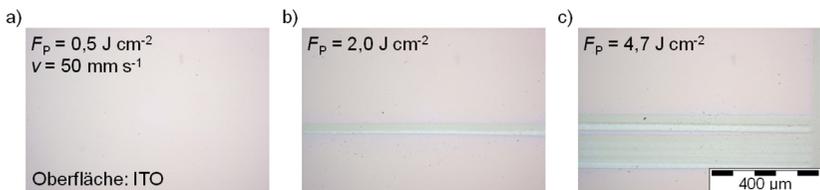


Abbildung 4.3. Resultate der Laserstrukturierung des transparenten Frontkontakts ITO bei Verwendung unterschiedlicher Pulsspitzenfluenzen. Lichtmikroskopische Aufnahmen der Strukturierungslinie (entspricht P1) zeigen (a) die unvollständige ITO-Ablation bei zu niedrigen, (b) eine ideale, defektfreie ITO Ablation für geeignete und (c) Schäden im Substrat bei zu hohen Pulsspitzenfluenzen. Angepasste Darstellung aus Ritter *et al.*¹⁵³

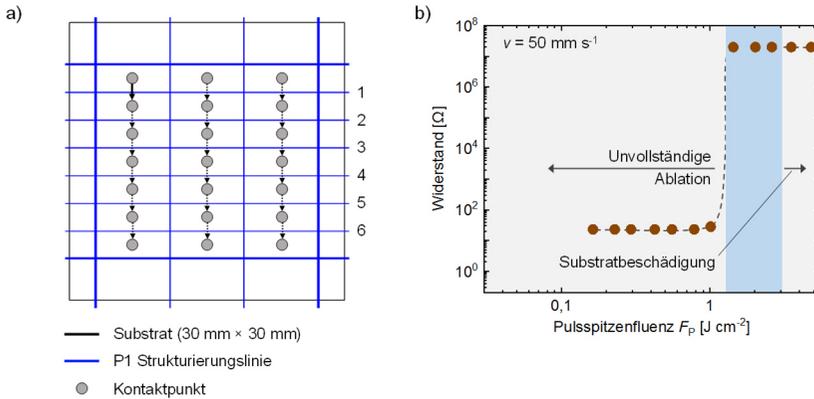


Abbildung 4.4. (a) Laserstrukturierungslayout und Kontaktierungsschema zur Erfassung der charakteristischen Widerstände der Laserstrukturierungslinie P1. Der untersuchte Prozessparameter (Pulsspitzenfluenz) wird für die Ablation der Ritzlinien 1-6 variiert. Alle anderen Laserstrukturierungslinien werden mit vorher festgelegten Standardparametern hergestellt, um die Messungen nicht zu beeinflussen. (b) Optimierung des charakteristischen Widerstands der P1 durch Anpassung der maximalen Pulsspitzenfluenz. Die hervorgehobenen Bereiche veranschaulichen das optimale Prozessfenster. Angepasste und übersetzte Darstellung aus Ritzer *et al.*^{134,153}

Zellstreifen, dessen Größe Einfluss auf den Parallelwiderstand fertiger Solarmodule hat. Zur Bestimmung des Widerstands für unterschiedliche Pulsspitzenfluenzen wurde das Layout aus **Abbildung 4.4a** konzipiert. Die Ergebnisse der Messungen sind in **Abbildung 4.4b** dargestellt und zeigen, dass es bis $F_P \leq 1,1 \text{ J cm}^{-2}$ zu keiner oder unvollständiger Ablation des ITOs kommt, da nur ein geringer Widerstand zwischen den Streifen der Frontkontaktschicht messbar ist. Ab $F_P \geq 1,5 \text{ J cm}^{-2}$ erreicht der Widerstand den Maximalwert des Messgeräts und damit den Zielwert der P1 Laserstrukturierung. Da aus den vorherigen lichtmikroskopischen Aufnahmen (siehe **Abbildung 4.3c**) bekannt ist, dass $F_P \geq 4 \text{ J cm}^{-2}$ zu Schäden im Glassubstrat führt, sollte die Pulsspitzenfluenz so gewählt werden, dass in beide Richtungen eine Parametervarianz beispielsweise aufgrund der Leistungsschwankungen der Laserquelle nicht zum Funktionalitätsverlust der P1 führt. Entsprechend ist der Soll-Wert auf $F_P = 2 \text{ J cm}^{-2}$ festgelegt, was zu einer resultierenden Breite der P1 von $\approx 40 \mu\text{m}$.

Neben der elektrischen Eigenschaft der P1 Strukturierungslinie ist es für die Abscheidprozesse der weiteren Schichten des Solarmoduls essenziell, dass die Oberfläche eine geringe Rauigkeit und keine Residuen, Verunreinigungen oder Defekte aufweisen. Die Analyse der Topografie einer optimierten P1

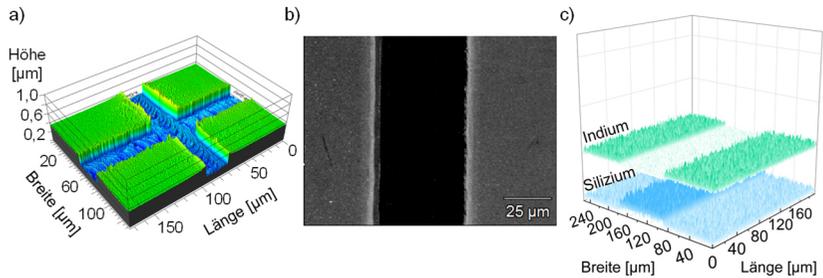


Abbildung 4.5. Untersuchung der selektiven Ablation des Frontkontakts ITO in der P1 Strukturierungslinie mittels (a) Weißlichtinterferometriemessung, (b) Rasterelektronenmikroskopieaufnahme und (c) Energiedispersiver Röntgenspektroskopiemessung relevanter Elemente. Die Amplitude zeigt die Anzahl an aufgenommenen Elementsignalen im Messzeitraum. Angepasste und übersetzte Darstellung aus Ritzer *et al.*^{134,153}

Strukturierungslinie mittels Weißlichtinterferometer in **Abbildung 4.5a** zeigt dabei nur geringe Rauigkeiten des Glassubstrats in dem P1 Graben ($R_q \leq 50$ nm) als auch des umliegenden ITOs ($R_z \leq 400$ nm). Die REM-Aufnahme (**Abbildung 4.5b**) bestätigt zudem, dass die Oberfläche frei von Residuen und Verschmutzungen ist. Die selektive Entfernung des ITOs ist ebenfalls mittels energiedispersiver Röntgenspektroskopiemessung (EDX) demonstriert (**Abbildung 4.5c**), welche eine deutliche Verringerung der Signalanzahl des für ITO stellvertretenden Elements Indium als auch eine deutliche Steigerung der Signalanzahl für Si (stellvertretend für Glas) im P1 Graben zeigt. Entsprechend sind alle gesetzten Ziele für eine optimierte P1 Strukturierungslinie für Perowskit-Solarmodule erfüllt.

4.2.2 Strukturierungsprozess der Absorberschicht – P2

Die Strukturierungslinie P2 verbindet zwei nebeneinanderliegende Zellstreifen des Solarmoduls, indem im monolithischen Herstellungsprozess eine Verbindung der Front- und Rückelektrode durch Ablation aller dazwischenliegender Schichten ermöglicht wird. Im Fall der vollständig gedampften Module entspricht dies der Ablation von Spiro-TTB, Perowskit-Halbleiterschicht, C_{60} und BCP zwischen ITO und Gold. Dabei ist hier insbesondere eine residuenfreie Ablation der Zwischenschichten ohne eine Materialänderung im darunterliegenden ITO sicherzustellen.

Wie in den Lichtmikroskopieaufnahmen in **Abbildung 4.6** zu sehen, reichen für die Ablation in diesem Fall deutlich geringere Pulsspitzenfluenzen F_P für $v = 33$ mm s^{-1} aus. Die nachträglich aufgedampfte Goldschicht erhöht dabei den visuellen Kontrast zwischen Oberflächen unterschiedlicher Rauigkeit, was unvollständige Ablation gut

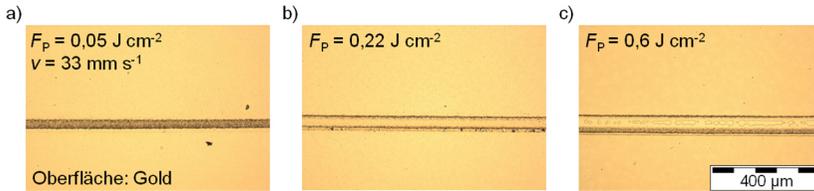


Abbildung 4.6. Resultate der Laserstrukturierung der funktionalen Schichten zwischen Front- und Rückkontakt bei Verwendung unterschiedlicher Pulsspitzenfluenzen. Lichtmikroskopische Aufnahmen der Strukturierungslinie (entspricht P2) zeigen (a) die unvollständige Ablation bei zu niedrigen, (b) eine ideale, rückstandsfreie Ablation für geeignete und (c) Schäden im ITO-Frontkontakt bei zu hohen Pulsspitzenfluenzen. Angepasste Darstellung aus Ritzer *et al.*¹⁵³

erkennen lässt. Eine unvollständige Ablation ist dabei für $F_P = 0,05 \text{ J cm}^{-2}$ zu erkennen. Die Zwischenschichten sind also noch vorhanden und ein Kontakt zwischen Front- und Rückkontakt nicht möglich. Für $F_P = 0,22 \text{ J cm}^{-2}$ ist eine homogene, rückstandsfreie P2 Strukturierungslinie zu sehen. Dagegen ist für höhere Pulsspitzenfluenz n eine Materialänderung des ITOs anhand der mittigen Defekte innerhalb der Strukturierungslinie evident.

Die elektrische Zielgröße der P2 Strukturierungslinie ist ein möglichst geringer Kontaktwiderstand R_C , welcher, wie in Kapitel 3.2.2.5 vorgestellt, mittels Transferlängen-Methode bestimmt werden kann. Das hier verwendete, angepasste Laserstrukturierungslayout ist in **Abbildung 4.7a** dargestellt und der resultierende Kontaktwiderstand R_C für unterschiedliche Pulsspitzenfluenzen F_P in **Abbildung 4.7b** aufgetragen. Dabei zeigt sich ein Trend der logarithmischen Abnahme des Kontaktwiderstands im Bereich von $F_P = 0,05 \text{ J cm}^{-2}$ bis $F_P = 0,2 \text{ J cm}^{-2}$, bevor ein gleichbleibender niedriger $R_C \approx 0,7 \Omega$ (längenspezifischer Kontaktwiderstand $\rho_C \approx 0,7 \Omega \text{ cm}$) erreicht wird. Dies deutet auf eine zunehmende Ablationsqualität hin, bis es schließlich zur vollständigen Ablation der Zwischenschicht kommt. Da aus den vorherigen Beobachtungen bekannt ist, dass eine zu starke Steigerung der Pulsspitzenfluenz zur Materialänderung oder Ablation des ITOs führt, wird der Soll-Wert auf $F_P = 0,3 \text{ J cm}^{-2}$ festgelegt, was eine etwa $40 \mu\text{m}$ breiten P2 Strukturierungslinie ergibt. Während der erreichte Kontaktwiderstand für die weiteren Experimente dieses Kapitels ausreichend klein ist, sei erwähnt, dass eine größere Breite der P2 Strukturierungslinie oder eine Verbesserung der Leitfähigkeit der Front- oder Rückkontaktschicht zu einer weiteren Verringerung des Widerstands führen würde.

Die weitere Analyse der Oberflächen in und neben den so gefertigten P2 Strukturierungslinien soll wieder sicherstellen, dass diese für die defektfreie Herstellung der Dünnschichtsolarmodule geeignet sind. Die

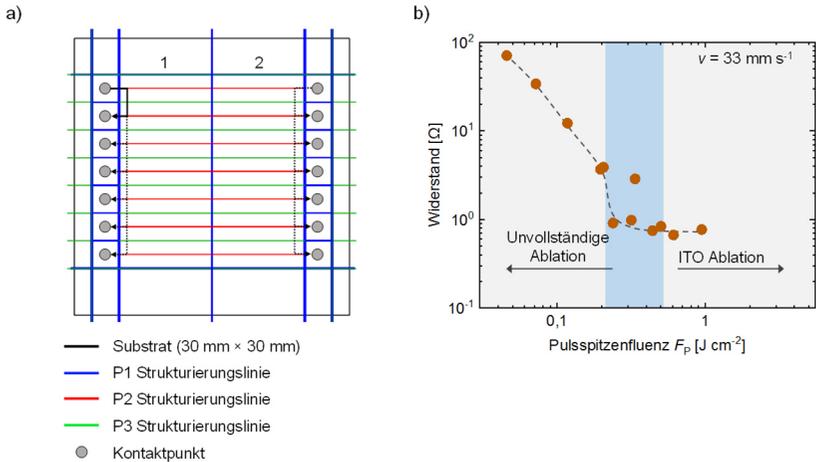


Abbildung 4.7. (a) Laserstrukturierungslayout und Kontaktierungsschema zur Erfassung der Kontaktwiderstände der Laserstrukturierungslinie P2. Der untersuchte Prozessparameter (Pulsspitzenfluenz) wird für die Ablation der Ritzlinien 1 und 2 variiert. Alle anderen Laserstrukturierungslinien werden mit vorher festgelegten Standardparametern hergestellt, um die Messungen nicht zu beeinflussen. (b) Optimierung des Kontaktwiderstands der P2 durch Anpassung der Pulsspitzenfluenz. Die hervorgehobenen Bereiche veranschaulichen das optimale Prozessfenster. Angepasste und übersetzte Darstellung aus Ritzer *et al.*^{134,153}

Weißlichtinterferometrieaufnahme in **Abbildung 4.8a** zeigt wie zuvor eine geringe Rauigkeit ($R_q \leq 100 \text{ nm}$). Auffällig ist dabei, dass der Graben eine leichte Rundung an den Grabenrändern besitzt, was auf unvollständige Ablation der Zwischenschichten schließen lässt. Die breite, flache Grabenmitte ist dagegen rückstandsfrei ablatiert, wie es auch in der REM-Aufnahme in **Abbildung 4.8b** ersichtlich ist. Die EDX-Analyse der chemischen Elemente in **Abbildung 4.8c** zeigt zudem die klare Freilegung des Frontkontakts ohne dessen Ablation mittels deutlicher Verringerung der Blei Signalanzahl (Perowskit-Halbleiterschicht) und Steigerung der Indium Signalanzahl (ITO).

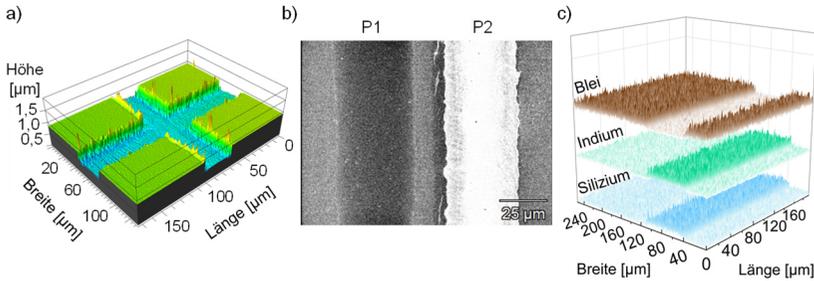


Abbildung 4.8. Untersuchung der selektiven Ablation der funktionalen Schichten bis zum Frontkontakt der P2 Strukturierungslinie mittels (a) Weißlichtinterferometriemessung, (b) Rasterelektronenmikroskopieaufnahme und (c) Energiedispersiver Röntgenspektroskopiemessung relevanter Elemente. Die Amplitude zeigt die Anzahl an aufgenommenen Elementsignalen im Messzeitraum. Angepasste und übersetzte Darstellung aus Ritzer *et al.*^{134,153}

4.2.3 Strukturierungsprozess der Rückkontaktschicht – P3

Die P3 Strukturierungslinie sorgt wiederum für die elektrische Isolierung der Rückkontaktschichten nebeneinanderliegender Zellstreifen der Solarmodule. Dies entspricht für die Herstellung der vollständig gedampften Module der Trennung der Goldschicht. Während die Trennung der Metallkontaktschicht mittels Laserstrukturierung bei CIGS zu kaum vermeidbarem Aufschmelzen und damit Kurzschlüssen führt, stellt dieser Strukturierungsprozess für Perowskit-Solarmodule ebenfalls eine in der Literatur häufig genannte Herausforderung dar. Dabei ist neben dem Aufschmelzen ebenfalls die Spanbildung und das Aufwölben des Rückkontakts eine häufig beobachtete Ursache für Kurzschlüsse.^{173,179}

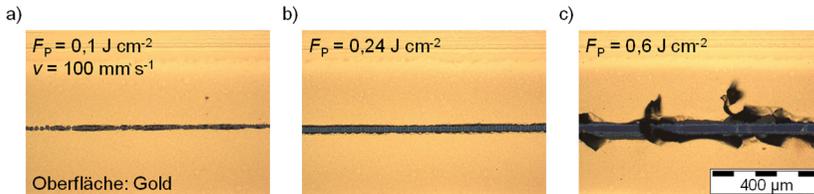


Abbildung 4.9. Resultate der Laserstrukturierung des Gold-Rückkontakts bei Verwendung unterschiedlicher Pulsspitzenfluenzen. Lichtmikroskopische Aufnahmen der Strukturierungslinie (entspricht P3) zeigen (a) die unvollständige Ablation bei zu niedrigen, (b) eine ideale, defektfreie Ablation für geeignete und (c) Spanbildung der Goldschicht bei zu hohen Pulsspitzenfluenzen. Angepasste Darstellung aus Ritzer *et al.*¹⁵³

Die lichtmikroskopischen Aufnahmen in **Abbildung 4.9** zeigen, dass für die Ablation der Goldschicht sehr geringe Pulsspitzenfluenzen F_P mit $v = 100 \text{ mm s}^{-1}$ ausreichen. Bereits für $F_P = 0,1 \text{ J cm}^{-2}$ ist eine dünne, undurchgängige P3 Strukturierungslinie zu sehen, welche für $F_P = 0,24 \text{ J cm}^{-2}$ eine homogene und defektfreie Qualität erreicht. Eine weitere Erhöhung der Pulsspitzenfluenz führt zu der erwähnten kritischen Spannbildung und dem großflächigen Aufwölben des Rückkontakts. Ein Aufschmelzen kann dagegen aufgrund der Kombination aus langer Pulsdauer, dünner Goldschicht und darunterliegender verdampfender organischer Schicht nicht beobachtet werden. Ein für die defektfreie Trennung von Metallkontaktschichten wichtiger Parameter ist ebenfalls das Überlappungsverhältnis zweier aufeinanderfolgender Laserpulse, welches abhängig von Strukturierungsgeschwindigkeit v , Pulsfrequenz und Pulsdurchmesser ist. Durch $v = 100 \text{ mm s}^{-1}$ ergibt sich ein idealer Rissfortsatz für die in dieser Arbeit genutzten Schichten.

Die charakteristische elektrische Eigenschaft der P3 Strukturierungslinie ist wiederum, ähnlich der P1, ein möglichst hoher Widerstand zwischen den Rückkontaktschichten nebeneinanderliegender Zellstreifen. Das verwendete Layout zur Bestimmung der resultierenden Widerstände ist in **Abbildung 4.10a** dargestellt. Die Ergebnisse in **Abbildung 4.10b** zeigen für kleine Pulsspitzenfluenzen einen geringen Widerstand und bestätigen damit die unvollständige Trennung der Goldschicht, wie es mittels der Lichtmikroskopieaufnahmen beobachtet wurde. Für Pulsspitzenfluenzen im Bereich $0,2 \text{ J cm}^{-2} \leq F_P \leq 0,4 \text{ J cm}^{-2}$ wird zuverlässig der Maximalwiderstand erreicht. Eine weitere Steigerung zeigt dann eine Streuung der resultierenden Widerstände, was auf die Kurzschlussbildung der Goldspäne nebeneinanderliegender Zellstreifen zurückzuführen ist. Entsprechend wird der Soll-Wert für die P3-Strukturierungslinie auf $F_P = 0,25 \text{ J cm}^{-2}$ festgelegt.

Die Detailanalyse der so entstehenden Oberfläche mittels Weißlichtinterferometrie in **Abbildung 4.11a** zeigt eine sehr geringe Rauigkeit in und neben dem P3 Graben ($R_q \leq 50 \text{ nm}$). Zudem sind keine Späne oder Aufwölben erkennbar. Eine rückstandslose Ablation der Goldschicht wird ebenfalls durch die REM-Aufnahme in **Abbildung 4.11b** (rechts im Bild) bestätigt. Zudem ist die sehr geringe Breite der Strukturierungslinie von nur $20 \mu\text{m}$ auffällig. Die Analyse der chemischen Elemente mittels EDX-Messung **Abbildung 4.11c** zeigt ebenfalls die hohe Qualität der Ablation der Goldschicht in der P3 Strukturierungslinie. Interessanterweise ist ebenfalls eine deutliche Ablation der Perowskit-Halbleiterschicht (Blei) und die Freilegung der ITO-Frontkontaktschicht (Indium) zu erkennen, was zusätzlich die Anfälligkeit zur Bildung von Kurzschlüssen erklärt, wenn nicht ohne Bildung von Metallspänen ablatiert wird.

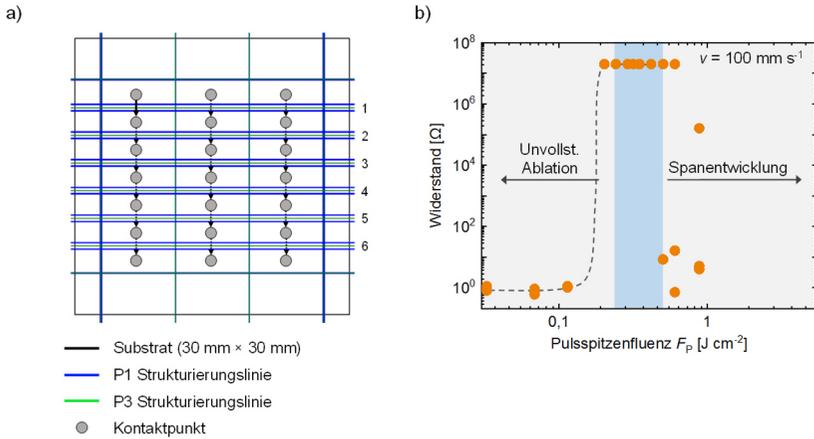


Abbildung 4.10. (a) Laserstrukturierungslayout und Kontaktierungsschema zur Erfassung der charakteristischen Widerstände der Laserstrukturierungslinie P3. Der untersuchte Prozessparameter (Pulsspitzenfluenz) wird für die Ablation der Ritzlinien 1-6 variiert. Alle anderen Laserstrukturierungslinien werden mit vorher festgelegten Standardparametern hergestellt, um die Messungen nicht zu beeinflussen. (b) Optimierung des charakteristischen Widerstands der P3 durch Anpassung der Pulsspitzenfluenzen. Die hervorgehobenen Bereiche veranschaulichen das optimale Prozessfenster. Angepasste und übersetzte Darstellung aus Ritzer *et al.*^{134,153}

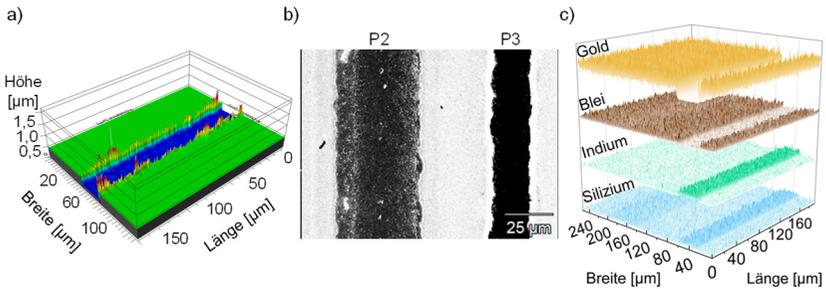


Abbildung 4.11. Untersuchung der selektiven Ablation des Gold-Rückkontakts der P3 Strukturierungslinie mittels (a) Weißlichtinterferometriemessung, (b) Rasterelektronenmikroskopieaufnahme und (c) Energiedispersiver Röntgenspektroskopiemessung relevanter Elemente. Die Amplitude zeigt die Anzahl an aufgenommenen Elementensignalen im Messzeitraum. Angepasste und übersetzte Darstellung aus Ritzer *et al.*^{134,153}

4.2.4 Ausrichtung der Verschaltungslinien im monolithischen Herstellungsprozess

Nach der vorherigen Optimierung der individuellen Herstellung der drei Laserstrukturierungslinien P1, P2 und P3 einer monolithischen Verschaltung sind geringe Aufskalierungsverluste durch geeignete elektrische Eigenschaften sowie eine geeignete resultierende Oberflächenbeschaffenheit für Dünnschichtmodule grundsätzlich sichergestellt. Die Funktion der seriellen Verschaltung wird dagegen erst durch die Anordnung der P1-P3 Strukturierungslinien im monolithischen Herstellungsprozess erreicht. Die Fläche der gesamten Verschaltung einschließlich der Abstände zwischen den Strukturierungslinien ist dabei photovoltaisch inaktiv und für einen weiteren Aufskalierungsverlustanteil verantwortlich. Entsprechend ist neben der geringen Breite der einzelnen Laserstrukturierungslinien die exakte Positionierung der Linien im monolithischen Herstellungsprozess essenziell.

Diese exakte Positionierung soll mittels Referenzmarkierung auf dem Glassubstrat, Kamerasystem und Software erreicht werden. Die Referenzmarkierungen, wie sie in dem beispielhaften Modullayout in **Abbildung 4.12a** in orange zu sehen sind, sind,

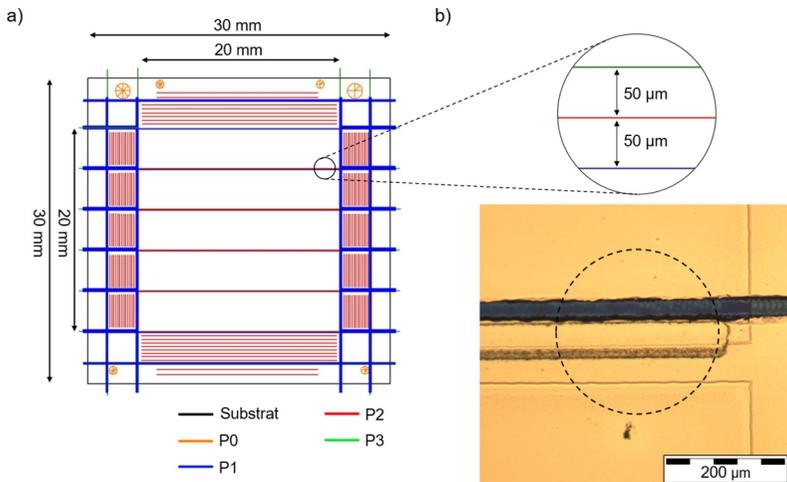


Abbildung 4.12. Konzept und Umsetzung der präzisen Verschaltungslinienpositionierung. (a) Laserstrukturierungslayout und Kontaktierungsschema für Solarmodule mit 4,0 cm² Aperturfläche bestehend aus 5 in Serie verschalteter Solarzellenstreifen. (b) Detailaufnahme des Laserstrukturierungslayouts der P1, P2 und P3 Verschaltungslinien (oben) und der erreichten Präzision für Verschaltungen im Solarmodul (unten). Die Verschaltungsbreite entspricht einem geometrischen Füllfaktor von 96,5%. Angepasste und übersetzte Darstellung aus Ritzer et al.¹⁵³

werden zunächst durch einen Laserstrukturierungsschritt hergestellt. Anschließend ermöglicht das Positionieren des Modullayouts einschließlich der P1, P2 und P3 Strukturierungslinien anhand der Referenzmarkierungen eine auch nach Abscheidung weiterer Materialschichten wiederholbare präzise Strukturierung. Der Versatz zwischen den Laserstrukturierungslinien wurde aufgrund der Breite der einzelnen Strukturierungslinien auf $50\ \mu\text{m}$ festgelegt. Die lichtmikroskopische Aufnahme der resultierenden funktionalen Verschaltung in **Abbildung 4.12b** zeigt die sehr hohe Positioniergenauigkeit der Laserstrukturierungslinien relativ zueinander mittels Kamerasystem sowie eine hohe Genauigkeit des Galvanometer-Scanners (Gesamttoleranz $< 30\ \mu\text{m}$). Die Strukturierungslinien der Verschaltung liegen somit praktisch direkt aneinander, wobei eine leichte Überlappung keinen relevanten Einfluss auf die elektrischen Eigenschaften hat. Die resultierende Verschaltungsbreite für die Zellen dieses $4\ \text{cm}^2$ Solarmoduls ($9\ \text{cm}^2$ Substratfläche) liegt bei nur $140\ \mu\text{m}$. Das entspricht für eine Zellstreifenbreite von $4\ \text{mm}$ einem geometrischen Füllfaktor, also dem prozentualen Anteil noch photovoltaisch aktiver Fläche, von $96,5\%$.

4.3 Parameterbasierte Optimierung der Modulgeometrie

Nachdem die Herstellung einer effizienten monolithischen Verschaltung einschließlich Positionierung demonstriert wurde und die resultierenden Eigenschaften bekannt sind, sollen nun die zu erwartenden theoretischen Aufskalierungsverluste abgeschätzt und optimiert werden. Das ist notwendig, da insbesondere die Zellbreite unterschiedlich mit den Verlustfaktoren der inaktiven Fläche und der Schichtwiderstände korrelieren (vgl. Gleichungen 2.37 und 2.42). Während eine ähnliche Korrelation zwischen den Verschaltungswiderstandsverlusten und der Breite der P2 Strukturierungslinie besteht, wird diese aufgrund der Limitationen des vorhandenen Lasersetups nicht weiter optimiert. Dies ist durch die minimal herstellbare Breite der P2 Strukturierungslinie begründet, welche bereits einen effizienten Ladungsträgertransport zwischen Front- und Rückkontaktschicht ermöglicht ($w_{P2} > L_T$), sodass es bei breiteren P2 nicht zu einer relevanten Verringerung des Widerstandes kommt (vgl. Gleichung 2.44).⁸⁶

Für die Simulation wird das Modell der Aufskalierungsverluste von Zelle zu Modul, wie in Kapitel 2.1.5 vorgestellt, in einem Matlab-Skript integriert. Die verwendeten Eingangsparameter sind in **Tabelle 4.1** dargestellt. Die Ergebnisse sind in **Abbildung 4.13** gezeigt, wobei zum besseren Verständnis sowohl die einzelnen Aufskalierungsverlustanteile als auch der Gesamtverlust in vier unterschiedlichen Graphen jeweils über Verschaltungsbreite (x-Achse) und Zellstreifenbreite (y-Achse) aufgetragen sind.

Abbildung 4.13a zeigt die relativen Aufskalierungsverluste aufgrund der Widerstände der Kontaktschichten. Dabei wird für den hier genutzten Schichtstapel lediglich der Frontkontakt ITO betrachtet, da der Flächenwiderstand der Goldschicht bereits mehrere Größenordnungen geringer als der der ITO-Schicht ist. Während die Verschaltungsbreite nur einen sehr geringen Einfluss auf entstehende Aufskalierungsverluste hat, ist eine deutliche Korrelation für die Zellstreifenbreite ersichtlich. Da breitere Zellen die effektive Wegstrecke bzw. den Serienwiderstand

Tabelle 4.1. Angenommene Eingangsparameter für Perowskit-Solarmodule zur parameterbasierten Optimierung der Modul- und Verschaltungsgeometrie basierend auf dem mathematischen Modell zur Berechnung der Aufskalierungsverluste aus Kapitel 2.1.5.

J_{MPP} [mA cm ⁻²]	V_{MPP} [V]	R_{FE}^0 [Ω cm ⁻¹]	R_{RE}^0 [Ω cm ⁻¹]	ρ_C [Ωcm]	w_a [cm]	w_i [μm]	w_{P2} [μm]	L_T [μm]
20,0	0,95	15,0	0,0	0,67	0,1 ≤ w_a ≤ 1,0	120 ≤ w_i ≤ 700	$w_i - 100$	160

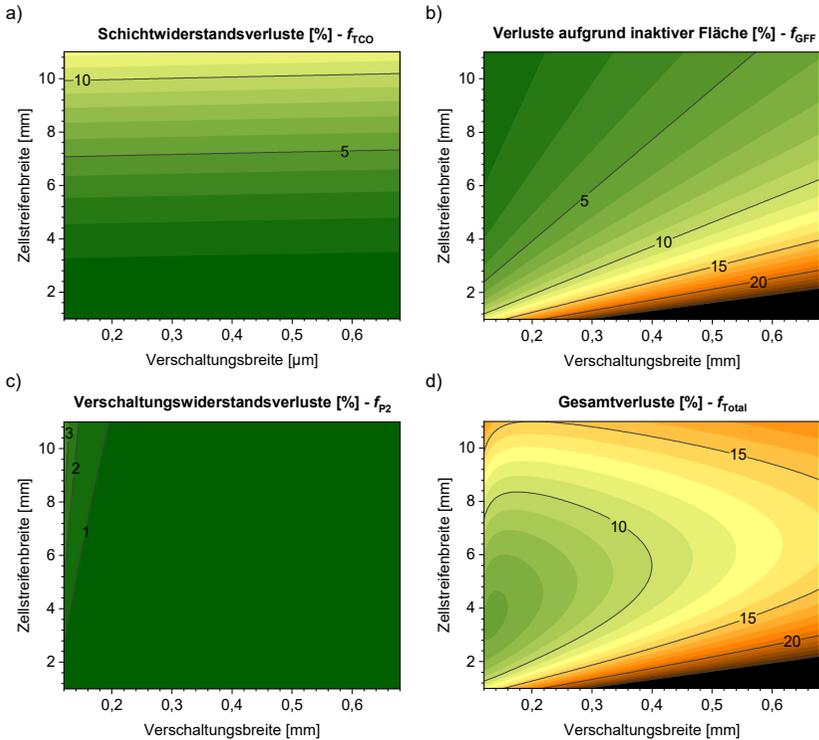


Abbildung 4.13. Relative Reduzierung des Wirkungsgrads für die Aufskalierung von Solarzellen zu n -modulen als Funktion der Verschaltungsbreite und Zellstreifenbreite. (a) Verluste aufgrund der Serienwiderstände der Front- und Rückkontaktschichten. (b) Verluste aufgrund notwendiger Verschaltungslinien und entsprechender Reduzierung aktiver Fläche. (c) Verluste aufgrund des Kontaktwiderstands zwischen Front- und Rückkontakt in der Verschaltungslinie P2. (d) Resultierende Gesamtverluste der Aufskalierung.

für Ladungsträger bis zu deren Rekombination erhöhen, steigen damit die Aufskalierungsverluste schnell an.

In **Abbildung 4.13b** sind die relativen Aufskalierungsverluste aufgrund photovoltaisch inaktiver Fläche durch die Verschaltung dargestellt. Dabei wird deutlich, dass diese vom Verhältnis von inaktiver Fläche (Verschaltungsbreite) zu Gesamtfläche (Zellstreifenbreite) abhängen. Entsprechend führt eine große Zellstreifenbreite bei geringer Verschaltungsbreite zu den geringsten Verlusten, wobei ersteres ein Zielkonflikt gegenüber der Minimierung der Widerstandsverluste des ITOs ergibt.

Abbildung 4.13c visualisiert die relativen Aufskalierungsverluste aufgrund des Kontaktwiderstands zwischen Front- und Rückelektrode. Dabei wurde für die Kalkulation angenommen, dass P2 die gesamte verfügbare Breite zwischen den Strukturierungslinien P1 und P3 einnimmt, also für steigende Verschaltungsbreiten ein größerer Kontakt zwischen ITO und Gold entsteht. Wie zuvor diskutiert, wurde ein niedriger Widerstand auch für die minimale Breite der P2 Strukturierungslinie erreicht. Entsprechend nimmt der Aufskalierungsverlust geringe Werte an und steigt erst für sehr große Zellbreiten und kleine Verschaltungsbreiten ($< 200 \mu\text{m}$) an.

Der resultierende Gesamtverlust ist in **Abbildung 4.13d** dargestellt. Die unterschiedlichen Korrelationen der einzelnen Verlustanteile führen dabei zu einem globalen Minimum, welches für die erreichte minimale Verschaltungsbreite von $140 \mu\text{m}$ bei $3,8 \text{ mm}$ Zellstreifenbreite liegt. Hierfür ergibt sich ein Gesamtaufskalierungsverlust von weniger als $5,8\%$. Eine Änderung der Eigenschaften der Kontaktschichten oder der Verschaltung führt dabei zu einer Verschiebung des Minimums. Geht man für einen Standardprozess von leicht höheren Fertigungs- bzw. Positioniertoleranzen aus und setzt die durchschnittlich erreichbare Verschaltungsbreite auf $160 \mu\text{m}$ fest, erhöht sich die optimale Zellstreifenbreite auf 4 mm und der Gesamtaufskalierungsverlust auf $6,0\%$. Aufgrund der leichteren Realisierbarkeit der höheren Verschaltungsbreite wird dieses Maß für die Strukturierungslayouts der vollständig gedampften Perowskit-Solarmodule verwendet.

4.4 Homogene, defektfreie Herstellung der funktionalen Materialschichten und Verschaltungen

Wie Abzieher *et al.* bereits zeigten, ist für kleine Substrate die homogene und defektfreie Herstellung eines vollständig gedampften prototypischen Perowskit-Solarmoduls möglich.¹⁶⁵ Nachdem nun die hohe Qualität einer einzelnen vollständig laserstrukturierten monolithischen Verschaltung in einem vollständig gedampften Schichtstapel demonstriert und die ideale Zellbreite zur Minimierung der Aufskalierungsverluste bekannt ist, gilt es, die Aufskalierung beider Prozesse anzugehen. Dabei soll insbesondere die gleichbleibend hohe Qualität der ko-verdampften Perowskit-Hableiterschicht als auch die mehrerer Verschaltungen für größere Substratflächen sichergestellt werden.

Um zunächst die Homogenität des ko-verdampften Perowskit-Absorbers bezüglich gleichbleibender Materialzusammensetzung, Schichtdicke und Kristallisation zu beurteilen, soll das örtlich aufgelöste Photolumineszenzsignal des Absorbers analysiert werden. Dabei wird die Substratfläche von ursprünglichen 30 mm × 30 mm auf 80 mm × 80 mm vergrößert und die Schichtstapelsequenz ITO, spiro-TTB und Perowskit-Absorber auf der gesamten Fläche abgeschieden. Die P1 und P2 Strukturierungslinien, wie sie für ein Perowskit-Solarmodul mit 51 cm² Aperturfläche notwendig sind, werden mit den optimierten Parametern ablatiert. Die resultierende Photolumineszenzaufnahme ist in **Abbildung 4.14a** dargestellt und demonstriert die homogene Abscheidung des Absorbers auf dem gesamten Substrat. Entsprechend ist keine wesentliche Änderung der Schichtdicke, der Materialzusammensetzung oder Kristallisationsdynamik evident. Lediglich einzelne Kristallisationsdefekte sind zu erkennen, welche aber auf Staubpartikel zurückzuführen sind und mittels zusätzlicher vorgelagerter Säuberungsschritte des Substrats vermeidbar sind. Während lösungsbasierte Abscheidetechniken häufig zu inhomogenen oder defektreichen Randbereichen durch Benetzungsfehler oder den sog. Kaffeeeringeffekt führen,^{180–182} ist mittels dampfbasierter Abscheidung auch in unmittelbarer Nähe zum Substratrand ein gleichbleibendes PL-Signal zu sehen. Die Notwendigkeit großer ungenutzter Randbereiche entfällt somit. (Zur Interpretation der Aufnahme ist zu beachten, dass die ringförmige Erhöhung des PL-Signals in der Mitte des Substrats ein Messartefakt darstellt, das ausschließlich auf die kreisförmige Beleuchtungsquelle des PL-Setups zurückzuführen ist.)

In einem ersten Schritt der gesamtheitlichen Aufskalierung von Zelle zu Modul soll die Integration mehrerer laserstrukturierter Verschaltungen in den funktionalen Schichtstapel für ein Perowskit-Solarmodul mit 4 cm² Aperturfläche vollzogen werden. Für die Beurteilung der Qualität des gesamten Schichtstapels sowie der Verschaltungen wird dabei die örtlich aufgelöste laserstrahlinduzierte

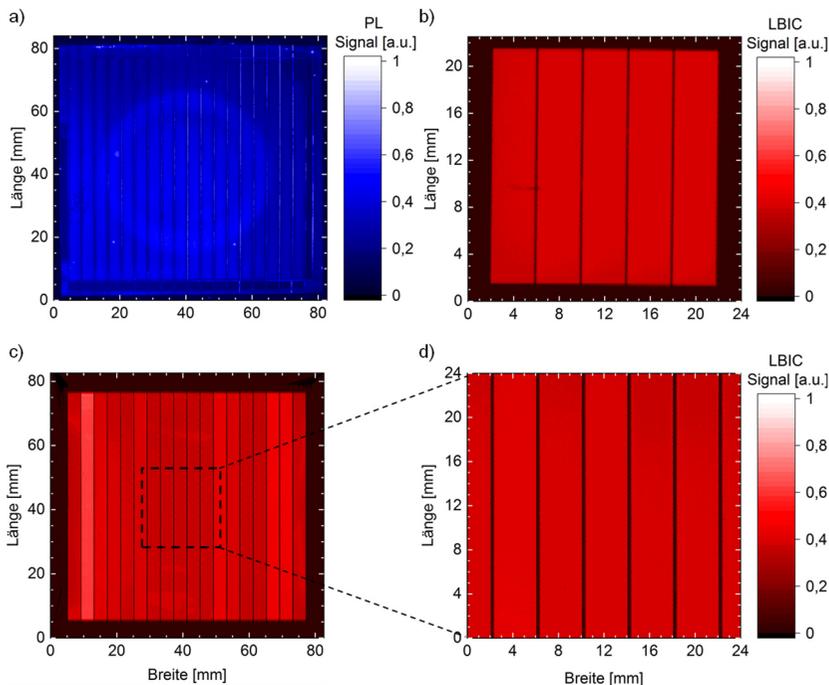


Abbildung 4.14. Evaluation der Schichthomogenität und Verschaltungsfunktionalität für vollständig gedampfte laserstrukturierte Perowskit-Solarmodule. (a) Photolumineszenzaufnahme des gedampften Perowskit-Absorbers. Die Substratfläche entspricht 64 cm^2 und die darunterliegenden Schichten sind ITO und Spiro-TTB. (b) Laserstrahlinduzierte Strommessung (LBIC) eines Solarmodules mit 4 cm^2 Aperturfläche und 5 monolithisch verschalteten Zellstreifen. (c) LBIC-Messung eines Solarmodules mit 51 cm^2 Aperturfläche und 18 monolithisch verschalteten Zellstreifen sowie (d) Detailaufnahme eines zentralen Bereichs innerhalb des Moduls. Angepasste und übersetzte Darstellung aus Ritzer *et al.*^{134,153}

Strommessung (LBIC) genutzt.¹²⁹ Wie in **Abbildung 4.14b** dargestellt, zeigt das Solarmodul, welches aus 5 miteinander verschalteter Zellstreifen ($4 \text{ mm} \times 20 \text{ mm}$) besteht, eine sehr homogene Ladungsträgererzeugung und -extraktion mit nur einem kleinen kratzerförmigen Defekt. Die gleichmäßige Signalamplitude innerhalb einzelner Solarzellenstreifen bestätigt dabei nochmal die Homogenität der Perowskit-Halbleiterschicht, als auch der weiteren funktionalen Schichten des Solarmoduls. Inhomogenitäten oder Defekte der Transportschichten (spiro-TTB und C_{60}) oder der Rück- und Frontkontaktschichten (ITO und Gold) hätten dabei durch

lokale Veränderungen des Serien- und Parallelwiderstands oder der Ladungsträgerrekombinationsrate einen direkten Einfluss auf die Stromsignalstärke.¹⁷⁸ Die gleichmäßige Signalstärke der Zellstreifen untereinander bestätigt dagegen die gleichbleibende Qualität der Verschaltungslinien und deren Serien- und Parallelwiderstände.¹²⁹ Darüber hinaus bestätigt die LBIC-Aufnahme die geringe Verschaltungsbreite von 160 μm , welche einem GFF des Solarmoduls von 96% und der zuvor definierten Zielgröße entspricht.

Die weitere Aufskalierung zielt auf ein vollständig gedampftes laserstrukturiertes Solarmodul mit 51 cm^2 Aperturfläche auf einer Substratfläche von 64 cm^2 und insgesamt 18 miteinander verschalteter Solarzellenstreifen ab. Dies entspricht dabei der Vergrößerung der Aperturfläche als auch der Verschaltungslinienlänge von fast 1200%. Die resultierende LBIC-Aufnahme des Solarmoduls ist in **Abbildung 4.14c** dargestellt. Dabei demonstriert die gleichmäßige Signalamplitude innerhalb der Zellstreifen ohne Vorhandensein von Defekten oder Signalstärkegradienten die hohe Homogenität aller funktionaler Schichten. Da für die Beschichtung der kleinen und großen Substratflächen unveränderte Prozessparameter genutzt werden, betont dies ebenfalls die einfache Skalierbarkeit dampfbasierter Prozesse. Die Signalstärkevarianzen verschiedener Zellstreifen untereinander deutet auf Unterschiede des Parallelwiderstands der Verschaltungen hin. Dabei ist aufgrund des Verhältnisses minimaler und maximaler Signalamplitude davon auszugehen, dass die Parallelwiderstände ausreichend groß sind, dass die Varianz von einigen Prozent den Füllfaktor der Solarzelle und somit deren Leistung nicht relevant beeinflusst. Die Detailaufnahme des zentralen Bereichs dieses Solarmoduls, wie in **Abbildung 4.14d** gezeigt, zeigt eine vergleichbare Homogenität der Signalamplitude und somit der Ladungsträgererzeugung und -extraktion wie für das kleinere Solarmodul. Trotz der deutlichen größeren Substratgröße ist der Rückgang des erreichten GFF auf 94% gering ausgefallen und übertrifft weiterhin zuvor demonstrierte minimale Verschaltungsbreiten.^{165,166,177}

4.5 Charakterisierung vollständig gedampfter Perowskit-Solarmodule mit laserstrukturierter monolithischer Verschaltung

Voranehend wurde die einfache Skalierbarkeit bei gleichbleibender Qualität des vollständig gedampften Schichtstapels sowie die grundsätzliche Funktionalität der integrierten laserstrukturierten Verschaltung sichergestellt. Für eine detaillierte Beurteilung der Aufskalierungseigenschaften dieses Ansatzes werden im Folgenden die elektrischen Eigenschaften hergestellter Perowskit-Solarmodule charakterisiert und die auftretenden Aufskalierungsverluste durch den Vergleich mit Referenzsolarzellen bestimmt. Dabei wird zunächst das Solarmodul mit 4 cm^2 und anschließend das größere Solarmodul mit 51 cm^2 Aperturfläche analysiert. Die jeweiligen Referenzsolarzellen werden dabei in denselben Beschichtungsdurchläufen wie die zu vergleichenden Module hergestellt, um eine Vergleichbarkeit der Ergebnisse zu gewährleisten.

Die Stromdichte-Spannungskennlinie des leistungsstärksten Perowskit-Solarmoduls mit 4 cm^2 Aperturfläche und 5 verschalteten Zellstreifen ist in **Abbildung 4.15a** dargestellt. Das Solarmodul erreicht dabei einen beeindruckenden Wirkungsgrad (PCE) von 18,0% mit einem Füllfaktor (FF) von 81%, einer Leerlaufspannung (V_{OC}) von 5,5 V und einer Kurzschlussstromdichte eines Zellstreifens (J_{SC}) von $20,2 \text{ mA cm}^{-2}$ in Rückwärtsmessrichtung. Betrachtet man die ebenfalls guten Kennwerte der Vorwärtsmessrichtung von 17,7% PCE, 81% FF, 5,5 V V_{OC} und $20,0 \text{ mA cm}^{-2}$ J_{SC} , ist nur eine minimale Hysterese evident. Die hohen Werte für FF und V_{OC} weisen auf einen niedrigen Serienwiderstand und hohen Parallelwiderstand hin und unterstreichen damit insbesondere die gute Qualität der Verschaltung. In **Abbildung 4.15b** ist das Ergebnis der kontinuierlichen Messung des Wirkungsgrads ohne aktive Kühlung gezeigt. Die leichte Verringerung des Wirkungsgrads mit der Zeit ist dabei auf die langsame Erhöhung der Nennbetriebstemperatur zurückzuführen, weshalb die Erholung des Wirkungsgrads am Anfang des zweiten Messzyklus durch eine zwischenzeitliche Abkühlung des Solarmoduls erklärt wird. Der Vergleich mit der leistungsstärksten Referenzsolarzelle, welche 19,3% (19,2%) PCE in Vorwärtsmessrichtung (Rückwärts-) aufweisen (siehe **Tabelle 8.6**), zeigt einen Aufskalierungsverlust von $6,7\%_{rel}$ auf, der somit die in Kapitel 4.3 kalkulierten theoretischen Verluste von $6,0\%_{rel}$ übertreffen. Wird der Anteil der inaktiven Fläche für den vorhandenen GFF von 96% berücksichtigt, ergibt sich ein Wirkungsgradverlust der aktiven Fläche von nur $2,8\%_{rel}$ gegenüber der Referenzsolarzelle bei einem Aufskalierungsfaktor ≈ 40 .

Die Charakterisierung des leistungsstärksten Perowskit-Solarmoduls mit 51 cm^2 Aperturfläche und 18 verschalteten Zellstreifen mittels Stromdichte-Spannungs-

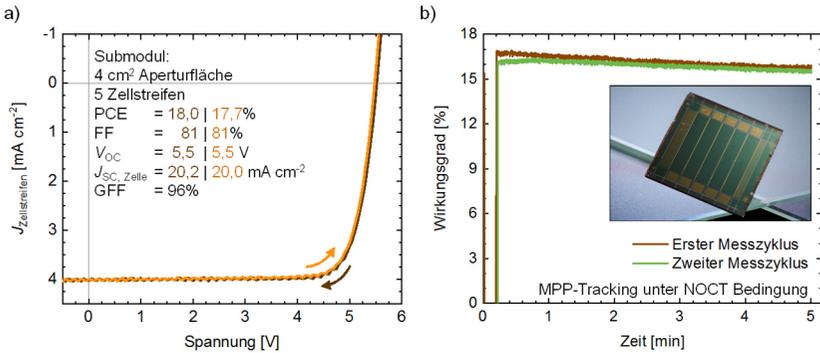


Abbildung 4.15. Elektrische Charakterisierung des leistungsstärksten vollständig gedampften laserstrukturierten Perowskit-Solarmoduls mit 4 cm² Aperturfläche und 5 monolithisch verschalteten Teilzellen. (a) Stromdichte-Spannungskennlinie des leistungsstärksten Solarmoduls und Übersicht der Kennwerte. (b) Kurzzeitstabilität des Wirkungsgrads unter kontinuierlicher Beleuchtung während des MPP-Trackings bei nominalen Betriebstemperaturen der Zelle (NOCT) ohne aktive Kühlung. Aufnahme der Vorderseite des Solarmoduls. Foto: KIT, Bramsiepe. Angepasste und übersetzte Darstellung aus Ritzer *et al.* ^{134,153}

kennlinie ist in **Abbildung 4.16a** gezeigt. Dabei erzielt es einen Wirkungsgrad von 16,6% bei 82% FF, 19,0 V V_{OC} und 19,1 mA cm² J_{SC} in Rückwärtsmessrichtung. Der Vergleich mit den Kennwerten der Vorwärtsmessrichtung bestätigt dabei wieder eine nur minimale Hysterese. Ebenso unterstreichen die erzielten hohen FF und V_{OC} Kennwerte die Qualität des hergestellten Solarmoduls einschließlich der Schichten und Verschaltungen. Die erzielten Wirkungsgrade erreichen dabei den für den damaligen Stand höchsten Wert für ein Perowskit-Solarmodul mit einer Aperturfläche von mehr als 50 cm². Der etwas geringer ausfallende Wirkungsgrad gegenüber dem Solarmodul erklärt sich dabei hauptsächlich durch Variationen im Beschichtungsprozess, da die entsprechenden Referenzsolarzellen für diesen Herstellungsdurchlauf lediglich 18,1% (17,9%) PCE erreichen (siehe **Tabelle 8.7**). Wie in **Abbildung 4.16b** dargestellt, demonstriert das Solarmodul auch gute Kurzzeitstabilität des Wirkungsgrads bei kontinuierlicher Beleuchtung und NOCT-Bedingungen und erzielt nach 30 Minuten Messung 16,1% PCE. Der Vergleich der Wirkungsgrade des Solarmoduls und der Referenzzelle ergibt einen Aufskalierungsverlust von 8,3%. Wird der etwas niedrigere GFF von 94% berücksichtigt, entspricht dies wieder sehr genau den kalkulierten theoretischen Verlusten von 7,6%. Die Betrachtung der photovoltaisch aktiven Fläche ergibt einen Wirkungsgradverlust von 2,4% gegenüber der Referenzsolarzelle bei einem Aufskalierungsfaktor von ≈ 500.

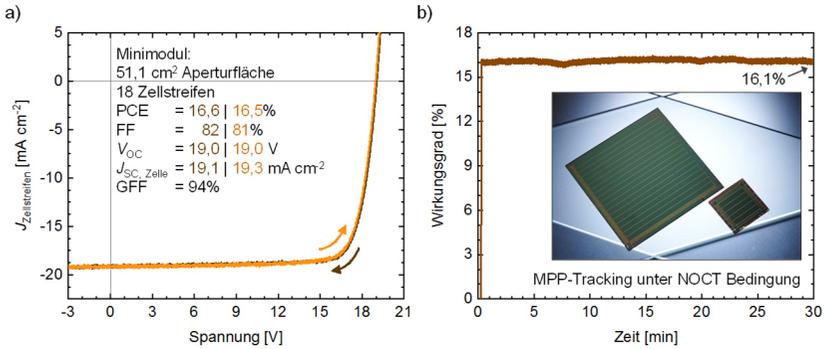


Abbildung 4.16. Elektrische Charakterisierung des leistungsstärksten vollständig gedampften laserstrukturierten Perowskit-Solarmoduls mit 51,1 cm² Aperturfläche und 18 monolithisch verschalteten Teilzellen. (a) Stromdichte-Spannungskennlinie des leistungsstärksten Solarmoduls und Übersicht der Kennwerte. (b) Kurzzeitstabilität des Wirkungsgrads unter kontinuierlicher Beleuchtung während des MPP-Trackings bei nominalen Betriebstemperaturen der Zelle (NOCT) ohne aktive Kühlung. Aufnahme der Vorderseite des Solarmoduls. Foto: KIT, Bramsiepe. Angepasste und übersetzte Darstellung aus Ritzer *et al.*^{134,153}

4.6 Zusammenfassung und Diskussion

In diesem Kapitel wurde die Prozessentwicklung, -optimierung und Herstellung von vollständig gedampften laserstrukturierten Perowskit-Solarmodulen vorgestellt und die resultierenden Verschaltungen, Schichten und Solarmodule detailliert optisch, physikalisch und elektrisch charakterisiert. Auf Basis eines vollständig gedampften Perowskit-Solarzellenschichtstapels wurde die Laserstrukturierung der drei Strukturierungslinien P1, P2 und P3 einer monolithischen Verschaltung individuell und anschließend gesamtheitlich optimiert. Dabei konnten hohe Widerstände der elektrisch isolierenden P1 und P3 in Front- bzw. Rückkontakt, sowie ein niedriger längenspezifischer Kontaktwiderstand der P2 von $\rho_C \approx 0,7 \Omega\text{cm}$ bei einer minimalen Gesamtverschaltungsbreite von nur $140 \mu\text{m}$ erreicht werden. Daraufhin wurde ein theoretisches Modell der Aufskalierungsverluste des Transfers von Zelle zu Modul von Dünnschichtphotovoltaik angewandt, um das Modullayout für die erzielten Verschaltungs- und Materialeigenschaften zu optimieren, wobei ein Minimum von unter 6% Aufskalierungsverlust für einen realisierbaren Parametersatz aufgezeigt werden konnte. Das Minimum entspricht hierbei einem Schichtwiderstandsverlust, Verschaltungswiderstandsverlust und Verlust aufgrund inaktiver Fläche von 1,4%, 0,7% und 3,7%. Anschließend wurde die Aufskalierung der aufgedampften funktionalen Schichten der Perowskit-Solarmodule auf 64 cm^2 Substrate sowie die Integration funktionaler Verschaltungslinien vorgestellt. Dabei ergab die Charakterisierung mittels PL- und LBIC-Messungen eine gleichbleibende hohe Qualität bei homogener Abscheidung und Verschaltungsstrukturierung, wobei die unveränderten Prozessparameter zusätzlich die Einfachheit der Aufskalierung über mehrere Größenordnungen demonstrierten. Zuletzt wurden die hergestellten Module mit 4 cm^2 und 51 cm^2 Aperturfläche auf Leistung und Stabilität untersucht, die realen Aufskalierungsverluste mittels Referenzsolarzellen bestimmt und mit den ermittelten theoretischen Verlusten verglichen. Die Module erzielten dabei Wirkungsgrade von bis zu 18,0% und 16,6%, guter Kurzzeitstabilität und minimaler Hysterese. Die Aufskalierungsverluste ergaben sich zu je $6,7\%_{\text{rel}}$ und $8,6\%_{\text{rel}}$ für das 4 cm^2 und 51 cm^2 Perowskit-Solarmodul, wobei der geringe Abstand zu den theoretischen Verlusten die hohe Prozessqualität beweist und die Kombination vollständig aufgedampfter Schichten und laserstrukturierter Verschaltungen als effiziente Aufskalierungsstrategie für Perowskit-Photovoltaik unterstreicht.

Betrachtet man den am Anfang des Kapitels eingeführten, für die Bewertung der technologischen Reife des Ansatzes wichtigen Kennwert der Aufskalierungsverluste pro Größenordnung aufskalierter Fläche, ergibt sich für das hergestellte Solarmodul der Aufskalierungsverlust zu $3,1\%_{\text{rel}} \text{dec}^{-1}$. Damit erreicht der Ansatz der Aufskalierung mittels Kombination aus vollständig dampfbasierter Abscheidetechniken und vollständig laserstrukturierter monolithischer Verschaltung

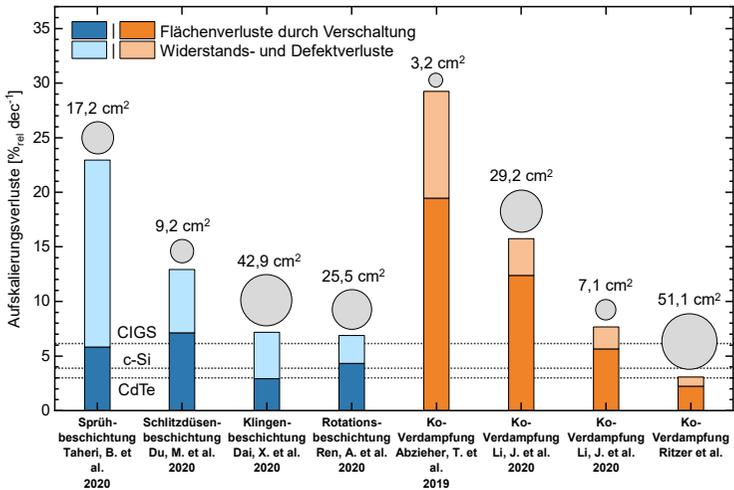


Abbildung 4.17. Vergleich der relativen Aufskalierungsverluste pro Größenordnung der skalierten Fläche (dec) für Perowskit-Solarmodule, die mit verschiedenen Herstellungsverfahren hergestellt wurden. Die grauen Kreise veranschaulichen die Aperturfächen der jeweiligen Solarmodule. Die gestrichelten Referenzlinien stellen die Aufskalierungsverluste von etablierten Photovoltaiktechnologien wie monokristallinem Silizium, CdTe und CIGS dar. Angepasste und übersetzte Darstellung aus Ritzer *et al.*^{134,153}

die Aufskalierungseffizienzen kommerzieller Photovoltaiktechnologien wie c-Si (3,9 %_{rel} dec⁻¹), CdTe (3,0 %_{rel} dec⁻¹) und CIGS (6,1 %_{rel} dec⁻¹).^{71,183}

Eine Einordnung der Qualität der Ergebnisse wird zusätzlich durch den Vergleich mit Ergebnissen anderer Aufskalierungsarbeiten möglich, welche zum Zeitpunkt des Verfassens der eigenen Arbeit veröffentlicht waren. In **Abbildung 4.17** sind dabei die Aufskalierungsverluste gezeigt, wobei insbesondere die Perowskit-Absorberschicht mittels unterschiedlicher lösungsbasierter Abscheidetechniken oder mittels Ko-Verdampfung hergestellt wurde. Während die Gesamtverluste für bisherige Ergebnisse beider Kategorien grundsätzlich ähnliche Ausmaße annehmen, zeigt sich durch die Aufteilung in Verluste aktiver Fläche sowie Widerstands- und Defektverluste, dass letztere für Ansätze mittels Ko-Verdampfung auffällig kleiner ausfallen. Als Ursache wird die einfachere Aufskalierung dampfbasierter Abscheidetechniken für die Herstellung homogener und defektfreier Schichten aufgrund konstanter Prozessbedingungen angesehen. Die ausschließliche Nutzung dampfbasierter Abscheidetechniken, die guten elektrischen Eigenschaften der laserstrukturierten Verschaltungen sowie die deutlich verringerte Verschaltungsbreite ermöglichen dabei die zum Zeitpunkt der

Veröffentlichung der eigenen Arbeit niedrigsten Aufskalierungsverluste bzw. höchste Aufskalierungseffizienz für Perowskit-Solarmodule zu erreichen.

Neben der Demonstration von hohen Aufskalierungseffizienzen mittels einfachem Aufskalierungsansatz sowie dessen technischer Reife durch den Vergleich mit etablierten Photovoltaiktechnologien stellt, nach eigenem Ermessen, die Nutzung des eigens mitentworfenen Laserstrukturierungssystems einen weiteren wichtigen Beitrag für die Forschung zur Skalierbarkeit der Perowskit-Photovoltaik dar. Aus der Verwendung der Nanosekundenlaserquelle und der Bearbeitung mittels ausschließlich einer Wellenlänge resultiert durch den geringeren Investitionsbedarf eine hohe Relevanz der Ergebnisse sowohl für Forschungseinrichtungen als auch für zukünftige kommerzielle Fertigungslinien. Dabei zeigen die Parameterbereiche des Laserstrukturierungsprozesses trotz Pulsdauer im Nanosekundenbereich ausreichend Toleranzen auf, um eine hohe Prozessstabilität zu gewährleisten.

Bei der Betrachtung aktueller Forschungsergebnisse wird die deutliche Steigerung der Wirkungsgrade von Perowskit-Solarmodulen sowie die inzwischen etablierte Nutzung der Laserstrukturierung für alle drei Verschaltungslinien deutlich.^{184–186} Dagegen konkurrieren weiterhin insbesondere für die Herstellung der Perowskit-Schicht lösungsbasierte mit dampfbasierten Ansätzen. Li *et al.* demonstrieren ein mittels sequenzieller Ko-Verdampfung hergestelltes Perowskit-Solarmodul, das einen Wirkungsgrad von 19,9% mit 14,4 cm² Aperturfläche und einem Aufskalierungsverlust von 8,6 %_{rel} dec⁻¹ erreicht.¹⁸⁷ Die Herstellung mittels lösungsbasierter Klingenbeschichtung von Chung *et al.* erzielt dagegen einen Wirkungsgrad von 20,2% für 81 cm² Aperturfläche und einem Aufskalierungsverlust von 4,8 %_{rel} dec⁻¹.¹⁸⁸ Dabei wurde bei Verwendung einer vergleichbaren Laserquelle (532 nm, ns-Pulsdauer) ein geometrischer Füllfaktor von 92% erreicht, was die weiterhin gültige hohe Genauigkeit des Positionierprozesses der eigenen Arbeit aufzeigt.

Indes die Wirkungsgrade von Perowskit-Solarmodulen mittlerer Größe in der Forschung deutlich angestiegen sind, wurde der vorherige Rekord von Panasonic Corporation von 17,9% nur geringfügig durch 18,6% von UtmoLight Corporation übertroffen.¹⁸³ Während das ausbleibende Veröffentlichen weiterer Rekordwirkungsgrade auch strategische Gründe wegen des technologischen Wettstreits haben kann, wird dennoch davon ausgegangen, dass weiterhin signifikante technologische Herausforderungen für den Prozesstransfer in kommerzielle Fertigungslinien sowie für die Aufskalierung zu m² Flächen bestehen. Neben dem weiteren Forschungsbedarf für 1-Übergang-Perowskit-PV ergibt sich ebenfalls die Notwendigkeit des Transfers der effizienten laserstrukturierten Verschaltung zu der eingangs motivierten Perowskit-Tandem-PV, welche in nachfolgendem Kapitel vorgestellt wird. Dabei wird für 4-Terminal Tandem-PV die

Herstellung der Verschaltung in semitransparenten Perowskit-Solarmodulen benötigt, während die 2-Terminal-Tandem-PV die Laserstrukturierung von zwei aufeinanderliegenden Perowskit-Absorbern erforderlich macht. Zuletzt bietet Perowskit-basierte PV das Potential, eine kostengünstige und leichte Dünnschichttechnologie für gebäudeintegrierte Photovoltaik zu werden. Da hierfür bisher die Akzeptanz durch fehlende Farbneutralität semitransparenter Perowskit-Photovoltaik gehemmt wird, wird in Kapitel 6 untersucht, inwiefern farbneutrale und transparente Perowskit-PV mittels Laserstrukturierung hergestellt werden können.

5 Prozesstransfer zu Perowskit-Tandem-Photovoltaik

Im folgenden Kapitel wird die skalierbare Herstellung Perowskit-basierter Tandem-Solarmodule demonstriert, welche auf dem zuvor entwickelten Aufskalierungsprozesses basiert, und den Weg der effizienteren und kostengünstigeren Tandem-Photovoltaik in die Industrie ebnen soll.

Nach Herleitung des enormen Potentials sowie der unterschiedlichen technologischen Ansätze von Tandem-Photovoltaik wird das Ziel der Aufskalierung zweier Perowskit-basierter Tandem-Photovoltaik-Technologien verfolgt. Zunächst wird die effiziente Aufskalierung semitransparenter Perowskit-Module zur Verwendung in 4-Terminal Tandem-Photovoltaik erarbeitet. Hierbei wird auf Grundlage der Erkenntnisse des Kapitels 3.2.3.2 und angepasst an die veränderten funktionalen Schichten die Optimierung der laserstrukturierten Verschaltungslinien sowie der Modulgeometrie durchgeführt. Anschließend wird die Herstellung effizienter semitransparenter Perowskit-Solarmodule demonstriert und der resultierende Wirkungsgrad bei Verwendung als 4-Terminal-Photovoltaik mittels quantitativer Analyse ermittelt. Im Anschluss wird der Aufskalierungsprozess auf die 2-Terminal-Tandem-Photovoltaik übertragen und effiziente 2-Terminal Perowskit-Perowskit-Tandem-Solarmodule demonstriert. Um trotz des deutlich komplexeren Schichtstapels eine realistische Übertragbarkeit in industrielle Fertigungslinien zu gewährleisten, werden ausschließlich skalierbare lösungsprozessierte und gedampfte Schichtherstellungsmethoden verwendet. Nach Anpassung und Optimierung der Verschaltungslinien und der Modulgeometrie werden durch 2-Laserquellen-LBIC-Messungen die hohe Qualität und Homogenität der funktionalen Schichten validiert. Zuletzt wird, nach bester Kenntnis, zum ersten Mal die Herstellung von 2-Terminal Perowskit-Perowskit-Tandem-Solarmodulen demonstriert. Die Durchführung detaillierter Charakterisierungen der Tandem-Solarmodule beweist zuletzt das Erreichen hoher Wirkungsgrade und geringer Aufskalierungsverluste.

Die Konzeption, Umsetzung und Analyse der Ergebnisse wurden von mir als Hauptverantwortlichem dieses Forschungshabens und ausführender Wissenschaftler der experimentellen Untersuchungen wesentlich erarbeitet. Besonderer Betonung bedarf es der Unterstützung von B. Abdollahi Nejad

bezüglich der Herstellung funktionaler Schichten 2-Terminal Perowskit-Tandem-Module mittels skalierbarer lösungsbasierter Abscheidungsverfahren und dem intensiven Erfahrungsaustausch. Weitere unterstützende Beiträge sind in Tabelle 8.3 und Tabelle 8.4 aufgezeigt. Ein Teil der gewonnenen Erkenntnisse wurde in der Fachzeitschrift Nature Energy (B. Abdollahi Nejand, D. Ritzer et al.¹⁸⁹) veröffentlicht. Die entsprechenden Inhalte sind dabei mit Erlaubnis des Springer Nature Verlags (CC BY 4.0) reproduziert, adaptiert und übersetzt worden.

5.1 Perowskit-Tandem-Photovoltaik

Die Verknappung fossiler Rohstoffe, der fortschreitende Klimawandel sowie der stetig wachsende globale Energiebedarf sind wichtige Antriebskräfte für den Ausbau erneuerbarer Energiequellen wie der Photovoltaik.¹⁹⁰ Dennoch unterstreichen wissenschaftliche Studien, dass eine zukünftige nachhaltige Energieversorgung nur mit dem deutlichen Ausbau der global installierten PV-Kapazitäten von derzeit etwa 1 TW auf ≈ 75 TW bis 2050 und der hierfür notwendigen Steigerung der PV-Herstellungskapazitäten von aktuell 450 GW auf 3 TW pro Jahr erreicht wird.^{191,192} Während die Photovoltaik in Deutschland bereits heute niedrigere Stromgestehungskosten als konventionelle Energiequellen wie Gas und Kohle aufweist,¹⁵ ist für die Beschleunigung des Ausbaus der Photovoltaik insbesondere für Länder mit niedrigen Stromgestehungskosten eine weitere Kostenreduktion von Photovoltaikanlagen essenziell. Dabei ist der mit bis zu 55% überwiegende Teil der Kosten einer Photovoltaikanlage mittlerweile auf sogenannte Balance-of-System-Kosten (BoS-Kosten), welche alle Kosten mit Ausnahme des Solarmoduls umfassen, zurückzuführen,¹⁹³ sodass die weitere Reduktion der Herstellungskosten der Solarzellen bzw. -module die Gesamtkosten nur noch geringfügig schmälern kann. Da die BoS-Kosten mit Ausnahme des Konverters flächenbezogen und leistungsunabhängig sind, würde sich dagegen eine Steigerung der Solarzellenwirkungsgrade unmittelbar auf die Gesamtkosten auswirken.⁹² Zudem würde eine Wirkungsgradsteigerung ebenfalls den immensen Bedarf an (Frei-) Flächen deutlich reduzieren.³⁰

Die dominante, auf kristallinem Silizium basierende PV-Technologie weist dabei nur noch geringfügige Potentiale zur Wirkungsgradsteigerung auf, wie in **Abbildung 5.1** dargestellt. So hat der Laborrekordwirkungsgrad mit 26,8% das praktische Limit von 27%,^{30,71} welches zum Pendant des theoretischen Wirkungsgradlimits (29,4%) auch optische und ohmsche Verluste berücksichtigt,³⁰ nahezu erreicht, während kommerzielle Solarmodule mit bis zu 24% sich daran ebenfalls bereits stark angenähert haben.¹⁹² Das größte Potential zur weiteren Wirkungsgradsteigerung hat deshalb der Einsatz der sogenannten Tandem-Photovoltaik. Wie in Kapitel 2.1.3 erläutert, werden dabei zwei unterschiedliche Absorbermaterialien mit kleiner Bandlücke (Bottom-Zelle) und großer Bandlücke (Top-Zelle) übereinandergestapelt, wodurch ein breiteres Spektrum des Sonnenlichts effizienter genutzt und das theoretische SQ-Limit auf $\approx 45\%$ angehoben wird.³⁰ Kristallines Silizium stellt mit einer festen Bandlücke von 1,1 eV in Kombination mit hoher erreichter Wirkungsgrade, niedrigen Herstellungskosten und großer Herstellungskapazitäten einen nahezu idealen Absorber für die Bottom-Zelle dar.⁹² Dennoch weisen auch andere etablierte PV-Technologien wie CIGS, CIS und CdTe eine geeignete Bandlücke für die Nutzung als Bottom-Zelle auf, wobei die geringeren

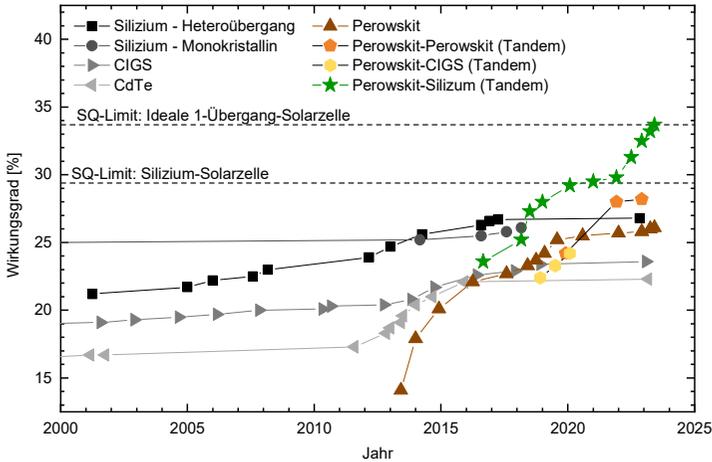


Abbildung 5.1. Historische Entwicklung der erzielten maximalen Wirkungsgrade für Solarzellen unterschiedlicher Photovoltaiktechnologien.⁷¹ Theoretisch maximale Wirkungsgrade, welche durch das Detailed Balance Limit begründet sind, sind als gestrichelte horizontale Linien dargestellt.^{69,70,194} Die Perowskit-Silizium-Tandem-Technologie zeigt das Potential einer deutlichen Wirkungsgradsteigerung gegenüber herkömmlicher Photovoltaiktechnologien durch Überwindung des Detailed Balance Limits für 1-Übergang-Solarzellen auf.

Wirkungsgrade gegen das Potential der Dünnschichttechnologie hinsichtlich Gewicht, Flexibilität und Energierückgewinnungszeit abgewogen werden müssen.³⁰ Als Absorber mit großer Bandlücke wurden zunächst III-V-Verbindungshalbleiter geahndet, da diese hohe Wirkungsgrade und eine anpassbare Bandlücke aufweisen. Die komplexe und hohe Kosten verursachende Herstellung mittels Epitaxie macht die terrestrische Anwendung und die dafür notwendige Skalierung aber unrentabel.⁹² Dagegen stellt Perowskit aufgrund der sehr breit anpassbaren Bandlücke und der exzellenten optoelektronischen Eigenschaften einen idealen Kandidaten als Top-Zelle mit großer Bandlücke dar,¹⁹⁴ während es ebenfalls als weitere Option neben den etablierten PV-Technologien als Bottom-Zelle mit kleiner Bandlücke einsetzbar ist.⁷⁹ Hinzu kommen die insbesondere für die notwendige Beschleunigung des Ausbaus von Photovoltaik förderlichen potentiell geringeren Herstellungskosten und Energierückgewinnungszeiten von Perowskit-basierter Photovoltaik. So entfachte Perowskit das Interesse vieler Forschungseinrichtungen sowie zahlreicher PV-Hersteller, die Entwicklung einer kommerzialisierbaren Tandem-PV-Technologie für den Massenmarkt voranzutreiben.

Die unterschiedlichen Absorbermaterialien für Bottom- und Top-Zelle sowie die möglichen Bauweisen (4-Terminal, 2-Terminal) lassen somit zahlreiche Kombinationen mit verschiedenen Vorteilen und Herausforderungen zu. Die Anfänge für Perowskit-basierte Tandem-PV machten dabei Löper *et al.* und Bailie *et al.*, welche 2014 die ersten semitransparenten Perowskit-Solarzellen mechanisch auf Silizium und CIGS Solarzellen stapelten und so Wirkungsgrade von 13,4% und 17% für die 4-Terminal-Tandem-Solarzellen erzielten.^{195,196} Im Jahr 2015 demonstrierten Mailoa *et al.* die erste monolithische 2-Terminal-Perowskit-Silizium-Tandem-Solarzelle mit einem Wirkungsgrad von 13,7%.¹⁹⁷ Dabei stellten vor allem starke parasitäre Absorption in den zusätzlichen transparenten Kontaktschichten (Rückkontakt Top-Zelle, Frontkontakt Bottom-Zelle, Rekombinationsschicht) und den Ladungsträgertransportschichten, sowie deren suboptimale elektrische Eigenschaften aufgrund niedrigerer Abscheidetemperaturen zum Schutz des Perowskit-Absorbers Herausforderungen dar. Die fortschreitende Minimierung dieser Verluste durch Adaption der Bauteilarchitektur, Einsatz anderer funktionaler Schichten, Anpassung von Prozessparametern und insbesondere für Perowskit-Silizium-Tandem-Photovoltaik die Verbesserung des Lichtmanagements durch Einsatz texturierter Silizium-Solarzellen und deren konformer Beschichtung führten zu rasant ansteigenden Wirkungsgradrekorden für das gesamte Feld der Tandem-Photovoltaik (siehe **Abbildung 5.1**). Ein europäisches PV-Konsortium erreichte 30,1% PCE für eine 4-Terminal und eine Forschungsgruppe der King Abdullah University of Science and Technology (KAUST) 33,7% PCE für eine 2-Terminal-Perowskit-Silizium-Tandem-Solarzelle.^{198,199} Ebenso konnten Feeney *et al.* und Jost *et al.* die Wirkungsgradrekorde für Perowskit-CIGS-Solarzellen auf 27,3% (4-Terminal) und 24,2% (2-Terminal) deutlich steigern.^{200,201}

Während Perowskit-Silizium-Tandem-PV aufgrund der hohen Wirkungsgrade, aber auch wegen der bisherigen Dominanz der Silizium-PV-Technologie und der möglichen Integration in bestehende Fertigungsanlagen als mittelfristig attraktivste Tandem-PV gehandelt wird, wird die Perowskit-Perowskit-Tandem-PV vor allem als vielversprechendste ablösende (~2050) oder ergänzende Dünnschicht-PV-Technologie angesehen.^{79,202} Eine erste Demonstration der Machbarkeit von Perowskit-Perowskit-Tandem-PV erbrachten Heo *et al.* 2015 durch die monolithische Herstellung der Perowskit-Absorberschichten MAPbBr₃ mit großer Bandlücke (2,25 eV) auf MAPbI₃ mit kleiner Bandlücke (1,55 eV). Die resultierende 2-Terminal-Perowskit-Perowskit-Tandem-Solarzelle erreichte 10,4% PCE.²⁰³ Dabei stellt neben der Verbesserung der Kontakt- und Ladungsträgertransportschichten für die überwiegend lösungsprozessierten Perowskit-Absorber das Ermitteln geeigneter orthogonaler Lösungsmittelsysteme zum Schutz des bereits abgeschiedenen Perowskit-Absorbers eine zusätzliche Herausforderung dar. Ebenfalls ist die Wahl der beiden Perowskit-Verbindungen hinsichtlich des

Bandlückenverhältnisse zur Angleichung der Ströme beider Subzellen essenziell für hohe Wirkungsgrade, während es insbesondere für Zinn-basierte Perowskit-Verbindungen, welche kleine Bandlücken aufweisen, die Stabilität weiter zu steigern gilt. Trotz dieser Herausforderungen konnte ein Team der Nanjing Universität in Kollaboration mit Renshine Solar einen Rekordwirkungsgrad von 28,2% erzielen und somit bereits andere Dünnschicht-Tandem-Technologien übertreffen.²⁷

Diese beeindruckenden und rasanten Fortschritte der Tandem-Photovoltaik wurden allerdings nur für kleine Laborsolarzellen mit $\leq 1 \text{ cm}^2$ aktiver Fläche demonstriert, sodass es für deren kommerzielle Nutzung in $\approx 1 \text{ m}^2$ Modulen einer deutlichen Flächensteigerung bedarf. Dabei ist grundsätzlich die Aufskalierung der Beschichtungsverfahren zur Herstellung homogener, konformer, und defektfreier Schichten notwendig. Während zur effizienten Ladungsträgerextraktion für die waferbasierte 2-Terminal-Perowskit-Silizium-Tandem-Photovoltaik zusätzlich die Integration von Kontaktfingern ermöglicht werden muss, erfordern hierfür Dünnschicht-Tandem-Technologien hingegen die monolithische Verschaltung der Solarzellenstreifen. Dabei weist die Herstellung der monolithischen Verschaltung im Vergleich zu den im vorherigen Kapitel vorgestellten opaken Perowskit-Solarmodulen neue Herausforderungen auf.

Für die 4-Terminal-Bauweise wird als Top-Zelle ein semitransparentes Perowskit-Solarmodul genutzt, sodass die Metallrückelektrode durch eine transparente leitfähige Oxidschicht (TCO) ersetzt ist und sich das Ablationsverhalten für die P3 Strukturierungslinie deutlich ändert. Ebenso bedingt die um etwa eine Größenordnung geringere Leitfähigkeit des TCOs durch höhere Widerstandsverluste eine neue Optimierung der P2 Strukturierungslinie sowie des Modullayouts. Des Weiteren stellt der wellenlängenabhängige Transmissionsgrad eine neue essenzielle Zielgröße dar, welcher grundsätzlich invers mit der Leitfähigkeit der Kontaktschichten korreliert, und somit das Optimieren eines zusätzlichen Zielkonflikts erfordert. Aufgrund dieser und weiterer Herausforderung waren zum Zeitpunkt des Verfassens dieser Arbeit nur wenige Ergebnisse veröffentlicht. Dabei demonstrierten Lee *et al.* (2021) durch Nutzung einer schützenden MoOx-Passivierungsschicht ein semitransparentes Perowskit-Solarmodul mit $13,7 \text{ cm}^2$ Aperturfläche, 12,8% Wirkungsgrad und 86% geometrischem Füllfaktor.^{204,205} Die Optimierung des Sputterverfahrens zur Herstellung des ITO-Rückkontakts sowie eine Reduktion der Perowskit-Schichtdicke erlaubte Rai *et al.* (2021) die weitere Vergrößerung auf 21 cm^2 Aperturfläche bei 9,5% PCE und 85% GFF.²⁰⁶ Während diese beiden exemplarischen Ergebnisse deutliche Vergrößerungen der Aperturflächen um einen Faktor von 85 und 230 im Vergleich zu den genutzten Referenzzellen ($0,16 \text{ cm}^2$ und $0,09 \text{ cm}^2$) darstellen, weisen sie dennoch erhebliche Aufskalierungsverluste von

11,4 %_{rel} dec⁻¹ und 11,6 %_{rel} dec⁻¹ auf, welche bisher einen Transfer der Technologie in die Industrie verhindert.

Die Perowskit-basierten 2-T-Dünnschicht-Tandem-Solarmodule weisen dagegen einen Schichtstapel mit mehr funktionalen Schichten, zwei Absorbern und entsprechend größerer Dicke und höherer Komplexität auf. Dabei muss eine Degradation oder schädliche Diffusion durch höhere thermische Belastung des Schichtstapels bei Verwendung höherer Laserfluenzen vermieden werden, um Wirkungsgrad und Stabilität nicht zu mindern. Ebenfalls ist anzunehmen, dass die Integration der Kontaktierung zwischen Front- und Rückkontakt durch die notwendige Rekombinationsschicht in 2-T-Tandem-Solarmodulen eine kritische Reduktion des Parallelwiderstands durch einen Kurzschlusspfad verursachen kann. Des Weiteren ist insbesondere durch das veränderte Strom-Spannungs-Verhältnis der Zellen ebenfalls eine neue Optimierung des Modullayouts notwendig. Eine weitere Herausforderung stellt die Charakterisierung dar, da wegen der übereinanderliegenden Absorber sowie der teilweise überlappenden Absorptionsspektren eine individuelle Untersuchung der Subzellen im verschalteten Modul neuer Charakterisierungsverfahren und -setups bedarf. Der hohen Komplexität der Schichtherstellung in Kombination mit den genannten Herausforderungen der monolithischen Verschaltung ist es geschuldet, dass zum Zeitpunkt des Verfassens der Arbeit noch keine experimentelle Veröffentlichung zu 2-Terminal-Perowskit-Perowskit-Tandem-Solarmodulen oder anderen Perowskit-basierten 2-Terminal-Dünnschicht-Tandem-Solarmodulen publiziert war.

Aufgrund des großen Potentials der Tandem-PV zur Steigerung der Kosten- und Flächeneffizienz von Photovoltaikanlagen und der hierfür idealen Eignung Perowskit-basierter Absorber unterschiedlicher Zusammensetzungen soll im folgenden Kapitel die effiziente Aufskalierung von Perowskit-Tandem-PV für zwei Konfigurationen, 1) 4-Terminal-Perowskit-Tandem-PV auf Basis eines semitransparenten Perowskit-Solarmoduls, sowie 2) 2-Terminal-Perowskit-Tandem-PV auf Basis eines Perowskit-Perowskit-Tandem-Solarmoduls, demonstriert werden. Hierfür wird zunächst die im vorherigen Kapitel entwickelte effiziente laserstrukturierte monolithische Verschaltung von opaken Perowskit-Solarmodulen auf semitransparente Perowskit-Solarmodule sowie auf 2-T-Perowskit-Perowskit-Tandem-Solarmodule übertragen und alle Prozessparameter an die geänderte Bauteilarchitektur und Materialeigenschaften angepasst. Dabei soll für erstere durch die nun transparente Rückkontaktschicht mit verändertem Ablationsverhalten und niedrigerer Leitfähigkeit die P2 Strukturierungslinie für einen geringen Kontaktwiderstand sowie die P3 Strukturierungslinie für einen hohen Parallelwiderstand neu optimiert werden. Nach Anpassung des Modullayouts für minimale Aufskalierungsverluste und Herstellung semitransparenter Perowskit-Solarmodule soll weiterhin der Transmissionsgrad gesteigert und darauf aufbauend

die zu erwartende Gesamteffizienz eines resultierenden 4-Terminal-Perowskit-Tandem-Solarmoduls abgeschätzt werden. Dagegen gilt es für die 2-Terminal-Perowskit-Perowskit-Tandem-Solarmodule aufgrund der Rekombinationsschicht das Generieren von Kurzschlusspfaden durch die Kontaktierung in der P2 Strukturierungslinie zu vermeiden. Des Weiteren sollen geeignete Charakterisierungsverfahren gefunden werden, um auch für 2-Terminal-Tandem-Solarmodule die Qualität der Schichten und Verschaltungen festzustellen. Bei der Herstellung des komplexeren Schichtstapels soll dabei auf skalierbare, industriell relevante Beschichtungsmethoden zurückgegriffen werden. Die grundlegenden Zielsetzungen lauten somit:

- 5-I Entwicklung und Optimierung eines Prozesses zur effizienten Aufskalierung semitransparenter Perowskit-Photovoltaik für die Verwendung in Perowskit-basierter 4-Terminal-Tandem-Photovoltaik.
- 5-II Entwicklung und Optimierung eines Prozesses zur effizienten Aufskalierung der 2-Terminal-Perowskit-Perowskit-Tandem-Photovoltaik unter ausschließlicher Verwendung skalierbarer Herstellungsmethoden.

5.2 4-Terminal Perowskit-Tandem-Photovoltaik

Wie zuvor dargelegt, weist die 4-Terminal-Konfiguration von Tandem-PV durch mechanisches Stapeln zweier separater PV-Bauteile geringere Restriktionen der Herstellungsprozesse sowie eine höhere spektrale Toleranz auf.⁹² Des Weiteren kann für die Bottom-Zelle, also dem PV-Bauteil mit kleiner Bandlücke, auf konventionelle PV-Technologien wie Silizium, CIGS; CdTe oder CIS zurückgegriffen werden, sodass die Herausforderung dieses technologischen Ansatzes insbesondere in der Herstellung und effizienten Aufskalierung der Perowskit-PV als Top-Zelle mit großer Bandlücke besteht. Der Austausch der lichtundurchlässigen Metallelektroden-schicht opaker Perowskit-PV durch eine semitransparente leitende Oxidschicht ermöglicht die Transmission des langwelligeren Lichtspektrums und anschließende Absorption in der Bottom-Zelle. Im Gegensatz zur Darstellung der fundamentalen Bauteilarchitektur für 4-T-Tandem-PV in Kapitel 2.1.3 ist für die Aufskalierung und perspektivische Herstellung im m² Maßstab zusätzlich die monolithische Verschaltung der semitransparenten Perowskit-Solarzellen zum Modul notwendig, wie in **Abbildung 5.2a** dargestellt. Dabei kann das gleiche Verschaltungskonzept (P1, P2, P3) genutzt werden, wobei die Veränderung des Schichtstapels und damit einhergehend der Materialeigenschaften eine neue detaillierte Optimierung der Strukturierungsprozesse zwingend erforderlich macht. Für die Herstellung semitransparenter Perowskit-Solarmodule wird die teilweise

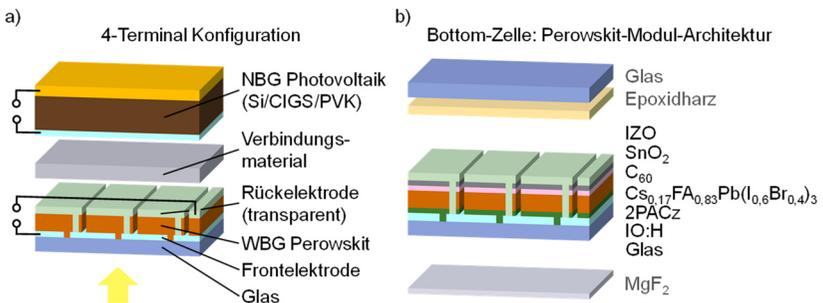


Abbildung 5.2. (a) Schematische Darstellung einer möglichen Bauelementarchitektur zur Herstellung eines mechanisch gestapelten 4-Terminal-Tandem-Solarmoduls bestehend aus einem monolithisch verschalteten semitransparenten Perowskit-Solarmodul mit großer Bandlücke (unten), einem transparenten isolierenden Verbindungsmaterial sowie einer Solarzelle/einem Solarmodul mit kleiner Bandlücke (oben). (b) Verwendete Schichtstapelsequenz und Bauelementarchitektur des monolithisch verschalteten semitransparenten Perowskit-Moduls zur Anwendung in einer 4-Terminal-Tandem-Konfiguration.

gedampfte und lösungsprozessierte Schichtstapelsequenz aus hydriertem Indiumoxid (IO:H), 2PACz, $\text{Cs}_{0,17}\text{FA}_{0,83}\text{Pb}(\text{I}_{0,6}\text{Br}_{0,4})_3$, C_{60} , Zinnoxid (SnO_2), Indiumzinkoxid (IZO) genutzt, wie sie in **Abbildung 5.2b** dargestellt ist. Die Auswahl der beiden transparenten leitfähigen Oxidschichten begründet sich durch deren höheren Transmissionsgrad im Bereich des Lichtspektrums, das bisher unterhalb der Perowskit-Bandlücke lag, nun aber durch die Bottom-Zelle absorbiert werden soll. Dabei ist anzunehmen, dass insbesondere die IZO-Schicht die Prozessparameter für die P2 und P3 Strukturierungslinien sowie den resultierenden Kontaktwiderstand ändert. Ebenfalls soll die isolierende Wirkung der P1 Strukturierungslinie für das nun verwendete hydrierte Indiumoxid (IO:H) sichergestellt werden. Nach der Optimierung der Strukturierungsprozesse soll im Anschluss die Modulgeometrie an die geänderten Parameter angepasst und damit optimierte semitransparente Perowskit-Module hergestellt, charakterisiert und die Aufskalierungseffizienz festgestellt werden. Zuletzt soll der resultierende Wirkungsgrad eines 4-Terminal-Tandem-Solarmoduls auf Basis des leistungsstärksten semitransparenten Perowskit-Moduls sowie einer typischen CIGS-Solarzelle mithilfe optischer und elektrischer Datenwerte abgeschätzt werden.

5.2.1 Verschaltungsoptimierung semitransparenter Perowskit-Solarmodule für 4-Terminal-Tandem-Photovoltaik

Die Verschaltungsoptimierung umfasst wie zuvor die Charakterisierung der P1, P2 und P3 Strukturierungslinien und die Verbesserung der resultierenden Oberflächen, der elektrischen Eigenschaften sowie der lateralen Ausdehnung.

Die Trennung der IO:H Frontkontaktstreifen zur elektrischen Isolierung wird wieder mittels speziellem Laserstrukturierungslayout und Parameterstudie unterschiedlicher Pulsspitzenfluenzen optimiert. Die unterschiedlichen Materialeigenschaften des IO:H, zu denen auch eine höhere Leitfähigkeit und ein höherer Transmissionsgrad im NIR-Spektrum zählen, beeinflussen die Ablationsschwelle, sodass eine direkte Übertragung der bisherigen Parameter nicht möglich ist. Die resultierenden Widerstände für unterschiedliche Pulsspitzenfluenzen F_P in **Abbildung 5.3a** zeigen dabei eine Verschiebung der Ablationsschwelle zu höheren Pulsspitzenfluenzen. Für einen zuverlässigen Laserstrukturierungsprozess und gleichzeitiger Vermeidung von Glasschäden wird der Soll-Wert auf $F_P = 3 \text{ J cm}^{-2}$ festgelegt. Die resultierenden Strukturierungslinien sind frei von Rückständen oder Defekten und sehr gleichmäßig ablatiert, wie in **Abbildung 5.3b** ersichtlich ist.

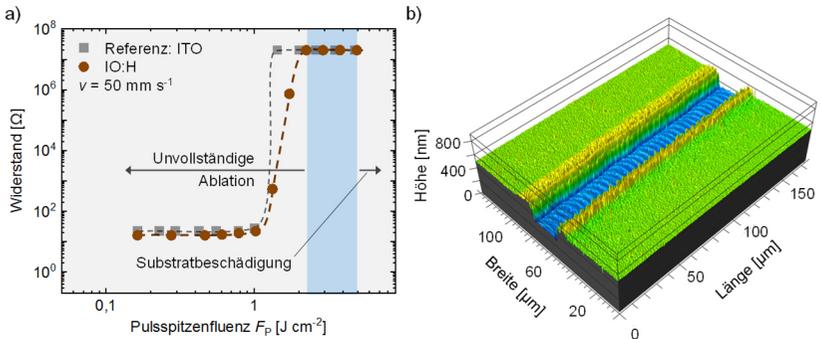


Abbildung 5.3. Elektrische und optische Untersuchung der P1 Strukturierungslinie für die IO:H Frontkontaktschicht. (a) Optimierung des charakteristischen Widerstands der P1 in IO:H durch Anpassung der Pulsspitzenfluenzen und Vergleich mit Ergebnissen für die ITO Frontkontaktschicht. Der hervorgehobene Bereich (blau) veranschaulicht das optimale Prozessfenster. (b) Weißlichtinterferometriemessung der P1 Strukturierungslinie, die die selektive, defektfreie Ablation des IO:H bei minimaler Rauigkeit zeigt.

Die P2 Strukturierungslinie zur elektrischen Kontaktierung zweier nebeneinanderliegender Zellstreifen ist aufgrund der Änderungen des Schichtstapels hinsichtlich vollständiger Ablation, Defektfreiheit und geringem Kontaktwiderstand R_C zu prüfen. Da IZO als Ersatz zur opaken Metallrückelektrode einen um etwa 2 Größenordnung höheren Schichtwiderstand aufweist ($R_{Sh} \approx 40 \Omega \square^{-1}$), ist anzunehmen, dass auch der (spezifische) Kontaktwiderstand größer ausfallen wird. Aus diesem Grund wird neben der bisherigen Strukturierung mit unterschiedlicher Pulsspitzenfluenzen ebenfalls die Herstellung einer breiteren Kontaktfläche durch Ablation zweier überlappender Strukturierungslinien getestet. Die lichtmikroskopischen Aufnahmen in **Abbildung 5.4a** zeigen dabei homogene Ablationsergebnisse sowohl für ähnliche Pulsspitzenfluenzen wie zuvor ($F_P \approx 0,2 \text{ J cm}^{-2}$), als auch für höhere Pulsspitzenfluenzen ($F_P \approx 0,4 \text{ J cm}^{-2}$), sowie doppelter Strukturierungslinie. Dabei steigt die laterale Breite von ca. $30 \mu\text{m}$ auf $80 \mu\text{m}$ an, sodass die Kontaktfläche bei gleichbleibender Qualität der Strukturierungslinien deutlich vergrößert werden kann. Die geringe Rauigkeit ($R_z \leq 300 \text{ nm}$), das Vermeiden von Defekten, sowie die rückstandlose Ablation ohne Beschädigung der Frontelektrode IO:H wird durch die Weißlichtinterferometriemessung (siehe **Abbildung 5.4b**) bestätigt. Für die Optimierung des Kontaktwiderstands wird wieder das Transmissionlinienmessprinzip und vorheriges Layout genutzt, wobei der Schichtstapel um Goldstreifen (siehe **Abbildung 5.4b**) ergänzt wird, um einen Einfluss des IZO Schichtwiderstands auf die Messungen zu vermeiden. Der resultierende Kontaktwiderstand R_C ist als Konturplot über die Pulsspitzenfluenzen F_P und die laterale Gesamtbreite der P2 Strukturierungslinien dargestellt. Geringere

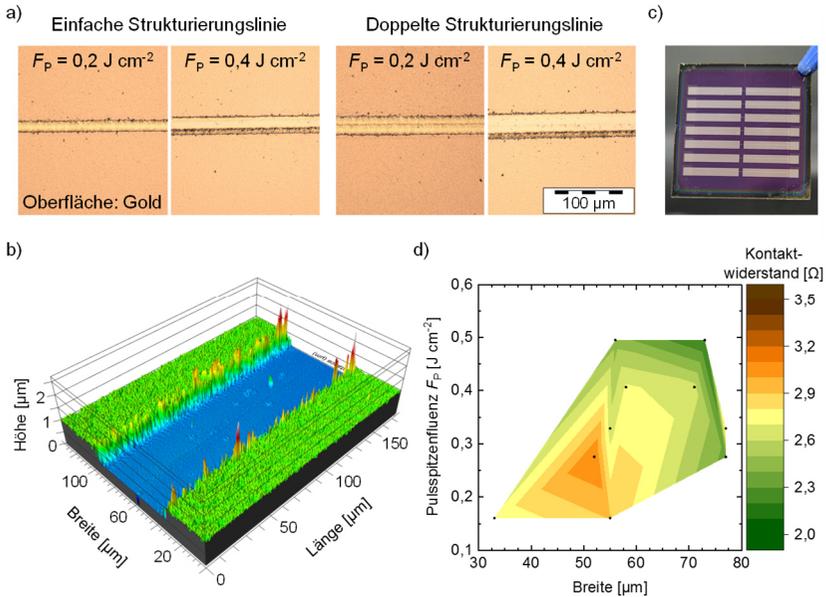


Abbildung 5.4. Untersuchung der P2 Strukturierungslinie für den verwendeten Schichtstapel semitransparenter Perowskit-Solarmodule. (a) Lichtmikroskopische Aufnahmen der einfachen und doppelten P2 Strukturierungslinien mit unvollständiger Ablation bei zu niedrigen (jeweils links) und vollständiger Ablation bei idealen (jeweils rechts) Pulsspitzenfluenzen. (b) Weißlichtinterferometriemessung der P2 Strukturierungslinie, die die selektive Ablation funktionaler Schichten bis zum Frontkontakt bei minimaler Rauigkeit und Defektdichte zeigt. (c) Fotografie eines hergestellten Substrats zur Veranschaulichung des Messlayouts zur Bestimmung des Kontaktwiderstands mit zwei Messreihen (vertikal), sichtbarem transparenten Rückkontakt IZO (lila) sowie notwendigen Goldstreifen (gelb-grau). (d) Resultierender Kontaktwiderstand in Abhängigkeit von der Breite der P2 Strukturierungslinie (x-Achse) sowie der gewählten Pulsspitzenfluenzen (y-Achse) bei ansonsten konstanter Prozess- und Materialparameter.

Kontaktwiderstände stellen sich dabei bei höherer Pulsspitzenfluenz und größerer Breite ein, wobei ersteres durch die Beschädigung der Frontelektrode und letzteres durch die höhere Verschaltungsbreite praktisch limitiert sind. Dennoch entspricht der geringste Kontaktwiderstand mit $R_C \approx 2,0 \Omega$ (längenspezifischer Kontaktwiderstand $\rho_C \approx 2,0 \Omega\text{cm}$) für ideale Parameter (Pulsspitzenfluenz, Breite) nur dem Dreifachen des optimierten Kontaktwiderstandes für opake Perowskit-Solarmodule und sollte somit ebenfalls nur zu kleinen Aufskalierungsverlusten führen.

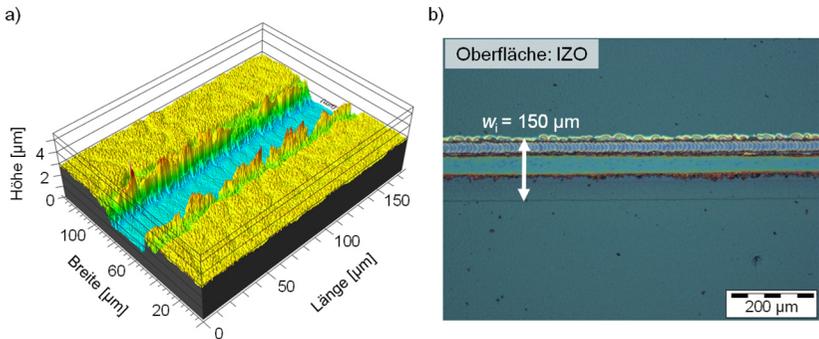


Abbildung 5.5. Untersuchung der P3 Strukturierungslinie für den verwendeten Schichtstapel semitransparenter Perowskit-Solarmodule. (a) Weißlichtinterferometriemessung der P3 Strukturierungslinie, die die selektive Ablation der IZO Rückkontaktschicht sowie weiterer funktionaler Schichten bis zum Frontkontakt bei minimaler Rauigkeit und Defektdichte zeigt. (b) Detailaufnahme der P1, P2 und P3 Verschaltungslinien sowie erreichte Positioniergenauigkeit im monolithischen Verschaltungsprozess.

Für die elektrische Isolierung der Rückelektrodenstreifen ist statt der bisher biegsamen, dünnen (75 nm) und opaken Metallschicht (Au) eine spröde, dickere (165 nm) und transparente Oxidschicht (IZO) zu strukturieren. Dabei ist anzunehmen, dass aufgrund der hohen Ablationsschwelle für Oxidschichten im Vergleich zu organischen Schichten und des hohen Transmissionsgrads des IZO für die Wellenlänge des Lasers (532 nm) die Ablation durch explosionsartige Verdampfung des darunterliegenden Perowskit-Absorbers und dem Abplatzen des darüberliegenden IZO geschieht.⁸² Folgerichtig wird eine vollständige und zuverlässige elektrische Isolierung bereits für niedrige Pulsspitzenfluenzen von $F = 0,25 \text{ J cm}^{-2}$, welche auch für die Ablation des Perowskit-Absorbers geeignet sind, erzielt. Die resultierende homogene und defektfreie P3 Strukturierungslinie ist in **Abbildung 5.5a** gezeigt. Durch die Optimierung der Strukturierungslinien sowie die präzise Positionierung im monolithischen Verschaltungsprozess kann in **Abbildung 5.5b** erfolgreich eine sehr geringe Verschaltungsbreite von $w_1 \approx 150 \text{ µm}$ demonstriert werden.

5.2.2 Parameterbasierte Optimierung der Modulgeometrie semitransparenter Perowskit-Solarmodule

Nachdem die Strukturierungslinien für den semitransparenten Schichtstapel optimiert wurden, sollen nun mithilfe des Modells der Aufskalierungsverluste von Zelle zu Modul aus Kapitel 2.1.5 die Modulgeometrie und Verschaltungsbreite so

gewählt werden, dass sich ein Minimum für den Gesamtverlust ergibt. Dabei ist weiterhin zu beachten, dass sich aufgrund der größeren Bandlücke der Perowskit-Halbleiterschichten für semitransparente Module, des einhergehenden

Transmissionsgrads sowie der fehlenden Reflektion an der Metallrückelektrode die Eingangsparameter für das Modell verändern. Es wird erwartet, dass die Spannung V_{MPP} größer und die Stromdichte J_{MPP} kleiner gegenüber der Kenngrößen der opaken Solarzelle werden. Wie aus den Gleichungen 2.42 und 2.46 erkennbar, wird hierdurch die Gewichtung von Widerstandsverlusten gegenüber Verlusten inaktiver Fläche geringer. Die verwendeten Eingangsparameter sind in **Tabelle 5.1** dargestellt.

Die unterschiedlichen Anteile der resultierenden relativen Aufskalierungsverluste sind in **Abbildung 5.6** dargestellt. Während zwar die veränderten Kennwerte der Solarzelle den Anteil der Widerstandsverluste grundsätzlich schmälern, sind die Schichtwiderstandsverluste aufgrund des höheren Schichtwiderstands des IZO gegenüber Au für das semitransparente Modul bei gleicher Zellstreifenbreite deutlich angestiegen (siehe **Abbildung 5.6a**). Die Verluste aufgrund inaktiver Fläche in **Abbildung 5.6b** sind dagegen unverändert, da es sich um einen ausschließlich geometrischen Zusammenhang handelt. Des Weiteren sind die Verschaltungswiderstandsverluste nur sehr geringfügig gestiegen (vergleiche

Abbildung 5.6c), was zum einen auf den auch für semitransparente Solarzellen erzielten geringen Kontaktwiderstand sowie dem allgemein geschmälernten Anteil der Widerstandsverluste aufgrund geringerer Ströme zurückzuführen ist. Der resultierende relative Gesamtaufskalierungsverlust ist in **Abbildung 5.6d** dargestellt und zeigt die deutliche Verschiebung des theoretischen Minimums hin zu kleineren Zellstreifenbreiten. Bei Verwendung der bisherigen Modul- und Verschaltungsgeometrie (4 mm Zellstreifenbreite, 160 μm Verschaltungsbreite) erhöhen sich die Gesamtverluste von 6,0% auf 9,3%, wobei dies im Wesentlichen durch die Steigerung der Schichtwiderstandsverluste von 1,5% auf 4,8% begründet ist. Dagegen liegt das theoretische Minimum bei einer Zellstreifenbreite von 2,6 mm und 124 μm Verschaltungsbreite und würde in 7,5% Gesamtverluste resultieren.

Tabelle 5.1. Angenommene Eingangsparameter für semitransparente Perowskit-Solarmodule zur parameterbasierten Optimierung der Modul- und Verschaltungsgeometrie basierend auf dem mathematischen Modell zur Berechnung der Aufskalierungsverluste aus Kapitel 2.1.5.

J_{MPP} [mA cm ⁻²]	V_{MPP} [V]	R_{FE}^{\square} [Ω □ ⁻¹]	R_{RE}^{\square} [Ω □ ⁻¹]	ρ_c [Ωcm]	w_a [cm]	w_i [μm]	w_{P2} [μm]	L_T [μm]
18,0	1,0	15,0	40,0	2,5	0,1 $\leq w_a$ $\leq 1,0$	120 $\leq w_i$ ≤ 700	$w_i - 100$	191

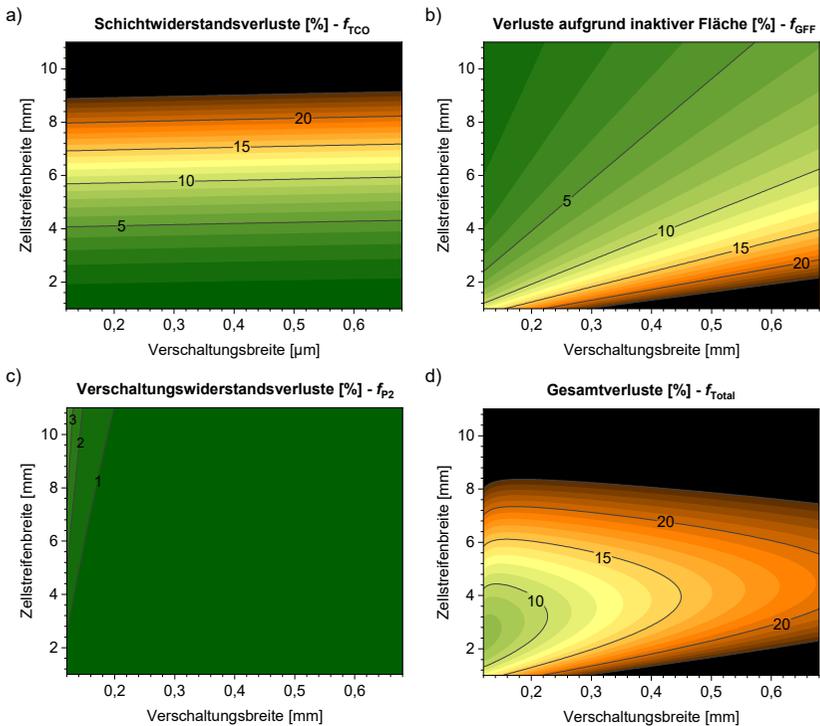


Abbildung 5.6. Relative Reduzierung des Wirkungsgrads für die Aufskalierung semitransparenter Perowskit-Photovoltaik von Solarzellen zu -modulen als Funktion der Verschaltungsbreite und Zellstreifenbreite. (a) Verluste aufgrund der Serienwiderstände der Front- und Rückkontaktschichten. (b) Verluste aufgrund notwendiger Verschaltungslinien und entsprechender Reduzierung aktiver Fläche. (c) Verluste aufgrund des Kontaktwiderstands zwischen Front- und Rückkontakt in der Verschaltungslinie P2. (d) Resultierende Gesamtverluste der Aufskalierung.

Um wie zuvor die höheren Fertigungs- und Positioniertoleranzen für einen reproduzierbaren Standardprozess einzubeziehen, wird wiederum die Verschaltungsbreite auf 160 μm festgelegt. Hierdurch erhöht sich die optimale Zellstreifenbreite auf etwa 3 mm und es ergeben sich Gesamtverluste von 8,3%.

5.2.3 Charakterisierung semitransparenter Perowskit-Solarmodule für 4-Terminal Tandem Photovoltaik

Nachdem das Verschaltungskonzept von opaker auf semitransparente Perowskit-PV übertragen und optimiert, sowie die Modulgeometrie für minimale theoretische

Aufskalierungsverluste angepasst wurde, soll nun die effiziente Aufskalierung zu funktionalen semitransparenten Perowskit-Solarmodulen demonstriert werden. Dafür werden zunächst semitransparente Perowskit-Solarmodule mit $4,2 \text{ cm}^2$ und anschließend Solarmodule mit $11,2 \text{ cm}^2$ Aperturfläche hergestellt. Wie zuvor werden für die detaillierte Beurteilung der Aufskalierungseigenschaften die elektrischen Eigenschaften mittels Messung der Stromdichte-Spannungskennlinien und deren Analyse bestimmt. Weiterhin soll die theoretische Verwendung in einem 4-Terminal-Tandem-Solarmodulstapel ermöglicht werden, sodass die Solarmodule verkapselt werden und auf Kurz- sowie Langzeitstabilität untersucht werden.

Die Stromdichte-Spannungskennlinie des leistungsstärksten semitransparenten Perowskit-Solarmoduls mit $4,2 \text{ cm}^2$ Aperturfläche und 7 verschalteten Zellstreifen ($3 \text{ mm} \times 20 \text{ mm}$) ist in **Abbildung 5.7a** dargestellt. Das Solarmodul weist dabei einen Wirkungsgrad von 15,3%, 74% FF, 8,2 V V_{OC} und $17,5 \text{ mA cm}^{-2}$ J_{SC} in Rückwärtsmessrichtung auf. Der nur kleine Unterschied zu den Kennwerten der Vorwärtsmessrichtung von 14,6% PCE, 73% FF, 8,3 V V_{OC} und $17,2 \text{ mA cm}^{-2}$ J_{SC} bestätigt eine sehr geringe Hysterese. Während die Breite der Strukturierungslinien mit $160 \mu\text{m}$ einem GFF von $> 94\%$ entspricht, zeigt der Vergleich der Stromdichte mit der leistungsstärksten Referenzsolarzelle (siehe **Tabelle 8.8**) eine Reduktion von $\approx 6,4\%$ ($7,0\%$). Während diese Reduktion der Kurzschlussstromdichte auch aufgrund kleinerer Defekte und Inhomogenitäten in der Schichtherstellung zustande kommen kann, weist sie in jedem Fall auf eine sehr schonende Laserstrukturierung hin, die keine oder nur geringfügige schädigende Wirkung auf funktionale Schichten in der Umgebung der Strukturierungslinien hat. Die hohe kumulierte

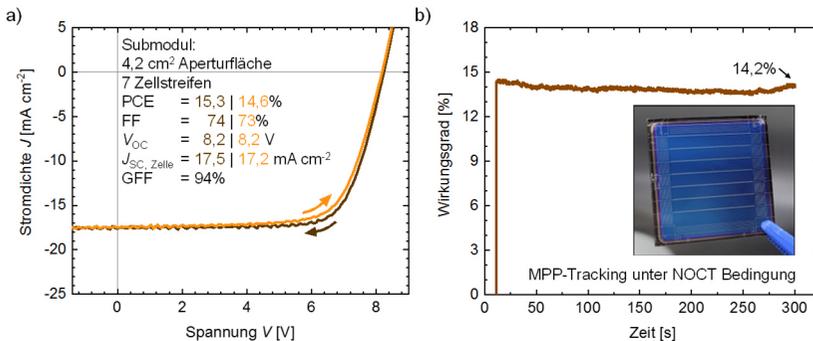


Abbildung 5.7. Elektrische Charakterisierung des leistungsstärksten semitransparenten Perowskit-Solarmoduls mit $4,2 \text{ cm}^2$ Aperturfläche und 7 monolithisch verschalteten Teilzellen. (a) Stromdichte-Spannungskennlinie des leistungsstärksten Solarmoduls und Übersicht der Kennwerte. (b) Kurzzeitstabilität des Wirkungsgrads unter kontinuierlicher Beleuchtung während des MPP-Trackings bei nominalen Betriebstemperaturen der Zelle (NOCT) ohne aktive Kühlung. Inset: Fotografie der Rückseite des semitransparenten Perowskit-Solarmoduls.

Leerlaufspannung sowie der weiterhin gute Füllfaktor im Vergleich zur Referenzzelle beweist die exzellente Verschaltung mit nur kleinen Verlusten aufgrund eines reduzierten Parallelwiderstands und höheren Serienwiderstands trotz der deutlich kleineren Leitfähigkeit der Rückelektrode. Die Aufskalierungsverluste bezüglich 17,7% (16,5%) PCE der Referenzzelle entsprechen für das semitransparente Solarmodul 13,6%_{rel} (11,5%_{rel}) und liegen damit 5,3 %_{rel} (3,2%_{rel}) über den theoretischen Aufskalierungsverlusten. Weiterhin zeigt das Solarmodul eine gute Kurzzeitstabilität auf, wie in **Abbildung 5.7b** dargestellt.

Für die Herstellung des größeren Solarmoduls ist die Bandlücke des Perowskit-Absorbers durch Anpassung der Bromid- und Iodid-Anteile zu $\text{Cs}_{0,17}\text{FA}_{0,83}\text{Pb}(\text{I}_{0,92}\text{Br}_{0,08})_3$ von $\approx 1,74$ zu $\approx 1,69$ reduziert worden, um den in der Top-Zelle absorbierten Anteil des Lichtspektrums zu vergrößern und so potentiell die Gesamteffizienz eines 4-Terminal-Tandem-Solarmoduls zu erhöhen. Des Weiteren wurde das Laserstrukturierungslayout um Referenzmarkierungen ergänzt, um für das entwickelte Stapelkonzept zweier Module in Tandem-Konfiguration, dargestellt in **Abbildung 8.1** des Anhangs, eine hohe Positioniergenauigkeit zu erzielen.

Die Ergebnisse der Charakterisierung des leistungsstärksten semitransparenten Perowskit-Solarmoduls mit 11,2 cm² Aperturfläche und 11 verschalteten Zellstreifen (3 mm × 34 mm) sind in **Abbildung 5.8a** dargestellt. Dabei demonstriert es mit 14,8% PCE, 73% FF, 11,8 V V_{OC} und 19,0 mA cm⁻² J_{SC} und ebenfalls geringer Hysterese die erfolgreiche Aufskalierung um einen Faktor von ≈ 100 gegenüber den

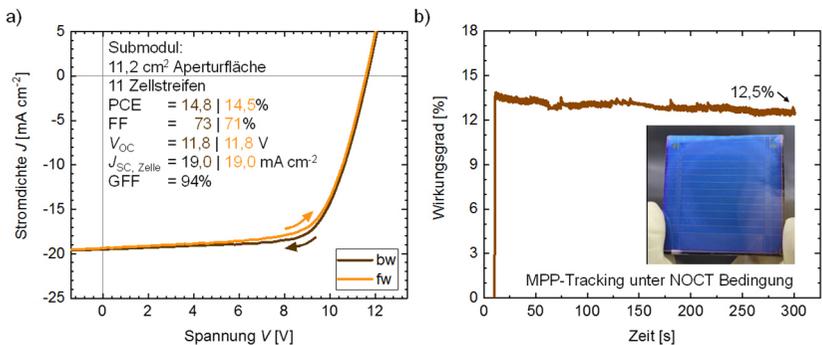


Abbildung 5.8. Elektrische Charakterisierung des leistungsstärksten semitransparenten Perowskit-Solarmoduls mit 11,2 cm² Aperturfläche und 11 monolithisch verschalteten Teilzellen. (a) Stromdichte-Spannungskennlinie des leistungsstärksten Solarmoduls und Übersicht der Kennwerte. (b) Kurzzeitstabilität des Wirkungsgrads unter kontinuierlicher Beleuchtung während des MPP-Trackings bei nominalen Betriebstemperaturen der Zelle (NOCT) ohne aktive Kühlung. Inset: Fotografie der Rückseite des semitransparenten Perowskit-Solarmoduls.

Referenzsolarzellen. (Aufgrund defekter Referenzsolarzellen ist der Vergleich der Kennwerte mit Solarzellen desselben Herstellungsdurchgangs leider nicht möglich, weshalb im Folgenden der Vergleich mit den Referenzsolarzellen des vorherigen Herstellungsdurchgangs durchgeführt wird.) Die Aufskalierungsverluste ergeben sich zu 16,4%_{rel} (12,1%_{rel}). Die Kurzzeitstabilität des Wirkungsgrads (siehe **Abbildung 5.8b**) zeigt dabei einen geringfügig stärkeren Rückgang nach 300 s als für das kleinere Solarmodul, das auf einen stärkeren Einfluss der steigenden Nennbetriebstemperatur für den in diesem Fall verwendeten Perowskit-Absorber hinweist.

Die Untersuchung der Langzeitstabilität der semitransparenten Perowskit-Solarmodule wird für zwei verschiedene Lagerbedingungen und nacheinander durchgeführt. Dabei werden sie nach der initialen Charakterisierung noch unverkapselt in einer Glovebox in inerter trockener Stickstoffatmosphäre bis zur nächsten Messung nach etwa 80 Tagen gelagert. Anschließend werden die Solarmodule mittels zweitem Glassubstrat und UV-härtendem Epoxid-Harz verkapselt und sowohl am Tag des Verkapselns als auch nach etwa 6 Monaten Lagerung in normaler Umgebungsluft mit entsprechender Luftfeuchte erneut gemessen. Die charakteristischen Kennwerte der Solarmodule für die 4 Messpunkte sind in **Abbildung 5.9** dargestellt. Die sich innerhalb der Messtoleranzen bewegenden Kennwerte für Tag 79 gegenüber Tag 1 demonstrieren die gute grundlegende chemische Stabilität der semitransparenten Solarmodule und des eingesetzten Schichtstapels in inerter Atmosphäre. Dagegen zeigt die Messung nach der Verkapselung (Tag 108) eine deutliche Abnahme des Wirkungsgrads für beide Solarmodule. Diese Abnahme wird zum überwiegenden Teil durch die Reduktion der Kurzschlussstromdichten um fast ein Fünftel verursacht, was auf eine Veränderung des Perowskit-Absorbers hindeutet, welche aufgrund der thermischen und lichtinduzierten Belastung während des Verkapselungsprozesses zustande kommen kann. Beeindruckenderweise ist eine nahezu vollständige Erholung dieses Abfalls der Kurzschlussstromdichten, als auch der offenen Klemmspannungen und der Wirkungsgrade beim nächsten Messpunkt nach etwa 6 Monaten festzustellen. Dies ist durch die selbstheilenden Eigenschaften des Perowskit-Absorbers zu erklären, die insbesondere bei Verkapselung und dem damit einhergehenden Einschluss von gasförmigen Degradationsprodukten bei thermischer und lichtinduzierten Belastungen beobachtet werden können.²⁰⁷ Dabei formen die Degradationsprodukte und der veränderte Perowskit-Absorber aufgrund reversibler Vorgänge mit Aussetzen der externen Belastung die thermodynamisch präferierte, ursprüngliche Verbindung.

Die Vorder- und Rückseite des verkapselten semitransparenten Perowskit-Solarmoduls nach etwa einem dreiviertel Jahr Lagerung bei unterschiedlichen Bedingungen ist in **Abbildung 5.10a** gezeigt. Dabei weist der Perowskit-Absorber

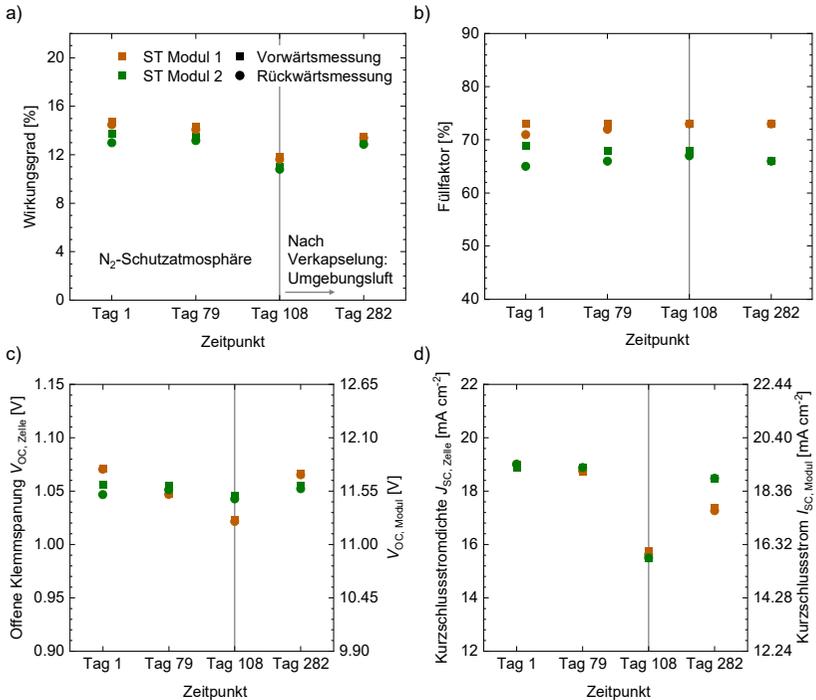


Abbildung 5.9. Untersuchung der Veränderung der charakteristischen Kennwerte zweier semitransparenter Perowskit-Solarmodule vor und nach Verkapselung bei anfänglicher Lagerung in inerter Glovebox (unverkapselt) und anschließender Lagerung in normaler Atmosphäre (verkapselt). Zeitlicher Verlauf (a) des Wirkungsgrads, (b) des Füllfaktors, (c) der offenen Klemmspannung und (d) der Kurzschlussstromdichte.

keine optischen Anzeichen für Degradation auf. Hierbei wäre ein häufiger, optisch sichtbarer Degradationsmechanismus beispielsweise das Formen von gelblichem Bleiodid (PbI_2). Weiterhin zeigt eine erneute kontinuierliche Wirkungsgradmessung, dargestellt in **Abbildung 5.10b**, eine gegenüber der ersten Messung (Tag 1, unverkapselt) deutlich verbesserte Kurzzeitstabilität. Während der Wirkungsgrad zuvor von 13,6% auf 12,5% binnen 300 s abgefallen ist, fällt er nun lediglich von 13,4% auf 13,1%. Somit hat nicht nur der angenommene Einfluss des Anstiegs der Betriebsnennentemperatur (Temperaturkoeffizient) abgenommen, sondern ebenfalls der stabilisierte Wirkungsgrad bei kontinuierlicher Messung zugenommen.

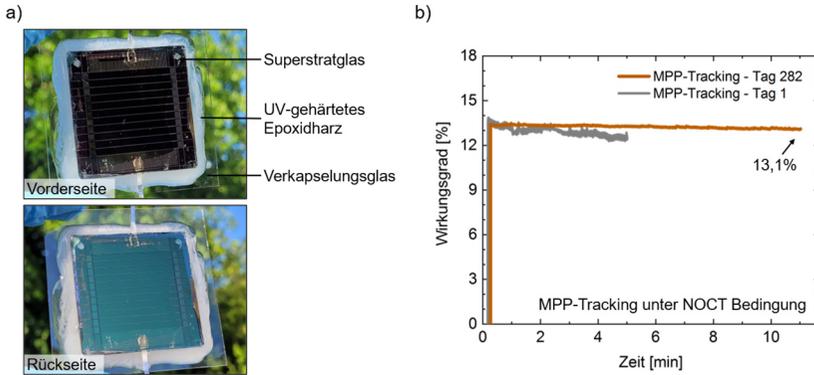


Abbildung 5.10. Untersuchung der Kurzzeitstabilität des Wirkungsgrads eines semitransparenten Perowskit-Solarmoduls bei Verkapselung mittels Epoxidharzes und zweier Glassubstrate bei anfänglicher Lagerung in inerter Glovebox (unverkapselt) und anschließender Lagerung in normaler Atmosphäre (verkapselt). (a) Fotografien der Vorder- und Rückseite des verkapselten semitransparenten Perowskit-Solarmoduls (Tag 282 nach Herstellung). (b) Kurzzeitstabilität des Wirkungsgrads des verkapselten Moduls unter kontinuierlicher Beleuchtung während des MPP-Trackings bei nominalen Betriebstemperaturen der Zelle (NOCT) ohne aktive Kühlung.

5.2.4 Wirkungsgradabschätzung eines 4-Terminal Perowskit-CIGS-Tandem-Solarmoduls

Nach der detaillierten Charakterisierung des semitransparenten Perowskit-Solarmoduls ist der resultierende Gesamtwirkungsgrad beim angestrebten Einsatz als 4-Terminal-Tandem-Solarmodul von besonderem Interesse. Während eine realistische Bestimmung des Gesamtwirkungsgrads für 2-Terminal-Tandem-PV aufgrund der monolithischen Bauweise und sich der gegenseitig beeinflussenden Schichteigenschaften nur bei Vorhandensein des vollständigen Schichtstapels möglich ist, kann dies für 4-Terminal-Tandem-PV auch ohne mechanisches Stapeln und simultanes Messen erfolgen. Hierdurch kann im Folgenden vor Entwicklung eines passenden Solarmoduls als Bottom-Zelle mit kleiner Bandlücke der Gesamtwirkungsgrad auch auf Basis einer Solarzelle mit kleiner Bandlücke, sowie unterstützender Charakterisierungen und fundierter Annahmen realistisch abgeschätzt werden.

Für die Gesamtwirkungsgradabschätzung des 4-Terminal-Tandems ist es notwendig, den Wirkungsgrad der Bottom-Zelle zu ermitteln, den diese bei Illumination durch die Top-Zelle erzielt, also bei deutlich geringerer

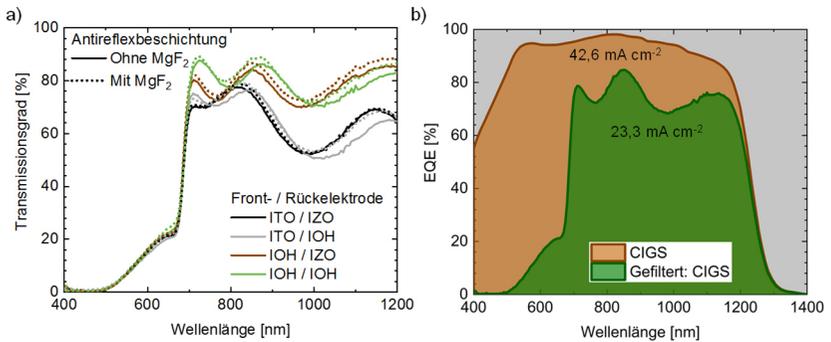


Abbildung 5.11. Optische Charakterisierung der zwei Komponenten der 4-Terminal Konfiguration. (a) Vergleich des Transmissionsgrads als Funktion der Wellenlänge für semitransparente Perowskit-Solarmodule bei Verwendung unterschiedlicher Front- und Rückkontaktmaterialkombinationen sowie ohne und mit zusätzlicher Antireflexbeschichtung. (b) EQE-Spektrum einer CIGS Solarzelle bei normaler Beleuchtungsintensität (AM1.5G), kalkulierte EQE-Spektrum einer CIGS-Solarzelle bei Beleuchtung durch ein semitransparentes Perowskit-Solarmodul mit IOH/IZO Front-/Rückelektrode, sowie die jeweils resultierenden integrierten Kurzschlussstromdichten.

Strahlungsintensität gegenüber dem Standardspektrum AM1.5G. Hierfür wird zunächst der wellenlängenspezifische Transmissionsgrad der Top-Zelle gemessen. Durch Multiplikation mit dem Standardspektrum AM1.5G ergibt sich dabei die spektrale Strahlungsintensität, welche die Bottom-Zelle im Tandem-Stapel erfahren würde. Weiterhin wird das EQE der Bottom-Zelle (CIGS) gemessen, welches durch Multiplikation mit der Photonenflussdichte des Standardspektrums die Kurzschlussstromdichte der Solarzelle ergibt. Durch Kombination beider Datensätze wird über die reduzierte Kurzschlussstromdichte zunächst der reduzierte Wirkungsgrad der Bottom-Zelle bei hypothetischem Einsatz in 4-Terminal-Tandem-Konfiguration ermittelt und anschließend der Gesamtwirkungsgrad durch Addition mit dem Wirkungsgrad des semitransparenten Perowskit-Solarmoduls kalkuliert.

Das Transmissionspektrum des semitransparenten Perowskit-Solarmoduls ist in **Abbildung 5.11a** dargestellt. Da die Höhe des Transmissionsgrads unterhalb der Bandkante des Perowskit-Absorbers hauptsächlich von den gewählten Transportschichten abhängt, sind dabei neben den Ergebnissen für das leistungsstärkste Perowskit-Solarmodul mit IOH/IZO Front-/Rückelektrodenkombination zum Vergleich weitere mögliche Kombinationen etablierter transparenter Kontaktschichten gezeigt. Dabei gilt bei der Auswahl der Schichten neben einem möglichst hohen Transmissionsgrad unterhalb der Bandkante für hohe Wirkungsgrade in der Bottom-Zelle, ebenfalls einen möglichst

Tabelle 5.2. Wirkungsgradabschätzung eines 4-Terminal-Tandem-Solarmoduls auf Basis der photovoltaischen Kenngrößen des leistungsstärksten semitransparenten Perowskit-Solarmoduls sowie einer CIGS-Solarzelle bei Illumination mit Lichtspektrum AM1.5G.²⁰⁰ Kalkulierte Kenngrößen sind im Gegensatz zu gemessenen Kenngrößen kursiv dargestellt.

	<i>PCE</i> [%]	<i>FF</i> [%]	<i>V_{oc}</i> [V]	<i>J_{sc}</i> [mA cm ⁻²]
Semitransparentes Perowskit-Solarmodul AM1.5G	14,8	73	11,8	19,0
CIGS-Solarzelle AM1.5G	18,7	73	0,60	43,0
<i>CIGS-Solarzelle</i> <i>Gefiltertes Lichtspektrum</i>	9,7	73	<i>0,57</i>	23,3
CIGS-Modul <i>Gefiltertes Lichtspektrum</i>	8,3			
4-Terminal-Perowskit-CIGS-Tandem-Solarmodul AM1.5G	23,1			

hohen Transmissionsgrad der Frontelektrode oberhalb der Bandkante sowie hohe Leitfähigkeiten zu erhalten, sodass auch die Top-Zelle einen hohen Wirkungsgrad erzielt. Die gemessenen Transmissionspektren demonstrieren, dass die gewählte IO:H/IZO Kombination mit 76% nahezu den höchsten Transmissionsgrad unterhalb der Bandkante erzielt. Lediglich IO:H/IO:H weist mit 78% eine leichte Steigerung auf, während ITO/IZO sowie ITO/IO:H mit 64% und 69% einen deutlich geringeren Transmissionsgrad aufweisen. Durch die Nutzung einer Antireflexionsbeschichtung wird der erzielte Transmissionsgrad um etwa 2% auf 78% für IO:H/IZO und auf 80% für IO:H/IO:H gesteigert.

Das EQE-Spektrum der Bottom-Zelle (CIGS) ist in **Abbildung 5.11b** dargestellt. Die charakteristischen Kenngrößen der CIGS-Solarzelle sowie des semitransparenten Perowskit-Solarmoduls für Illumination mit dem Standardspektrum AM1.5G sind in **Tabelle 5.2** aufgeführt.²⁰⁰ Dabei ergibt sich die Kurzschlussstromdichte der Bottom-Zelle aus dem EQE-Spektrum durch Multiplikation mit der wellenlängenspezifischen Photonenstromdichte zu $\approx 42,6 \text{ mA cm}^{-2}$ und stimmt damit mit der Kurzschlussstromdichte der Stromdichte-Spannungsmessung sehr gut überein. Das resultierende EQE-Spektrum bei Illumination durch die semitransparente Top-Zelle (grün) zeigt insbesondere oberhalb der Perowskit-Bandkante einen deutlichen

Abfall gegenüber der Standardillumination. Die Kurzschlussstromdichte ergibt sich wiederum zu $\approx 23,3 \text{ mA cm}^{-2}$. Aufgrund der mit der Strahlungsintensität logarithmisch abfallenden Spannung einer Solarzelle wird weiterhin eine Reduktion der offenen Klemmspannung um 30 mV angenommen. Der Wirkungsgrad der CIGS-Solarzelle bei Illumination durch das semitransparente Perowskit-Solarmodul reduziert sich somit auf $\approx 9,7\%$. Weiterhin wird von einem ähnlichen Aufskalierungsverlust von CIGS-Solarzellen zu passenden Solarmodulen wie für das Perowskit-Solarmodul ausgegangen. Durch diesen Aufskalierungsverlust von $14\%_{\text{rel}}$ ergibt sich der finale Wirkungsgrad der Bottom-Zelle zu $\approx 8,3\%$. Somit beträgt der abgeschätzte Wirkungsgrad des 4-Terminal-Perowskit-Tandem-Solarmoduls vielversprechende $\approx 23,1\%$.

5.3 2-Terminal Perowskit-Tandem-Photovoltaik

Wie in Kapitel 2.1.3 eingeführt, basiert die 2-Terminal-Tandem-PV auf der monolithischen Herstellung eines einzigen Zellstapels mit zwei übereinanderliegenden Absorbern unterschiedlicher Bandlücke (Top- und Bottom-Zelle). Hierdurch werden weniger funktionale und verkapselnde Schichten gegenüber der 4-Terminal-Tandem-PV benötigt, was geringere parasitäre Verluste sowie Gewichtsersparnisse zur Folge hat.⁹² Durch die Integration einer Rekombinations- oder Tunnelschicht entsteht ein direkter elektrischer Kontakt zwischen Top- und Bottom-Zelle, sodass es lediglich zweier externer Kontakte und entsprechend weniger elektrischer Systemkomponenten bedarf. Die in dieser Arbeit verwendete Perowskit-Perowskit Dünnschichtabsorberkombination verspricht grundsätzlich Energie- und Kosteneinsparungen bei der Herstellung, sowie weitere Anwendungspotentiale im Bereich der leichten und mechanisch flexiblen Photovoltaik. Während die Aufskalierung der prominenten waferbasierten Si-Perowskit-Tandem-PV die Integration von Kontaktfingern und Busbars, sowie die Verschaltung der Wafer notwendig machen würde, ist für Perowskit-Perowskit-Tandem-Solarmodule die monolithische Verschaltung, wie in **Abbildung 5.12a** gezeigt, notwendig. Wie zuvor soll das Verschaltungskonzept mit P1, P2 und P3 Strukturierungslinien genutzt werden. Dabei ist es aufgrund des monolithischen Schichtstapels notwendig, den Frontkontakt der Top-Zelle direkt mit dem Rückkontakt der Bottom-Zelle zu verschalten.

Für die Herstellung der Perowskit-Perowskit-Tandem-Solarmodule wird die zum Teil gedampfte und lösungsprozessierte Schichtstapelsequenz aus IO:H, 2PACz, WBG Perowskit $\text{Cs}_{0,2}\text{FA}_{0,8}\text{Pb}(\text{I}_{0,6}\text{Br}_{0,4})_3$ (Bandlücke: 1,78 eV), Lithiumfluorid (LiF), C_{60} , SnO_2 , Au, Poly-3,4-ethyldioxythiophen (PEDOT:PSS), NBG Perowskit $\text{Cs}_x(\text{FA}_{0,83}\text{MA}_{0,17})_{1-x}\text{Sn}_3\text{Pb}_{0,5}\text{I}_3$ (Bandlücke: 1,26 eV), 6-6-Phenyl-C61-Buttersäuremethylester (PCBM), C_{60} , BCP und Au, wie in **Abbildung 5.12b** dargestellt, genutzt. Ein wesentlicher Unterschied zu Schichtstapeln von Tandem-Solarzellen vorausgegangener Arbeiten ist die Verwendung einer perkolierten Goldschicht mit 1 nm Dicke statt einer 15 nm ITO-Schicht als Rekombinationsschicht. Erstere weist aufgrund der Diskontinuität des Films einen um mehrere Größenordnungen höheren lateralen Schichtwiderstand ($\sim \text{M}\Omega \square^{-1}$) gegenüber ITO ($\approx 0,5 \text{ k}\Omega \square^{-1}$) auf, wodurch die Verringerung des Parallelwiderstands und Kurzschlüsse durch die P2-Strukturierungslinie vermieden werden sollen.¹⁸⁹ Die Nutzung von Gold als dickere Rückkontaktschicht (75 nm) ist dagegen aufgrund der hohen Materialkosten für eine industrielle Modulproduktion wirtschaftlich nicht tragbar. Aus diesem Grund soll die Möglichkeit der Laserstrukturierung von Kupfer und Silber als zwei günstigere Metallelektrodenalternativen getestet werden. Nach der Optimierung der Strukturierungsprozesse

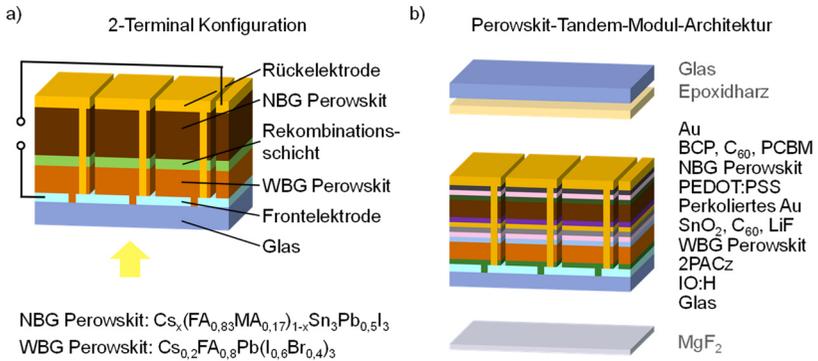


Abbildung 5.12. (a) Schematische Darstellung einer möglichen Bauelementarchitektur zur Herstellung eines monolithischen 2-Terminal Tandem-Solarmoduls, dessen Schichtstapel eine Perowskit-Absorber mit großer Bandlücke (unten), eine Rekombinationsschicht sowie eine Perowskit-Absorbers mit kleiner Bandlücke (oben) umfasst. (b) Verwendete Schichtstapelsequenz und Bauelementarchitektur des monolithisch verschalteten 2-Terminal Perowskit-Perowskit-Tandem-Solarmoduls.¹⁸⁹

zur Herstellung einer defektfreien Verschaltung soll die Modulgeometrie an die neuen Parameter angepasst werden. Um eine vollständige Skalierbarkeit des Herstellungsverfahrens wie in Kapitel 3.2.3.2 trotz der lösungsprozessierten Schichten zu erreichen, werden für die Herstellung größerer Solarmodule bisherige Rotationsbeschichtungsschritte durch das Klingenbeschichtungsverfahren ersetzt. Aufgrund der großen Komplexität des Schichtstapels, der Beschichtungsverfahren sowie der Laserstrukturierung soll die Schichthomogenität, die Verschaltungsfunktionalität sowie die Ladungsträgerextraktion mittels LBIC-Messungen evaluiert werden, wobei der LBIC-Messaufbau zur separaten Messung von Top- und Bottom-Zelle zu erweitern ist. Zuletzt sollen optimierte 2-Terminal-Perowskit-Perowskit-Tandem-Solarmodule hergestellt, charakterisiert und die Aufskalierungseffizienz festgestellt werden.

5.3.1 Verschaltungsoptimierung von 2-Terminal Perowskit-Perowskit-Tandem-Solarmodulen

Die Optimierung der Laserstrukturierung der IO:H Frontelektrode zur elektrischen Isolierung einzelner Zellstreifen mittels P1 wurde bereits in Kapitel 5.2.1 demonstriert. Durch Verwendung der gleichen Herstellungsmethode sowie Schichtdicke des IO:H ist eine erneute Validierung nicht notwendig.

Die P2 Strukturierungslinie zur elektrischen Verbindung der Front- und Rückelektrode ist aufgrund der TCO-Metall-Kontaktierung dagegen mit Kapitel 4.2.2 vergleichbar (ITO-Au vs. IO:H-Au). Ebenso basiert die HTL an der Frontelektrode wieder auf einem organischen Material (vergleiche Spiro-TTP vs. 2PACz). Unterschiede bestehen dagegen in der Anzahl der Schichten, der Komplexität des Schichtstapels und in der kumulierten Schichtdicke. Aufgrund der geringen Ablationsschwelle der organischen Schichten ist keine wesentliche Änderung des Kontaktwiderstands gegenüber der Ergebnisse aus Kapitel 4.2.2 zu erwarten. In Anbetracht der zuvor erzielten sehr geringen Kontaktwiderstände, die nahezu gleichbleibenden Materialparameter sowie das für Tandem-Solarmodule geringere Verhältnis von Strom zu Spannung und der damit verbundenen kleineren Aufskalierungsverluste durch elektrische Widerstände werden im Folgenden die Laserstrukturierungsparameter aus Kapitel 4.2.2 genutzt.

Die elektrische Isolierung der Metallrückkontakte mittels P3 Strukturierungslinie wird zunächst für die günstigeren und somit industriell relevanteren Metallalternativen Kupfer und Silber demonstriert. Während die Laserparameter aufgrund des komplexeren Schichtstapels, der zu erwartenden höheren Rauigkeit und der damit verbundenen Änderung der Haftkräfte der Metallschichten grundsätzlich auch für Gold zu validieren sind, ist für Kupfer und Silber aufgrund der deutlichen Unterschiede der Materialeigenschaften eine Parameterstudie notwendig. Einen wesentlichen Unterschied stellt dabei der Absorptionsgrad bei 532 nm dar, welcher für Gold bei 23%, für Kupfer bei 38% und für Silber lediglich bei 5% liegt. Trotz des deutlich höheren Absorptionsgrads und die sichtbar höhere Rauigkeit des Tandem-Schichtstapels verhält sich die Laserstrukturierung von Kupfer in **Abbildung 5.13a** ähnlich zu der von Gold (Kapitel 0). Wie zuvor führen Pulsspitzenfluenzen von $F_P < 0,2 \text{ J cm}^{-2}$ (Strukturierungsgeschwindigkeit $v = 125 \text{ mm s}^{-1}$) zu unvollständiger Trennung (linke Aufnahme), während $F > 0,3 \text{ J cm}^{-2}$ in deutlicher Span- und Defektbildung resultiert (mittlere Aufnahme). Dagegen können mittels $F_P \approx 0,25 \text{ J cm}^{-2}$ homogene Ablationsergebnisse demonstriert werden (rechte Aufnahme). Der große Einfluss eines optimierten Rissfortsatzes durch Anpassung der Strukturierungsgeschwindigkeit v ist in **Abbildung 5.13b** für die Laserstrukturierung des Silberrückkontakts dargestellt.⁸² Eine zu hohe Strukturierungsgeschwindigkeit $v = 250 \text{ mm s}^{-1}$ führt aufgrund mangelnder Überlappung des Ablationskrater und fehlendem Rissfortsatzes zu sehr starker Spanbildung mit Defekten, die bis zu 60 μm aus der eigentlichen Strukturierungslinie reichen. Die optimierte Strukturierungsgeschwindigkeit von $v = 125 \text{ mm s}^{-1}$ mit einem Überlappungsverhältnis aufeinanderfolgender Ablationskrater von ca. 50% bezogen auf deren Durchmesser ($2 \cdot \omega_a \approx 25 \mu\text{m}$) resultiert dagegen in deutlich geringerer Spanbildung. Durch eine zusätzliche Optimierung der Pulsspitzenfluenz von $F_P = 0,49 \text{ J cm}^{-2}$ auf $F_P = 0,39 \text{ J cm}^{-2}$ kann auch die homogene Aufnahme),

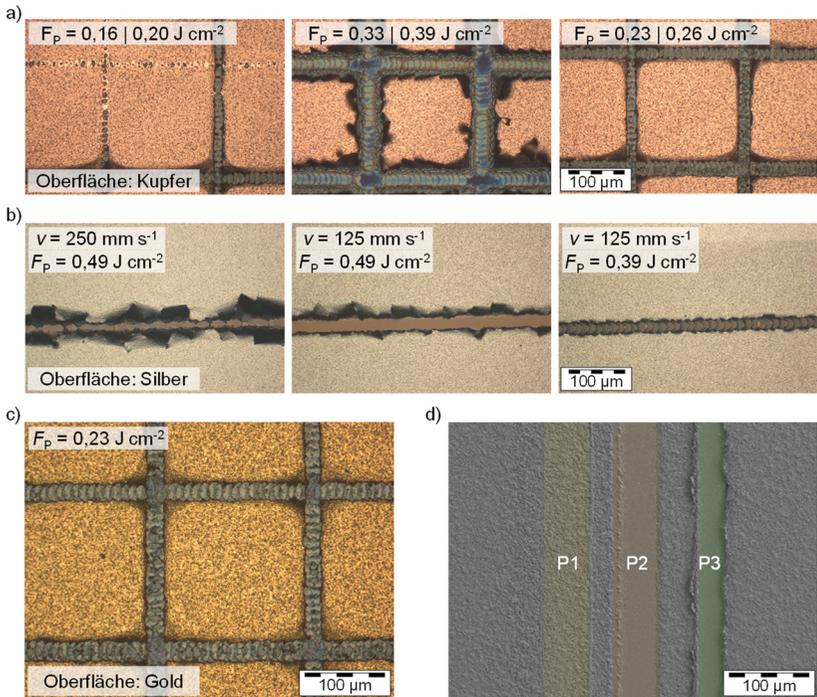


Abbildung 5.13. Resultate der Laserstrukturierung unterschiedlicher Rückkontaktschichten von 2-Terminal-Perowskit-Perowskit-Tandem-Solarzellen bei Verwendung unterschiedlicher Pulsspitzenfluenzen und Strukturierungsgeschwindigkeiten. Lichtmikroskopische Aufnahmen der hergestellten Strukturierungslinien (entspricht P3) für (a) eine Kupferrückkontaktschicht und (b) eine Silberrückkontaktschicht. (c) Optimierte Laserstrukturierung einer Goldrückkontaktschicht. (d) Rasterelektronenmikroskopieaufnahme der laserstrukturierten monolithischen Verschaltung eines Tandem-Solarmoduls mit P1, P2 und P3 Strukturierungslinie (angepasste Darstellung aus Abdollahi Nejang & Ritzer *et al.*¹⁸⁹).

Die höhere Pulsspitzenfluenz ist durch den deutlich geringeren Absorptionsgrad zu erklären.

Die Validierung der Laserparameter zur Strukturierung der Goldschicht als Standardmetallrückkontaktschicht für den Tandem-Schichtstapel ist in **Abbildung 5.13c** gezeigt. Dabei resultieren die in Kapitel 0 optimierten Laserparameter zu einem homogenen und gleichmäßigen Ablationsergebnis, sodass diese ohne weitere Anpassungen verwendet werden können. Die gesamtheitliche laserstrukturierte Verschaltung mit homogener und defektfreier P1, P2 und P3

Strukturierungslinie für den vorgestellten Tandem-Schichtstapel ist in **Abbildung 5.13d** demonstriert.

5.3.2 Parameterbasierte Optimierung der Modulgeometrie von 2-Terminal Perowskit-Perowskit-Tandem-Solarmodulen

Auf Basis der optimierten Verschaltungslinien sollen nun wie zuvor die Modulgeometrie und Verschaltungsbreite angepasst werden, um minimale Aufskalierungsverluste von Tandem-Solarzelle zu Tandem-Solarmodul zu gewährleisten. Hierbei gilt es zu beachten, dass sich aufgrund der Aufteilung der Absorption des Sonnenlichts auf zwei Absorberschichten und der monolithischen Herstellung mit elektrischer serieller Verschaltung beider Subzellen die Eingangsparameter des Modells ändern. So ist die Spannung V_{MPP} durch die Addition der Spannungen beider Subzellen deutlich größer als für eine 1-Übergangssolarzelle, während die Stromdichte J_{MPP} kleiner ausfallen wird. Wie auch für semitransparente Module ergeben sich hierbei ein verringerter Einfluss von Serienwiderständen und ein vergrößerter Einfluss von inaktiver Fläche auf die Aufskalierungsverluste, wobei dies für Tandem-Solarmodule insbesondere durch die stärkere Änderung der Spannung V_{MPP} noch deutlicher ausfällt. Die angenommenen Eingangsparameter von Tandem-Solarzellen für das Modell sind in **Tabelle 5.3** dargestellt.

Die theoretischen relativen Aufskalierungsverluste sind in **Abbildung 5.14** dargestellt. Die Eingangsparameter reduzieren dabei insbesondere die relativen Schichtwiderstandsverluste (siehe **Abbildung 5.14a**) im gesamten dargestellten Parameterraum (Zellstreifenbreite über Verschaltungsbreite) auf unter 5% im Vergleich zu 12% für opake 1-Übergangssolarmodule. Während die relativen Verluste aufgrund inaktiver Fläche in **Abbildung 5.14b** unverändert bleiben, sind ebenfalls die relativen Verschaltungswiderstandsverluste (siehe **Abbildung 5.14c**) bei angenommenem gleichbleibenden Kontaktwiderstand der P2 verringert.

Tabelle 5.3. Angenommene Eingangsparameter für 2-Terminal-Perowskit-Perowskit-Tandemmodule zur parameterbasierten Optimierung der Modul- und Verschaltungsgeometrie basierend auf dem mathematischen Modell zur Berechnung der Aufskalierungsverluste aus Kapitel 2.1.5.

J_{MPP} [mA cm ⁻²]	V_{MPP} [V]	R_{FE}^{\square} [Ω □ ⁻¹]	R_{RE}^{\square} [Ω □ ⁻¹]	ρ_c [Ωcm]	w_a [cm]	w_i [μm]	w_{P2} [μm]	L_T [μm]
14,0	1,7	15,0	0,0	0,67	0,1 ≤ w_a ≤ 1,0	120 ≤ w_i ≤ 700	$w_i - 100$	160

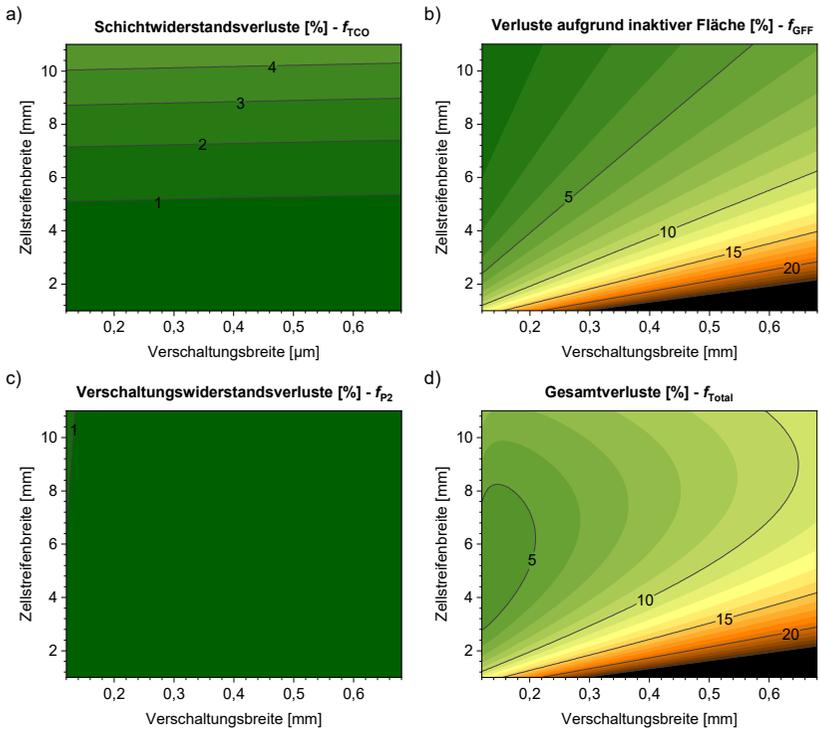


Abbildung 5.14. Relative Reduzierung des Wirkungsgrads der 2-Terminal-Perowskit-Perowskit-Tandem-PV für die Aufskalierung von Solarzellen zu -modulen als Funktion der Verschaltungsbreite und Zellstreifenbreite. (a) Verluste aufgrund der Serienwiderstände der Front- und Rückkontaktschichten. (b) Verluste aufgrund notwendiger Verschaltungslinien und entsprechender Reduzierung aktiver Fläche. (c) Verluste aufgrund des Kontaktwiderstands zwischen Front- und Rückkontakt in der Verschaltungslinie P2. (d) Resultierende Gesamtverluste der Aufskalierung.

Die relativen Gesamtverluste fallen entsprechend geringer aus und zeigen aufgrund des größeren Einflusses der Verluste inaktiver Fläche einen deutlichen Trend zu größerer Zellstreifenbreiten, wie in **Abbildung 5.14d** ersichtlich wird. Bei Verwendung der Modul- und Verschaltungsgeometrie für opake 1-Übergangssolarmodule (4 mm Zellstreifenbreite, 160 μm Verschaltungsbreite) verringern sich die Gesamtverluste von 6,0% auf 4,8%. Den größten Teil dieser Verbesserung ist dabei auf die kleineren relativen Schichtwiderstandsverluste von 1,5% auf 0,6% zurückzuführen. Das theoretische Minimum liegt dagegen bei einer Zellstreifenbreite von 5,0 mm, einer Verschaltungsbreite von 128 μm und 4,1%

relativem Gesamtverlust der Aufskalierung. Für angenommene größere Fertigungstoleranzen der Verschaltungsbreite bis $\leq 200 \mu\text{m}$ erreicht der relative Gesamtverlust lediglich die 5% Schwelle. Da eine hierfür ideale Zellstreifenbreite von 6,0 mm lediglich eine Verbesserung von 0,1% bewirkt und 5 mm Zellstreifenbreite ideal mit den bisher verwendeten Substratgrößen harmoniert, wird im weiteren Verlauf die Zellstreifenbreite von 5 mm für die Modulgeometrien der Tandem-Solarmodule genutzt.

5.3.3 Homogene, defektfreie Herstellung der funktionalen Materialschichten und Verschaltungen

Nachdem optimierte laserstrukturierte P1, P2 und P3 Linien als monolithische Verschaltung in dem verwendeten 2-T-Perowskit-Perowskit-Tandem-Schichtstapel demonstriert und die Modul- und Verschaltungsgeometrie für minimale Aufskalierungsverluste festgelegt wurde, soll nun die gleichbleibend hohe Qualität des Schichtstapels sowie mehrerer Verschaltungen für die Aufskalierung zu größeren Substrat- und Tandem-Solarmodulflächen validiert werden. Da sowohl lösungsprozessierte als auch gedampfte Beschichtungsverfahren stark von den Eigenschaften der zu beschichtenden Oberflächen (Rauigkeit, Oberflächenenergie, Defekte) beeinflusst werden, sind insbesondere die homogene Beschichtung des später prozessierten NBG Perowskits sowie den dazugehörigen Ladungsträgertransportschichten zu charakterisieren. Des Weiteren führt der komplexere Schichtstapel zu mehr möglichen Degradationsreaktionen, sodass Schädigungen des Schichtstapels durch die Laserstrukturierung und insbesondere der damit verbundenen thermischen Belastung ausgeschlossen werden sollen. Für die gesamtheitliche Beurteilung der Qualität des Schichtstapels sowie der Verschaltungen werden wie zuvor in Kapitel 4.4 örtlich aufgelöste LBIC-Messungen durchgeführt.

Zunächst wird der LBIC-Aufbau mit der 532 nm Laserquelle noch um eine zweite Laserquelle mit 855 nm ergänzt. Das Laserlicht mit 532 nm wird dabei vollständig im WBG Perowskit absorbiert, während das Laserlicht mit 855 nm unterhalb der Bandlücke des WBG Perowskiten ($\approx 700 \text{ nm}$) liegt und somit erst im darunterliegenden NBG Perowskit absorbiert wird. Dies erlaubt die individuelle Beurteilung der Qualität der beiden Absorber einschließlich der jeweiligen Ladungsträgertransportschichten.

Die Herstellung eines funktionalen Tandem-Solarmoduls durch Aufskalierung der Aperturfläche sowie der Integration mehrerer laserstrukturierter Verschaltungen wird als erstes mittels Tandem-Solarmodul mit $2,56 \text{ cm}^2$ Aperturfläche und 4 verschalteten Zellstreifen mit noch herkömmlicher Zellbreite von 4 mm ($4 \text{ mm} \times 16 \text{ mm}$) demonstriert. Die Herstellung der lösungsprozessierten Schichten

wurde hierfür noch mit dem eingeschränkt skalierbaren Rotationsbeschichtungsverfahren durchgeführt. Die örtlich aufgelöste LBIC Messung mittels 532 nm Laserquelle und Fokus auf der Top-Zelle mit dem WBG Perowskit in **Abbildung 5.15a** und die mittels 855 nm Laserquelle und Fokus auf der Bottom-Zelle mit dem NBG Perowskit in **Abbildung 5.15b** demonstrieren beide deutlich die funktionale Verschaltung der 4 Tandem-Solarzellstreifen zu einem Tandem-Solarmodul. Dabei zeigt insbesondere die 532 nm LBIC Messung sowohl innerhalb einzelner Zellstreifen als auch von Zellstreifen zu Zellstreifen eine sehr gleichmäßige Signalamplitude. Ersteres deutet auf sehr homogene WBG Perowskit- und Ladungsträgertransportschichten mit gleichbleibender Schichtdicke hin,¹⁷⁸ während letzteres die gleichmäßige Herstellung der Verschaltungslinien und deren Serien- und Parallelwiderstände bestätigt.¹²⁹ Für die 855 nm LBIC Messung ist grundsätzlich ebenfalls eine gute Homogenität ersichtlich, wobei die Reduktion der Signalamplitude in den äußeren Bereichen auf geringe Unterschiede in den NBG Perowskit- und Ladungsträgertransportschichten hindeutet. Ursache hierfür können Benetzungsprobleme und entstehende Schichtdickengradienten des Rotationsbeschichtungsverfahrens sein.¹⁸⁰⁻¹⁸² Es sind sehr wenige Defekte ersichtlich, welche zum Teil lediglich eine Perowskitschicht beeinträchtigen und auf Partikel oder Anwenderfehler (Kratzer) zurückzuführen sind. Die detaillierte Analyse der Bereiche der Verschaltungslinien bestätigt zudem die geringe Verschaltungsbreite von ca. 150 μm , welche mit 96% GFF der definierten Zielgröße entspricht und zugleich relevante laserinduzierte Degradationen im Bereich der Verschaltungen widerlegt.

Die weitere Aufskalierung der Aperturfläche und der Verschaltungslinienlänge um den Faktor 5 wird durch ein Tandem-Solarmodul mit 12,25 cm^2 Aperturfläche und 7 verschalteten Zellstreifen mit 5 mm Zellbreite (5 mm \times 35 mm) demonstriert. Während durch den vorgenommenen Austausch der Rotationsbeschichtungsschritte für lösungsprozessierte Schichten durch das Klingenbeschichtungsverfahren die Herstellung des Tandem-Solarmoduls erstmals vollständig skalierbar ist, wird eine Beurteilung der Homogenität der Materialschichten und der Verschaltungen essenziell für zukünftige Optimierungen. Die resultierenden LBIC-Aufnahmen des Tandem-Solarmoduls mit 532 nm und 855 nm Laseranregung sind in **Abbildung 5.15c** und **d** dargestellt. Dabei sind für die Bottom-Zelle (532 nm LBIC) geringe Signalamplitudenunterschiede ersichtlich. Da die Inhomogenitäten innerhalb einzelner Zellstreifen variieren und zudem in allen Zellstreifen unterschiedlich auftreten, ist davon auszugehen, dass die Unterschiede in der Ladungsträgererzeugung und/oder -extraktion auf inhomogene Beschichtung und Trocknung zurückzuführen sind. Weiter kann angenommen werden, dass der Optimierungsbedarf die lösungsprozessierten, nun skalierbar hergestellten WBG Perowskit- Halbleiterschicht sowie Ladungsträgertransportschicht 2PACz betrifft.

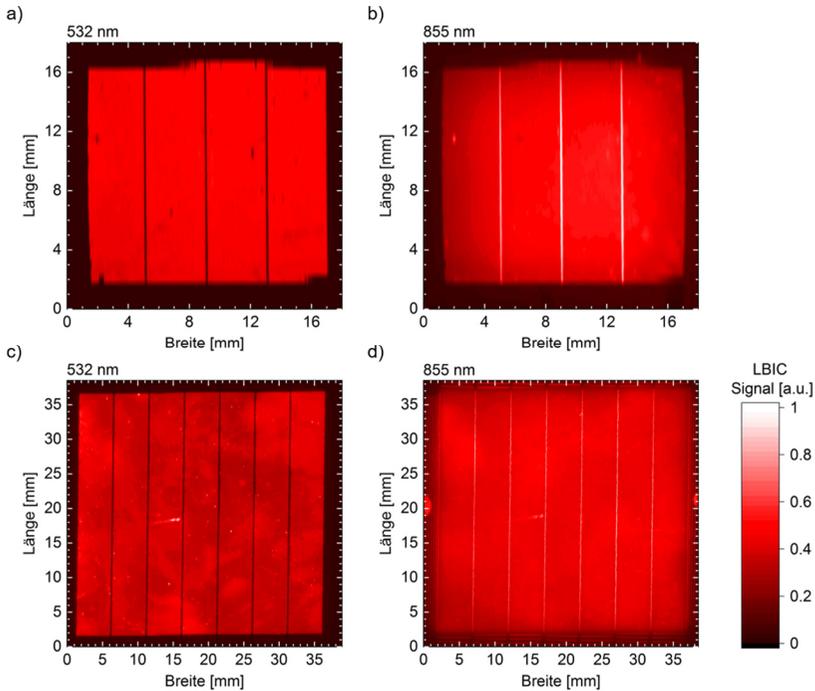


Abbildung 5.15. Evaluation der Schichthomogenität und Verschaltungsfunktionalität für laserstrukturierte 2-Terminal-Perowskit-Perowskit-Tandem-Solarmodule. Zur getrennten Betrachtung der beiden Perowskitabsorber unterschiedlicher Bandlücke sowie der jeweiligen Ladungsträgertransportschichten werden zwei Laserquellen unterschiedlicher Wellenlänge genutzt. Laserstrahlinduzierte Strommessung (LBIC) eines Tandem-Solarmoduls mit 2,6 cm² Aperturfläche und 4 monolithisch verschalteten Zellstreifen bei Anregung mittels eines (a) 532 nm Lasers und eines (b) 855 nm Lasers. LBIC Messung eines Tandem-Solarmoduls mit 12,3 cm² Aperturfläche und 7 monolithisch verschalteten Zellstreifen bei Anregung mittels eines (c) 532 nm Lasers und eines (d) 855 nm Lasers. Angepasste und übersetzte Darstellung aus Abdollahi Nejand & Ritzer *et al.*¹⁸⁹

Die Inhomogenitäten haben dagegen keinen Einfluss auf die Top-Zelle, welche sehr gleichmäßige LBIC-Signalamplituden innerhalb einzelner Zellstreifen zeigt. Ein Defekt, welcher in den LBIC-Aufnahmen von Top- und Bottom-Zelle gleichermaßen zu sehen ist, lässt auf einen Anwenderfehler (Kratzer) schließen. Ebenso demonstriert die gleichbleibende Signalstärke der Zellstreifen untereinander sowohl für die Bottom- als auch für die Top-Zelle eine hohe Qualität der Verschaltungslinien und deren Serien- und Parallelwiderstände. Die Detailbetrachtung der Verschaltungslinien zeigt eine Verschaltungsbreite von 200 μm . Somit wird noch

einmal das Ausbleiben laserinduzierter Degradation in lateraler Umgebung zu Verschaltungslinien bestätigt und das gesteckte Ziel von 96% GFF auch für größere Tandem-Solarmodule erfüllt.

5.3.4 Charakterisierung von 2-Terminal-Perowskit-Perowskit-Tandem-Solarmodulen

Nachdem im vorherigen Kapitel die Skalierbarkeit der Schichtherstellung des 2-Terminal-Perowskit-Perowskit-Tandem-Solarmoduls sowie der Integration funktionaler laserstrukturierter Verschaltungen bei gleichbleibender Qualität sichergestellt wurden, ist für eine detaillierte Beurteilung der Aufskalierungseigenschaften die elektrische Charakterisierung der Tandem-Solarmodule mittels Stromdichte-Spannungskennlinie notwendig. Dabei sollen zunächst Tandemmodule mit $2,56 \text{ cm}^2$ und anschließend Tandem-Solarmodule mit $12,25 \text{ cm}^2$ Aperturfläche analysiert und mit Referenz-Tandemzellen ($0,105 \text{ cm}^2$) verglichen werden.

In **Abbildung 5.16a** ist die Bildaufnahme eines Tandem-Solarmoduls mit $2,56 \text{ cm}^2$ Aperturfläche und 4 verschalteten Zellstreifen ($4 \text{ mm} \times 16 \text{ mm}$) dargestellt, wobei die Oberfläche als auch Verschaltungslinien sehr homogen und frei von Defekten sind. Die Stromdichte-Spannungskennlinie des leistungsstärksten Tandem-Solarmoduls demonstriert einen beeindruckenden Wirkungsgrad von 22,5%, bei einem Füllfaktor von 77%, einer Leerlaufspannung von 7,9 V und einer Kurzschlussstromdichte von $14,9 \text{ mA cm}^{-2}$ in Rückwärtsmessrichtung. Die gute Qualität der Schichten sowie der Verschaltungslinien wird dabei durch den exzellenten Füllfaktor, niedrigen Serien- sowie hohen Parallelwiderstand unterstrichen. Die Betrachtung der Kennwerte der Vorwärtsmessrichtung von 19,9% PCE, 69% FF, 7,8 V V_{OC} und $14,9 \text{ mA cm}^{-2} J_{SC}$ zeigt eine geringe Hysterese auf. Da diese auch bei Referenz-Tandem-Solarzellen auftritt, ist davon auszugehen, dass die Ursache hierfür bei funktionalen Schichten oder Passivierungen liegt und somit weitere Optimierungen des grundlegenden Schichtstapels erstrebenswert sind. Der Vergleich des Tandemmoduls mit der leistungsstärksten Referenz-Tandem-Solarzelle (siehe **Tabelle 8.9**), welche 24,9% (22,1%) PCE in Vorwärtsmessrichtung (Rückwärts-) aufweist, ergibt einen Aufskalierungsverlust von $9,8\%_{\text{rel}}$ gegenüber der theoretischen Verluste von $5,0\%_{\text{rel}}$. Nach Berücksichtigung des geringeren GFF von 94% des Tandem-Solarmoduls entspricht der Wirkungsgradverlust der aktiven Fläche lediglich $4\%_{\text{rel}}$ bei einer Aufskalierung um den Faktor ≈ 25 .

Die verwendete Modulgeometrie einschließlich der Verschaltungslinien ermöglicht die individuelle elektrische Charakterisierung einzelner Zellstreifen, um Aussagen über die Homogenität der Tandem-Solarmodule treffen zu können. Die in

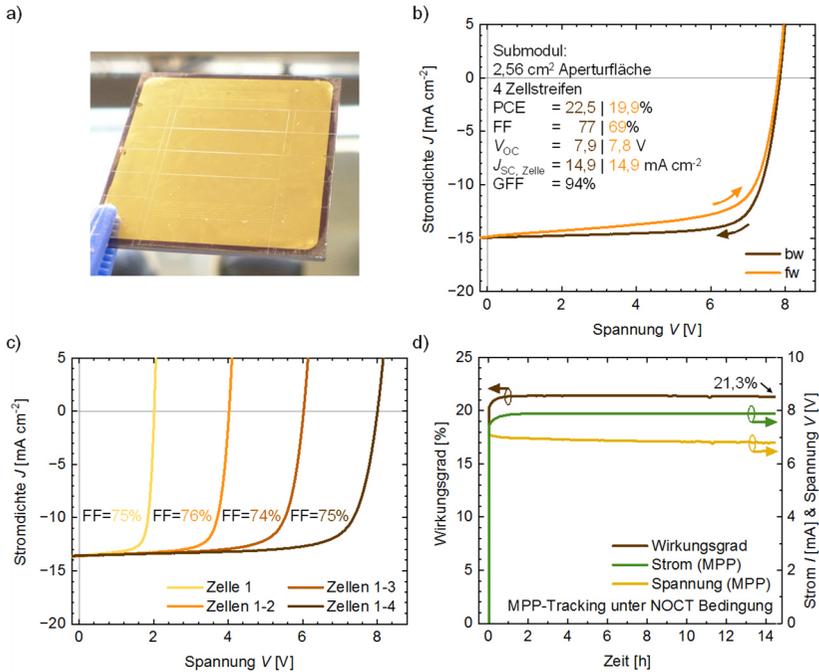


Abbildung 5.16. Elektrische Charakterisierung von monolithischen 2-Terminal-Perowskit-Perowskit-Tandem-Solarmodulen mit 2,6 cm² Aperturfläche und 4 monolithisch verschalteten Zellstreifen. (a) Fotografie der Rückseite eines Tandem-Solarmoduls. (b) Stromdichte-Spannungskennlinie des leistungsstärksten Tandemmoduls und Übersicht der Kennwerte. (c) Stromdichte-Spannungskennlinien bei kumulierender Messung monolithisch verschalteter Zellstreifen eines Tandem-Solarmoduls durch individuelle Kontaktierungen. (d) Kurzzeitstabilität des Wirkungsgrads des leistungsstärksten Tandem-Solarmoduls unter kontinuierlicher Beleuchtung während des MPP-Trackings bei nominalen Betriebstemperaturen der Zelle (NOCT) ohne aktive Kühlung. Angepasste und übersetzte Darstellung aus Abdollahi Nejangd & Ritzer *et al.*¹⁸⁹

Abbildung 5.16b dargestellten Stromdichte-Spannungskennlinien bei kumulierender Messung der vier Zellstreifen eines Tandem-Solarmoduls zeigen dabei eine sehr gleichmäßige Qualität mit einem FF von 75±1%, einer konstanten Kurzschlussstromdichte (bezogen auf die Zellstreifenfläche) sowie idealer Aufsummierung der offenen Klemmspannungen. Die geringe Diskrepanz zwischen der offenen Klemmspannung der Referenz-Tandem-Solarzelle mit 2,01 V V_{OC} und der einzelner Zellstreifen mit 2,00 V V_{OC} (8,01 V V_{OC} für alle vier Zellstreifen) zeigt ebenfalls die gute Qualität des Aufskalierungsprozesses. eiterhin zeigt die

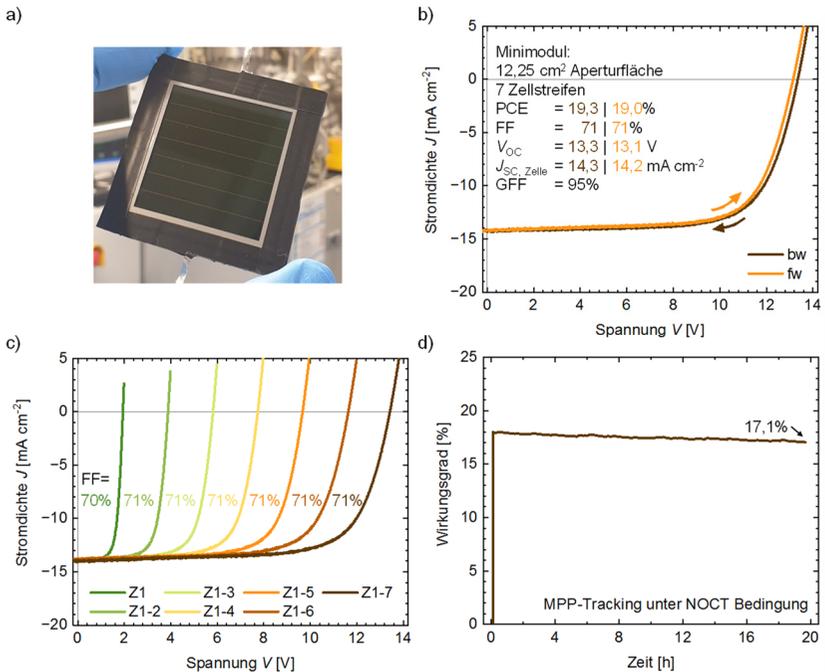


Abbildung 5.17. Elektrische Charakterisierung von monolithischen 2-Terminal-Perowskit-Perowskit-Tandem-Solarmodulen mit $12,3 \text{ cm}^2$ Aperturfläche und 7 monolithisch verschalteten Zellstreifen. (a) Fotografie der Rückseite eines Tandem-Solarmoduls. (b) Stromdichte-Spannungskennlinie des leistungsstärksten Tandem-Solarmoduls und Übersicht der Kennwerte. (c) Stromdichte-Spannungskennlinien bei kumulierender Messung monolithisch verschalteter Zellstreifen eines Tandem-Solarmoduls durch individuelle Kontaktierungen. (d) Kurzzeitstabilität des Wirkungsgrads eines Tandem-Solarmoduls unter kontinuierlicher Beleuchtung während des MPP-Trackings bei nominalen Betriebstemperaturen der Zelle (NOCT) ohne aktive Kühlung. Angepasste und übersetzte Darstellung aus Abdollahi Nejang & Ritzer *et al.*¹⁸⁹

kontinuierliche Messung des Wirkungsgrads für über 14 h in **Abbildung 5.16d** eine sehr gute Kurzzeitstabilität des Tandem-Solarmoduls. Während der Wirkungsgrad sich zunächst auf bis zu 21,5% stabilisiert, fällt er innerhalb von 14 h lediglich um 0,2% auf 21,3% und zeigt somit keine signifikanten Anzeichen einer Degradation.

Die Bildaufnahme der Frontseite eines vollständig skalierbaren Tandem-Solarmoduls mit $12,25 \text{ cm}^2$ Aperturfläche und sieben verschalteten Zellstreifen ($5 \text{ mm} \times 35 \text{ mm}$) ist in **Abbildung 5.17a** dargestellt und zeigt wie zuvor homogene und defektfreie Flächen und Verschaltungslinien. Die Charakterisierung mittels

Stromdichte-Spannungskennlinie (**Abbildung 5.17b**) ergibt für das leistungsstärkste Tandem-Solarmodul einen Wirkungsgrad von 19,3% (19,0%) bei 71% (71%) FF, 13,3 (13,1) V V_{OC} und 14,3 (14,2) mA cm⁻² J_{SC} in Rückwärtsmessrichtung (Vorwärtsmessrichtung) mit vernachlässigbarer Hysterese. Dabei ist ein größerer Serienwiderstand evident, welcher sich in einem geringeren Füllfaktor widerspiegelt. Es ist anzunehmen, dass ein wesentlicher Teil des höheren Serienwiderstands durch die fehlende Aufskalierung der Kontaktflächen auftritt. Während ein direkter Vergleich mit Referenz-Tandem-Solarzellen aufgrund der unterschiedlichen Herstellungsmethoden lösungsprozessierter Schichten nicht möglich ist, ergibt der Vergleich mit der vorhergehenden leistungsstärksten Referenz-Tandem-Solarzelle einen Aufskalierungsverlust von 18,3%_{rel.} Der Wirkungsgradverlust der aktiven Fläche ergibt sich mit dem erreichten GFF von 95% zu lediglich 7,4%_{rel.} bei einem Aufskalierungsfaktor von ≈ 120 . Das vorgestellte Tandem-Solarmodul stellt somit das erste erfolgreiche vollständig skalierbare 2-Terminal-Perowskit-Perowskit-Tandem-Solarmodul mit bereits sehr beeindruckendem Wirkungsgrad dar.

Die Betrachtung der kumulierenden Messungen der Stromdichte-Spannungskennlinien des Tandem-Solarmoduls in **Abbildung 5.17c** demonstriert die sehr gute Homogenität über alle sieben Zellstreifen mit gleichbleibendem Füllfaktor von $71 \pm 1\%$, konstanter Stromdichte und Addition der Klemmspannungen. Die funktionalen Schichten und Verschaltungen sind entsprechend frei von lokalen und größeren Defekten. Die kontinuierliche Messung des Wirkungsgrads des Tandem-Solarmoduls für über 19 h in **Abbildung 5.17d** zeigt im Unterschied zum vorherigen Tandem-Solarmodul eine Abnahme des stabilisierten Wirkungsgrads von 18,0% auf 17,1%. Aufgrund des Umfangs der vorliegenden Arbeit wird auf eine weitere Untersuchung, um festzustellen, ob diese Abnahme auf reversiblen oder irreversiblen Degradationsmechanismen beruht,²⁰⁷ verzichtet.

5.4 Zusammenfassung und Diskussion

In diesem Kapitel wurde der zuvor entwickelte Aufskalierungsprozess für opake Perowskit-Photovoltaik erfolgreich auf semitransparente Perowskit-Photovoltaik für 4-Terminal-Tandem-Photovoltaik, sowie auf 2-Terminal-Perowskit-Perowskit-Tandem-Photovoltaik übertragen und durch Anpassung und Optimierung Module mit Rekordwirkungsgraden demonstriert.

Für die Aufskalierung der semitransparenten Perowskit-Photovoltaik wurde zunächst die Optimierung der P1, P2 und P3 Strukturierungslinien einer monolithischen Verschaltung für den semitransparenten Solarzellenstapel durchgeführt. Dabei konnte sowohl die elektrische Isolierung von Frontkontaktstreifen (P1) in der NIR-transparenteren IO:H Frontkontaktschicht sowie von Rückkontaktstreifen (P3) in der nun transparenten Rückkontaktschicht IZO unter geringfügiger Anpassung der Laserparameter hergestellt werden. Durch die Optimierung der P2 Strukturierungslinie mittels Variation von Pulsspitzenfluenz, Strukturierungslinienbreite und -anzahl konnte zudem der spezifische Kontaktwiderstand des TCO-TCO-Übergangs auf nur $\rho_C \approx 2 \Omega\text{cm}$ minimiert werden. Darauf aufbauend wurde die Modulgeometrie für semitransparente Perowskit-Photovoltaik theoretisch optimiert, sodass eine Zellbreite von 3 mm bei einer Verschaltungsbreite von 160 μm minimale theoretische Aufskalierungsverluste von 8,3%_{rel} ergaben, wobei die Verluste aufgrund inaktiver Fläche von 5,3%_{rel} sowie die Schichtwiderstandsverluste von 2,6%_{rel} die Verschaltungsverluste von 0,4%_{rel} deutlich überwogen. Auf Basis der optimierten Prozessparameter und Modulgeometrie wurde anschließend die Aperturfläche um einen Faktor von bis zu ≈ 110 aufskaliert und semitransparente Perowskit-Solarmodule und Solarmodule mit 4,2 cm^2 und 11,2 cm^2 Aperturfläche hergestellt. Die Module erzielten dabei Wirkungsgrade von bis zu 15,3% und 14,5% sowie gute Kurzzeitstabilität bei kontinuierlicher Illumination. Zudem zeigte die Verkapselung der semitransparenten Solarmodule eine hohe Stabilität der Kenngrößen einschließlich des Wirkungsgrads bei 6-monatiger Lagerung in Umgebungsluft (dunkel), welche ebenfalls die Kurzzeitstabilität bei kontinuierlicher Beleuchtung verbesserte. Die erzielten Aufskalierungsverluste von 12,5%_{rel} und 14,3%_{rel} beweisen beim Vergleich mit den theoretischen Aufskalierungsverlusten eine bereits hohe Qualität des entwickelten Aufskalierungsprozesses, zeigen aber zugleich weiteren Verbesserungsbedarf auf. Die zuletzt durchgeführte Wirkungsgradabschätzung eines 4-Terminal-Perowskit-CIGS-Tandem-Solarmoduls mittels optischer Charakterisierung eines semitransparenten Perowskit-Solarmoduls und den elektrischen Kenngrößen einer CIGS-Bottomzelle ergab einen vielversprechenden Wirkungsgrad von 23,1%.

Bei Betrachtung des Kennwertes der Aufskalierungsverluste pro Größenordnung aufskalierter Fläche ergibt sich für das semitransparente Solarmodul ein

Aufskalierungsverlust von $7,8 \%_{\text{rel}} \text{dec}^{-1}$ und für das Solarmodul von $7,1 \%_{\text{rel}} \text{dec}^{-1}$. Damit erreicht dieser Herstellungsprozess zwar noch nicht die absoluten Wirkungsgrade und relativen Aufskalierungseffizienzen der zuvor demonstrierten opaken Perowskit-Solarmodule oder die kommerzieller Photovoltaiktechnologien, übertrifft aber bisherige Ergebnisse hinsichtlich Wirkungsgraden von 12,8% und 9,5% sowie Aufskalierungseffizienzen von $11,4 \%_{\text{rel}} \text{dec}^{-1}$ und $11,6 \%_{\text{rel}} \text{dec}^{-1}$ deutlich (siehe **Abbildung 5.18**).^{204–206} Die Zielsetzung 5-I, die die Entwicklung und Optimierung eines Prozesses zur effizienten Aufskalierung der semitransparenten Perowskit-Photovoltaik für die Verwendung in Perowskit-basierter 4-Terminal-Tandem-Photovoltaik umfasste, ist somit erfüllt. Dennoch sind weitere Optimierungen hinsichtlich höherer Wirkungsgrade und geringerer Aufskalierungsverluste denkbar. Aufgrund des hohen Anteils an Aufskalierungsverlusten inaktiver Fläche sowie von Schichtwiderständen ist hierbei insbesondere eine Verbesserung der Leitfähigkeit der transparenten Elektroden und erneute Optimierung der Modulgeometrie sinnvoll. Ein vielversprechender Ansatz ist hierbei die Integration eines leitfähigen Metallgitters mit geringem Flächenanteil zur Erhöhung der Leitfähigkeit der TCOs. Weiterhin kann der Wechsel auf vollständig gedampfte Schichtstapel die Verluste aufgrund inhomogener Schichten und Defekte verringern, wie es in Kapitel 4 demonstriert werden konnte.

Für die Aufskalierung der 2-Terminal-Perowskit-Perowskit-Tandem-Photovoltaik ermöglichte der Austausch der ITO-Rekombinationsschicht des Referenzschichtstapels mit der lateral-hochohmigen Goldrekombinationsschicht die simple Integration des bisherigen P1-P2-P3-Verschaltungskonzepts ohne Kurzschlussdefekte. Hinsichtlich der P1 und P2 Strukturierungslinien konnte auf vorherige Erkenntnisse aus Kapitel 5.2.1 und 4.2.2 zurückgegriffen werden. Die P3 Strukturierungslinie wurde dagegen durch Anpassung der Laserparameter erneut optimiert und neben Gold- auch für günstigere und industriell relevantere Kupfer- und Silberrückkontaktschichten demonstriert. Aufbauend auf den Verschaltungseigenschaften sowie den zu erwartenden elektrischen Kennwerten einer Perowskit-Tandem-Solarzelle wurde die Modulgeometrie theoretisch optimiert, sodass eine Zellbreite von 5 mm bei 200 μm Verschaltungsbreite minimale theoretische Aufskalierungsverluste von $5,0 \%_{\text{rel}}$ ergeben. Den größten Anteil stellt hierbei der Aufskalierungsverlust aufgrund inaktiver Fläche mit $4 \%_{\text{rel}}$ gegenüber den Schichtwiderstandsverlusten von $0,9 \%_{\text{rel}}$ und Verschaltungswiderstandsverlusten von $0,2 \%_{\text{rel}}$ dar. Die anschließende Aufskalierung der Aperturfläche um einen Faktor von bis zu ≈ 120 auf $2,56 \text{ cm}^2$ und $12,25 \text{ cm}^2$ und Analyse mittels 2-Laser-LBIC-Messverfahren demonstrierte die hohe Qualität der integrierten Verschaltungslinien sowie gute Homogenität der hergestellten Schichten mit nur geringen Signalstärkevariationen in der Top-Zelle für die Nutzung vollständig skalierbarer lösungsprozessierter

Herstellungsmethoden. Die 2-Terminal-Perowskit-Perowskit-Tandem-Solarmodule und -Tandem-Solarmodule erzielten Wirkungsgrade von bis zu 22,5% und 19,3%, wobei durch kumulierende Messungen der Stromdichte-Spannungskennlinien die Homogenität der Zellen zusätzlich bestätigt wurde. Zudem ergaben Leistungsmessungen von bis zu 19 h Dauer bei kontinuierlicher Illumination gute Kurzzeitstabilitäten, wobei das Tandem-Solarmodul keinen relevanten Wirkungsgradverlust zeigte. Die erzielten Aufskalierungsverluste von 9,8%_{rel} für das Tandem-Solarmodul und 18,2%_{rel} für das vollständig skalierbar hergestellte Tandem-Solarmodul zeigen dagegen eine deutliche Diskrepanz zum theoretischen Minimum auf.

Die Betrachtung der Aufskalierungsverluste pro Größenordnung aufskalierter Fläche ergibt für das Tandem-Solarmodul Aufskalierungsverluste von 7,0 %_{rel} dec⁻¹, sodass die grundlegende Aufskalierung von 2-Terminal-Perowskit-Perowskit-Tandem-Photovoltaik trotz des deutlich komplexeren Schichtstapels sehr vergleichbar mit der semitransparenter Perowskit-Photovoltaik ist (siehe **Abbildung 5.18**). Die Steigerung der Aufskalierungsverluste auf 8,9 %_{rel} dec⁻¹ durch den Wechsel auf vollständig skalierbare lösungsprozessierte Herstellungsmethoden zeugt dagegen von der noch geringeren technologischen Reife und den zusätzlichen Herausforderungen lösungsprozessierter gegenüber gedampfter Schichtherstellung. Da dies die ersten Ergebnisse für 2-Terminal-Perowskit-Perowskit-Tandem-Solarmodule darstellten, entfällt der Vergleich mit zum Start der eigenen Arbeit vorliegenden Literaturergebnissen. Basierend auf den erfolgreich demonstrierten Tandem-Solarmodulen, den erzielten hohen Wirkungsgraden und den unter Berücksichtigung der Komplexität der skalierbaren Schichtherstellung guten Aufskalierungseffizienzen kann auch Zielsetzung 5-II., die Entwicklung und Optimierung eines Prozesses zur effizienten Aufskalierung der 2-Terminal-Perowskit-Perowskit-Tandem-Photovoltaik unter ausschließlicher Verwendung industriell relevanter, skalierbarer Herstellungsmethoden, als erfüllt bewertet werden. Weiteres Verbesserungspotential bietet dabei die Reduzierung inaktiver Fläche durch größere Zellbreiten und geringere Verschaltungsbreiten, sowie die Optimierung der Kontaktierung für geringere ohmsche Widerstände. Ebenfalls ist eine weitere Optimierung der Schichtherstellung zur Steigerung der Homogenität insbesondere der Top-Zelle in Erwägung zu ziehen.

Die Erhöhung der Aufskalierungseffizienz semitransparenter Perowskit-Module für 4-Terminal-Tandem-Photovoltaik sowie die erfolgreiche Demonstration von 2-Terminal-Perowskit-Perowskit-Tandem-Solarmodulen zeigt das große Potential für hocheffiziente Perowskit-basierte Photovoltaik auf und stellt so, nach eigenem Ermessen, einen wichtigen Beitrag für Forschung und Industrie dar. Die gezeigte vollständig skalierbare Herstellung der Module, einschließlich funktionaler Schichten und Verschaltungslinien, ist ein wesentlicher Fortschritt in Richtung

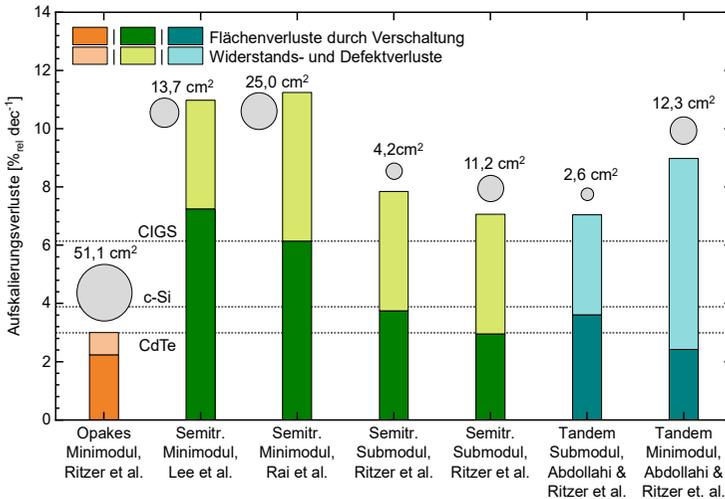


Abbildung 5.18. Vergleich der relativen Aufskalierungsverluste pro Größenordnung der skalierten Fläche (dec) für Perowskit-basierte Photovoltaikmodule opake (orange), semitransparenter (grün) und Tandem-Bauweise (blau). Die grauen Kreise veranschaulichen die Aperturflächen der jeweiligen Solarmodule. Die gestrichelten Referenzlinien stellen die Aufskalierungsverluste von etablierten Photovoltaiktechnologien wie monokristallinem Silizium, CdTe und CIGS dar.

industrieller Fertigung. Ebenso konnten beide Modultypen wie zuvor ausschließlich mittels kostengünstiger Nanosekundenlaserquelle hergestellt sowie die Verwendung preiswerterer metallischer Rückkontaktschichten demonstriert werden. Die optimierten Laserparameter für Verschaltungslinien und die gewonnenen Erkenntnisse zur Schichtherstellung stellen somit eine wichtige Grundlage für weitere Experimente in anderen Forschungseinrichtungen sowie für zukünftige Herstellungsprozesse in kommerziellen Fertigungslinien dar.

Bei Betrachtung aktueller Forschungsergebnisse werden Ähnlichkeiten zum eigenen Ansatz, gewählten funktionalen Schichten, Prozessparametern oder vorgeschlagenen Strategien zur weiteren Optimierung deutlich, welche zum Teil zu wesentlichen Steigerungen der Wirkungsgrade oder Aufskalierungseffizienzen führen. Lin *et al.* (2022) demonstrieren dabei semitransparente Perowskit-Solarmodule mit < 2 cm² Aperturfläche, 11,8% PCE, 94% GFF und einer Verschaltungsbreite von 300 μm durch Laserstrukturierung mittels 532 nm Laserquelle noch längerer Pulslänge (7 ns).²⁰⁸ Die Autoren betonen dabei die industrielle Relevanz der Nutzung eines Lasers mit Pulsen im Nanosekundenbereich. Durch die Integration eines Metallgitters (Ag) auf der

Rückkontaktschicht erzielen Gu *et al.* (2023) dagegen 20,2% PCE für ein semitransparentes Perowskit-Solarmodul mit 21,5 cm² Aperturfläche, 97% GFF und können so die Aufskalierungsverluste auf 5,3 %_{rel} dec⁻¹ reduzieren.²⁰⁹ Eine Verwendung des Moduls in einem 4-Terminal-Tandem-Stapel hätte allerdings aufgrund der Nutzung des Metallgitters sowie der kleinen Bandlücke des Perowskit-Absorbers ($\approx 1,57$ eV) eine größere Verringerung des Wirkungsgrads der Bottom-Zelle als bei der Abschätzung in der eigenen Arbeit in Kapitel 5.2.4 zur Folge. Dai *et al.* demonstrieren dagegen die erfolgreiche Herstellung eines 2-Terminal-Perowskit-Perowskit-Tandem-Solarmoduls mit 21,6% PCE und 14,3 cm².²¹⁰ Während die Verschaltungsbreite mit ≈ 400 μm etwa dem doppelten der Verschaltungsbreiten der eigenen Arbeit entspricht, können die Autoren durch größere Zellbreiten, eine deutlich dickere Rückkontaktschicht (200 nm Cu) und homogenere funktionale Schichten die Aufskalierungsverluste auf nur 2,9 %_{rel} dec⁻¹ senken. Dabei wird wie in der eigenen Arbeit eine perkolierte Goldschicht als Rekombinationsschicht sowie das Klingenbeschichtungsverfahren zur Herstellung der Perowskit-Absorberschichten genutzt. Dennoch werden einzelne Schichten mittels Rotationsbeschichtungsverfahren hergestellt, sodass eine vollständige Skalierbarkeit nicht gegeben ist. Demnach stellt das zuvor präsentierte weltweit erste 2-Terminal-Perowskit-Perowskit-Tandem-Solarmodul zugleich weiterhin das einzige vollständig skalierbar hergestellte Solarmodul dieses Halbleitertyps und dieser Bauweise dar.

6 Herstellung transluzenter Perowskit-Photovoltaik

Im folgenden Kapitel wird die Herstellung transluzenter Perowskit-Photovoltaik demonstriert, welche beispielsweise für die Integration in Glasfassaden von Wohn- oder Bürogebäuden genutzt werden kann.

In einem ersten Schritt wird der Nutzen sowie die technologischen Prinzipien von (semi-) transparenter Photovoltaik vorgestellt. Daraufhin wird sowohl der kommerzielle als auch der forschungsseitige Stand der Technik aufgezeigt und die Notwendigkeit der Weiterentwicklung transluzenter Photovoltaik begründet. Im Anschluss wird die Optimierung des Laserstrukturierungsprozesses zur Herstellung mikroskopischer transparenter Flächen in Perowskit-Solarzellen durchgeführt, die hergestellten transluzenten Flächen auf ihre optischen Eigenschaften untersucht und für die Evaluierung der Eignung für die Gebäudeintegration mit dem industriellen Glasstandard verglichen. Daraufhin wird die Skalierbarkeit der Laserstrukturierung mittels Herstellung effizienter transluzenter Perowskit-Solarmodule demonstriert. Um ebenfalls die Vielseitigkeit des Herstellungsprozesses zu beweisen, wird anschließend der Prozesstransfer zu Perowskit-Perowskit-Tandem-Solarzellen sowie –Solarmodulen aufgezeigt. Zuletzt wird das neue Prinzip der Transmissionsgradienten vorgestellt, und die Umsetzung sowie Optimierung anhand von transluzenten Perowskit-Solarmodulen demonstriert.

*Die Konzeption, die Umsetzung und die Analyse der Ergebnisse wurden von mir als Hauptverantwortlichem dieses Forschungshabens und ausführender Wissenschaftler der experimentellen Untersuchungen wesentlich erarbeitet. Unterstützende Beiträge sind in Tabelle 8.5 dargestellt. Ein Teil der gewonnenen Erkenntnisse wurde in Form einer Erstautorpublikation in der Fachzeitschrift *Energy & Environmental Science* (D. Ritzer et al.²¹¹) veröffentlicht. Die entsprechenden Inhalte sind dabei mit Erlaubnis der Royal Society of Chemistry (CC BY 3.0) reproduziert, adaptiert und übersetzt worden.*

6.1 Transparente Photovoltaik für die Gebäudeintegration

In Anbetracht der modernen Flächenkonkurrenz ist die gebäudeintegrierte Photovoltaik (BIPV) von entscheidender Bedeutung, um den Ausbau der Photovoltaik weiter zu beschleunigen und so zum Übergang von einem kohlenstoffbasierten Energiesystem zu innovativen und kostengünstigen erneuerbaren Energietechnologien beizutragen. Darüber hinaus bietet die lokale, dezentrale Stromerzeugung mittels BIPV Systemvorteile durch die Verringerung der Stromnetzinfrastuktur, der Übertragungsverluste und der Installationskosten.^{212,213} Da die konventionelle opake PV nur auf Dächern eingesetzt werden kann, verspricht die Erschließung von Flächen rund um Gebäude mittels BIPV eine erhebliche Steigerung der Lichtausbeute pro Gebäude und einen Beitrag zur Erreichung des Netto-Nullenergieverbrauchs von Gebäuden.^{214,215} Fassaden, Fenster oder Oberlichter bedürfen jedoch einer besonderen Betrachtung, da eine gute Tageslichtautonomie von zentraler Bedeutung ist, während unangenehm hohe Beleuchtungsstärken (z.B. Blendung) oder passives Aufheizen durch Sonneneinstrahlung meist vermieden werden sollten, um den Energieverbrauch zu senken.^{216,217} Da transparente PV sowohl einen variablen Lichttransmissionsgrad (AVT) als auch einen typischerweise umgekehrt proportionalen Wirkungsgrad bietet, verspricht sie eine ideale Tageslichtbeleuchtung, die durch und in Synergie mit effizienter Energiegewinnung angepasst wird.^{213,218} Umfangreiche Forschungsarbeiten zur Anpassung der Zusammensetzung photoaktiver Materialien,^{219,220} zur Änderung ihrer optoelektronischen Eigenschaften,^{221,222} zur Modifizierung von Schichtstapeln und -dicken^{223,224} und zu der Kombination mit photochromen Schichten^{225,226} führten zu verschiedenen transparenten PV-Technologien mit einer großen Bandbreite an Merkmalen und individuellen Vorteilen.²²⁷ In Anbetracht der großen Lücke zwischen den bisher erreichten Wirkungsgraden und der jeweiligen theoretischen Grenze bei gegebenen anwendungsorientierten AVTs bedarf es jedoch einer weiteren Verbesserung der Herstellungsprozesse, damit die Wirkungsgrade soweit gesteigert werden, dass sich auch wirtschaftliche Anreize einstellen.^{98,212,228} Darüber hinaus ist die Verbesserung der neutralen Farbwiedergabe, der streuungsfreien Durchsicht und der ästhetischen Individualisierung von zentraler Bedeutung, um negative Auswirkungen zu vermeiden, die mit der Substitution herkömmlicher Fassadenelemente einhergehen.²¹⁸ Im Folgenden wird deshalb der aktuelle Entwicklungsstand der bereits in Kapitel 2.1.7 vorgestellten technologischen Ausführungen transparenter PV beleuchtet und davon ausgehend die untergeordneten wissenschaftlichen Zielsetzungen dieses Kapitels definiert.

Für wellenlängenselektive transparente PV können aufgrund der ausschließlichen Absorption im UV- und/oder NIR-Bereich sehr hohe AVT-Werte von 50-90% bei

mm²-Bauteilabmessungen erreicht werden, wie in **Abbildung 6.1** dargestellt ist. Die thermodynamische Grenze dieser Technologie liegt dabei nach dem auf die Absorptionsbereiche angepassten Detailed Balance Wirkungsgradlimit bei 20,6% PCE für 100% AVT (optimale Bandlücke von 1,12 eV).^{70,229} Lunt *et al.* demonstrierten dabei bereits 2011 NIR-selektive transparente Solarzellen mit Wirkungsgraden von bis zu 1,7% bei 55% AVT durch die Kombination einer organischen Absorberschicht mit Heteroübergang, organischen Donor- und Akzeptorschichten mit Absorptionskoeffizienzmaxima im UV und NIR und einer NIR-wellenlängenselektiven Spiegelbeschichtung.²³⁰ Unter Verwendung einer transparenten Polymerschicht mit Silbernanodrähten als Frontelektrode erreichten Chen *et al.* 2012 über 4,0% PCE bei 61% AVT.²³¹ Ein Versuch, den Wirkungsgrad auf über 5% durch eine Tandem-Architektur von Zuo *et al.* zu erhöhen, hat zu einer erheblichen Verbesserung auf 10,7% PCE bei 53% AVT geführt.²³² Die große Lücke zwischen den bisher erreichten PCEs und der theoretischen Grenze für wellenlängenselektive transparente PVs ist teilweise der problematischen Exzitonendiffusionslänge geschuldet, die eine Begrenzung der Schichtdicke und damit der Absorption erforderlich macht. Aufgrund der unverzichtbaren Verwendung transparenter Elektrodenschichten, deren Leitfähigkeit im Allgemeinen schlechter ist als die opaker Materialien, führt die Vergrößerung transparenter PVs zu einem Kompromiss zwischen der Verringerung des AVTs, dem Anstieg der Serienwiderstandsverluste und der Notwendigkeit einer höheren Periodizität der Verbindungen, wodurch die aktive Fläche verringert wird.

Yang *et al.* übertrugen den Ansatz der wellenlängenselektiven Absorption auf lumineszierende Solarkonzentratoren (LSC) und demonstrierten einen NIR-selektiven LSC auf der Basis von Luminophoren mit 1,2% PCE bei 74% AVT.²³³ Da die Reabsorption von Photonen der dominante Verlustmechanismus für LSCs ist, wenn man deren Abmessungen auf Quadratmeter skaliert,²³⁴ sind LSCs, die Absorption im UV- und Reemission im NIR-Spektrum aufweisen, attraktiver geworden. Der geringe Anteil von Photonen im UV-Spektralbereich des Sonnenspektrums (AM1,5G) begrenzt jedoch den theoretischen PCE dieser Bauelemente auf 5,6% (unter Ausnutzung von Multiexzitonenerzeugungsmechanismen und einer Grenzwellenlänge von 435 nm wegen der vernachlässigbaren Empfindlichkeit des menschlichen Auges).²³⁵ Aufgrund der sehr hohen AVTs von wellenlängenselektiver transparenter PV ist die Anwendung dieser Technologie in autarken intelligenten Fenstern vorgesehen, wie in **Abbildung 6.1** dargestellt. Abhängig von der Verbesserung der PCE und der Skalierung der Geräteabmessungen können auch Anwendungen als fensterintegrierte PV oder zur Eigenstromversorgung kleiner elektronischer Geräte aus mobilen Multimediadisplays technisch und wirtschaftlich realisierbar werden.⁹⁸ Ihre grundlegenden Einschränkungen in Bezug auf den PCE machen wellenlängenselektive transparente PV jedoch für die Anwendung in Fassaden unattraktiv.

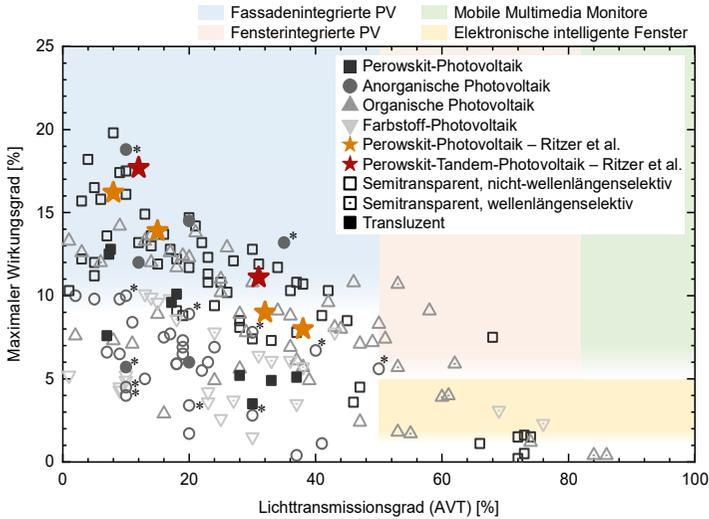


Abbildung 6.1. Maximaler Wirkungsgrad als Funktion des Lichttransmissionsgrades AVT für (semi-) transparente Photovoltaik basierend auf unterschiedlichen technologischen Konzepten. Datenpunkte mit Asterisk (*) stellen kommerziell erhältliche semitransparente Photovoltaikmodule mit Flächen von ca. 1 m² dar. Erwartete Anwendungsvoraussetzungen für die technologische Machbarkeit und wirtschaftliche Nachhaltigkeit von (semi-) transparenter PV sind mittels Hintergrundfarben gekennzeichnet. Übersetzte und angepasste Abbildung aus Ritzer *et al.*²¹¹

Für nicht-wellenlängenselektive, semitransparente PV sind dagegen bereits seit mehr als einem Jahrzehnt kommerzielle Produkte verfügbar^{236,237} und basieren auf hydrogeniertem amorphem Silizium (a-Si:H), Kupfer-Indium-Gallium-Diselenid (CIGS) oder Cadmiumtellurid (CdTe) Dünnschicht-PV. Die beiden letzteren Technologien bieten dabei höhere PCEs, weisen aber aufgrund höherer Kosten und weniger häufig vorkommender chemischer Elemente einen Wettbewerbsnachteil auf.²³⁸ Moderne semitransparente PV-Paneele, die in üblichen Abmessungen von ~ 1 m² erhältlich sind, bieten PCEs von bis zu 10% bei 10% AVT und 6% bei 50% AVT.^{239,240} Neben diesen etablierten Technologien verfolgt die Forschung seit kurzem die Entwicklung semitransparenter Photovoltaik auf Grundlage neuerer PV-Technologien wie der organischen Photovoltaik (OPV) und der Perowskit-Photovoltaik. Diese semitransparenten Bauelemente im Labormaßstab mit einer aktiven Fläche von typischerweise einigen mm² bis wenigen cm² demonstrieren bereits PCEs zwischen 9,1% und 19,8% bei AVTs von 8% bis 58%, wie in **Abbildung 6.1** dargestellt.^{241,242} In diesem Zusammenhang stellten Yang *et al.* ein semitransparentes Perowskit-Solarmodul mit einem PCE von 19,8% bei 8% AVT her, wobei sie eine dünne Goldschicht, die auf einer Chromschicht aufgewachsen

war, als transparenten Frontkontakt zur Erhöhung der Durchlässigkeit nutzten.^{227,241} Darüber hinaus haben Chaturvedi *et al.* kürzlich organische Solarzellen mittels Schlitzdüsen-Beschichtung mit einem PCE von bis zu 9,1% bei 58% AVT demonstriert, die auf der zusätzlichen Abscheidung von Ag-Nanodrähten auf Al-dotiertem ZnO als transparente Rückelektrode basieren.²⁴² Während das Konzept der semitransparenten Mehrfachsolarzellen die theoretische PCE-Grenze weiter verbessern kann, verringert sich damit der mögliche AVT aufgrund der Absorption der zusätzlichen Schichten erheblich. Unter Verwendung dieses Ansatzes präsentierten Meiss *et al.* eine effiziente organische 2-Terminal-Tandem-Solarzelle mit einem PCE von 5,1% bei 24% AVT, die auf zwei optimierten Heteroübergängen organischer Moleküle basiert.²⁴³ Unabhängig von den verwendeten Materialien weisen nicht-wellenlängenselektive semitransparente PVs aufgrund der wellenlängenabhängigen Variationen von Absorption, Reflexion und Transmission im sichtbaren Spektrum eine starke Färbung und entsprechend niedrige Farbwiedergabeindizes R_a auf.^{243–245} Während dies für ästhetische Fassadenelemente vorteilhaft sein kann und weitere Verbesserungen des PCEs auf eine wirtschaftliche Tragfähigkeit möglich machen (siehe **Abbildung 6.1**), schränkt die fehlende Farbneutralität ihre weitreichende Verwendung als gebäudeintegrierte transparente PV-Lösung ein.^{213,246} Darüber hinaus führt die funktionale Abhängigkeit von einem transparenten leitfähigen Oxid im Vergleich zu einem Metall als Rückelektrode zu einem zusätzlichen Kompromiss zwischen Leitfähigkeit und Transmissionsgrad, was ebenfalls zu größeren PCE-Verlusten beim Aufskalieren von Solarzellen zu -modulen führt.^{98,247}

Für die nicht-wellenlängenselektive, transluzente Photovoltaik konzentrierten sich anfängliche Entwicklungsbemühungen auf den simplen, aber vielseitigen Ansatz der makroskopischen Anordnung von Silizium-Solarzellen auf Glassubstraten. Dieser Ansatz wurde zur dominierenden BIPV-Technologie auf dem freien Markt mit PCEs, die 18,9% bei 10% AVT und 13,2% bei 35% AVT für m^2 -Dimensionen erreichen (siehe **Abbildung 6.1**).^{248,249} In den letzten Jahren ist dagegen das Interesse an der Mikrostrukturierung von c-Si und Dünnschicht-PV wie a-Si oder CIGS gestiegen, da dies einen verbesserten, homogeneren optischen Eindruck bietet, insbesondere bei Betrachtungsabständen von einigen Metern oder weniger. Verfügbare Industrielösungen auf der Basis von a-Si erreichen bis zu 5,7% PCE bei 10% AVT und 2,8% PCE bei 30% AVT.^{240,250} In Bezug auf den Stand der Forschung für mm^2 - bis dm^2 -Abmessungen haben Park *et al.* kürzlich transluzente c-Si-Solarzellen mit einer Fläche von 25 cm^2 und bis zu 14,5% PCE bei 20% AVT durch die Herstellung von Mikrolöchern durch reaktives Ionenätzen demonstriert.²⁵¹ Tsai *et al.* konzentrierten sich auf Dünnschicht-PV und nutzten laserinduzierte Ablation, um transparente Schlitze in kommerziellen a-Si/ μ -Si-Solarmodulen zu erzeugen, und erreichten $\approx 6\%$ PCE bei $\approx 20\%$ AVT.²⁵² Darüber hinaus nutzten Kuk *et al.* das

Laserstrukturieren, um diskrete mikroskopische, kreisförmige, transparente Bereiche in CIGS-Zellen mit einer Fläche von $0,46 \text{ cm}^2$ zu erzeugen, und erzielten 12% PCE bei $\approx 12\%$ AVT (geschätzt auf der Grundlage eines Verhältnisses von 15% transparenter Fläche).²⁵³ Auf Basis von lösungsbasierter Abscheidemethoden nutzten Eperon *et al.* die spontane Entnetzung rotationsbeschichteter Perowskit-Halbleiterschichten, um mikroskopische transparente Porenanordnungen zu erzeugen. Während der AVT der resultierenden Solarzellen zwischen 7% und 30% lag, betrug die PCEs 7,6% bzw. 3,5%.²⁵⁴ Darüber hinaus untersuchten Rakocevic *et al.* die Auswirkung mechanischer und laserbasierter Mikrostrukturierung transparenter Flächen auf die Leistung hergestellter transluzenter Perowskit-Solarmodule. Sie demonstrierten dabei PCEs von bis zu 13,1% bei 8% AVT und 5,4% bei 37% AVT und beobachteten einen überproportionalen Rückgang des PCEs für AVTs über 30% und dichter gepackter transparenter Flächen.¹⁷⁹ Obwohl diese Ergebnisse das Potenzial aufzeigen, ist die weitere Steigerung der Wirkungsgrade als auch der Fläche mikrostrukturierter, semitransparenter PV unumgänglich, damit diese Technologie für die Industrie wirtschaftlich attraktiv wird und als BIPV für Fassaden eingesetzt werden kann.^{98,212} Darüber hinaus deutet der beobachtete überproportionale Rückgang des PCEs bei steigenden AVT-Werten für transluzente Perowskit-PV darauf hin, dass weitere Prozessverbesserungen erforderlich sind, um auch effiziente semitransparente PV-Lösungen mit 30-50 % AVT zu ermöglichen.^{179,254} Des Weiteren wurden bisher nur wenige Daten zu optischen Eigenschaften wie dem Farbwiedergabeindex R_a und dem Streuanteil der transmittierten Strahlung D_T vorgelegt, die die optische Attraktivität dieser Technologie grundlegend bestimmen. Insbesondere die neutrale Farbwiedergabe dürfte für eine breite öffentliche Akzeptanz und die Überwindung der kritischen Haltung von Architekten gegenüber semitransparenter PV entscheidend sein, da moderne Stadtbilder von den neutralen Farben Schwarz, Weiß und Grau dominiert werden.^{213,255} Während transluzente Perowskit-Tandem-PV als vielversprechender Weg zu hocheffizienter, farbneutraler, semitransparenter PV in Betracht gezogen und anerkannt wurden, muss die Toleranz komplexer Perowskit-Tandem-Schichtstapel gegenüber umfangreicher Laserstrukturierung noch erforscht werden.

Als Antwort auf diese Herausforderungen wird im Folgenden die Herstellung transluzenter Perowskit-Solarzellen und -module mittels Laserstrukturierung demonstriert, die vielseitige Formen der transparenten Flächen sowie Transparenzvariationen unkompliziert ermöglicht. Im Anschluss an die Herstellung erlaubt eine eingehende Analyse der elektrischen und optischen Leistung die Bestimmung optimaler Parameter der Laserstrukturierung sowie idealer Formen der transparenten Bereiche, um überproportionale Verluste selbst bei AVTs über 30% zu mindern. Da die künftige Integration von semitransparenten PV-Anlagen in Fassaden die Akzeptanz der Öffentlichkeit voraussetzt, wird sowohl eine

quantitative Untersuchung der optischen Eigenschaften als auch die qualitative Wahrnehmung bezüglich Ästhetik der transluzenten PV vorgestellt. Schließlich wird der optimierte Mikrostrukturierungsprozess auf monolithisch verschaltete Solarmodule aufskaliert und erstmals auf 2-Terminal-Perowskit-Perowskit-Tandem-PV übertragen, um die Machbarkeit und das zukünftige Potenzial hocheffizienter transluzenter Tandem-PV zu demonstrieren. Darüber hinaus wird das Konzept beliebiger Transmissionsgradienten mittels gradueller Änderung der Verteilungsdichte eingebrachter transparenter Flächen vorgestellt, das neue Möglichkeiten zur architektonischen Individualisierung bietet. Die grundlegenden Zielsetzungen lauten somit:

6-I. Laserbasierte Herstellung mikroskopischer transparenter Flächen in Perowskit-Solarzellen und Optimierung hinsichtlich maximaler Transmissionsgrade und minimaler Wirkungsgradverluste der Solarzellen

6-II. Untersuchung der optischen Qualität laserstrukturierter transluzenter Flächen in Perowskit-Photovoltaik hinsichtlich einem für BIPV geeigneten ästhetischen Eindrucks

6-III. Aufskalierung transluzenter Perowskit-Photovoltaik durch laserbasierte monolithische Verschaltung transluzenter Solarzellen zu -modulen

6-IV. Entwicklung und Optimierung transluzenter 2-Terminal-Perowskit-Perowskit-Tandem-Photovoltaik zur deutlichen Wirkungsgradsteigerung

6-V. Entwicklung und Umsetzung eines Konzepts zur Steigerung der Ästhetik und Individualisierung von BIPV basierend auf laserstrukturierter transluzenter Perowskit-PV

Die in dieser Studie vorgestellten Laserstrukturierungsverfahren für transparente Bereiche sind mit Perowskit-Absorberschichtdicken in einem weiten Bereich (400 nm bis 1200 nm) kompatibel, was auch der Dicke von Perowskit-Dünnschichten entspricht, die mit skalierbaren Herstellungsmethoden wie Blade Coating²⁵⁶, Tintenstrahldruck²⁵⁷, Slot-Die-Coating²⁵⁸ und Verdampfung²⁵⁹ gefertigt werden.

6.2 Optimierung laserstrukturierter transparenter Flächen

Wie zuvor dargelegt, benötigt transluzente Perowskit-PV eine deutliche Verbesserung der Wirkungsgrade, damit neben funktionalen auch wirtschaftliche Anreize geschaffen werden. Insbesondere ist auch der überproportionale Rückgang der Wirkungsgrade bei AVT-Werten über 30% zu vermeiden, um mögliche Applikationsbereiche nicht zu stark einzugrenzen.¹⁷⁹ Darüber hinaus sollte die Entwicklung und Optimierung einer geeigneten Herstellungsstrategie auf einfachen, industriell anwendbaren und reproduzierbaren Prozessen beruhen. Das zuvor vorgestellte Laserstrukturierungssystem soll nun eingesetzt werden, um effiziente opake Perowskit-Solarzellen mikroskopisch zu strukturieren und verschiedene Formen und Größen transparenter Flächen bei optimierten Parametern der Laserstrukturierung zu demonstrieren.

Für die Herstellung transluzenter Perowskit-Solarzellen werden im Folgenden opake Perowskit-Solarzellen mit einer planaren lösungsbasierten n-i-p-Architektur in der Schichtreihenfolge Indiumzinnoxid (ITO), (2-(9H-Carbazol-9-yl)ethyl)phosphonsäure (2PACz), Methylammoniumbleijodid ($\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$), Fulleren (C_{60})/Bathocuproin (BCP) und Gold (Au) mit einer aktiven Fläche von 0.105 cm^2 verwendet.²⁶⁰ Alle verwendeten Laserstrukturierungslayouts sind in **Abbildung 8.2** des Anhangs dargestellt.

Wie bereits aus Kapitel 4.2 bekannt, kann Laserstrukturierung mit ungeeigneten Parametern zu unvollständiger Ablation von Material, zur Degradation von funktionellen Schichten, zum Schmelzen oder zur Spannbildung des Metallrückkontakts, und damit einhergehend zu elektrischen Defekten in Solarzellen führen. Dementsprechend ist für alle Layouts eine individuelle Optimierung der Laserstrukturierungsparameter notwendig. Eine solche Optimierung umfasst die Anpassung der Pulsspitzenfluenzen, der Strukturierungsgeschwindigkeit, der Überlappung der Strukturierungslinien des jeweiligen Layouts, sowie der Ein- und Ausschaltverzögerungszeiten des Lasers und ist beispielhaft in **Abbildung 6.2** für drei unterschiedliche Layouts dargestellt. Dabei ist ersichtlich, dass insbesondere zu niedrige oder zu hohe Pulsspitzenfluenzen (siehe **Abbildung 6.2a**) zu jeweils unvollständiger Ablation oder Rückkontaktspannbildung führt. Für größere Laserstrukturierungslayouts, welche auf der Überlappung ablatierter Bereiche basieren, ist zusätzlich eine Optimierung des Layouts sowie der Ein-/Ausschaltverzögerungszeiten (siehe **Abbildung 8.2** des Anhangs) für ein homogenes Ablationsergebnis essenziell (siehe **Abbildung 6.2b** und **c**). Bei der zusätzlichen Ablation der Frontkontaktschicht ist ebenfalls zu beachten, dass die Laserstrukturierung des ITO erst in einem zweiten Prozessschritt nach vorheriger Ablation anderer funktionaler Schichten erfolgt. Ebenso ist aufgrund der deutlich höheren notwendigen Pulsspitzenfluenzen für die Ablation von ITO, die zu

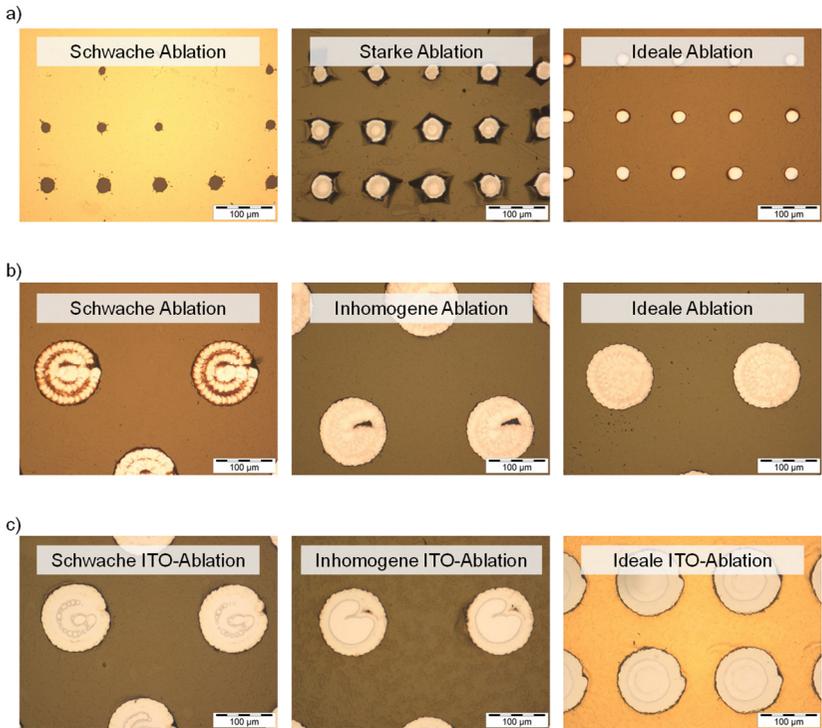


Abbildung 6.2. Beispielhafte Darstellung der Parameter- und Designoptimierung für ideale Laserstrukturierung transparenter Flächen in Perowskit-Solarzellen und -modulen. Kleine kreisförmige transparente Flächen (a) werden mit unzureichender Pulsspitzenfluenz (links) hergestellt, was zu einer unvollständigen Ablation führt, während eine zu hohe Pulsspitzenfluenz (mittig) das Abplatzen von Metallspänen zur Folge hat. Das Resultat bei Nutzung optimaler Pulsspitzenfluenz ist (rechts) aufgeführt. Große kreisförmige transparente Flächen (b) und mit zusätzlicher zentrischer Frontkontaktablattung (c) zeigen Herstellungsergebnisse für unzureichende Pulsspitzenfluenz (links), für räumlich inhomogene Laserstrukturierung (mittig) und für optimierte Parametersätze (rechts). Übersetzte Abbildung aus Ritzer *et al.*²¹¹

ablatierende Fläche kleiner als für die anderen funktionalen Schichten zu wählen, wie in **Abbildung 6.2c** gezeigt ist.

Im Folgenden werden nun die hergestellten transluzenten Perowskit-Solarzellen charakterisiert und der Transmissionsgrad der transparenten Flächen, der Einfluss des Laserstrukturierungsprozesses auf die charakteristischen Widerstände der Solarzellen und der Wirkungsgrad in Relation zum Lichttransmissionsgrad

analysiert. Dabei werden verschiedene AVT-Level durch Anpassung der Verteilungsdichte der transparenten Flächen (Anzahl pro Zellfläche) ermöglicht. Lichtmikroskopieaufnahmen sowie Weißlichtinterferometriemessungen der transluzenten Perowskit-Solarzellen sind in **Abbildung 6.3** dargestellt, wobei die inaktiven transparenten Flächen gleichmäßig in der ansonsten opaken Solarzelle verteilt sind. Was die Wahl der Formen für die transparenten Bereiche betrifft, so ähneln die kleinen kreisförmigen transparenten Flächen (**Abbildung 6.3a**) mit einem Durchmesser von 25 μm dem von Kuk *et al.* für transluzente CIGS-Zellen vorgestellten Design und werden durch einen einzelnen Laserpuls erzeugt.²⁵³ Die transparenten Flächen in Form von Linien (**Abbildung 6.3b**), die senkrecht zu den Modulverbindungsleitungen ausgerichtet sind und mittels Überlappung von Pulskratern hergestellt werden, wurden zuvor von Rakocevic *et al.* untersucht und haben ebenfalls einen Durchmesser von ca. 25 μm .¹⁷⁹ Da Rückstände des Perowskit-Absorbers den Lichttransmissionsgrad der laserstrukturierten transparenten Flächen erheblich verringern und diese aufgrund des Gaußschen Laserintensitätsprofils insbesondere an den Rändern der Ablationskrater vorhanden sind, werden zwei größere transparente Bereiche in Kreis- und Quadratform (**Abbildung 6.3c** und **e**) hergestellt. Unter Berücksichtigung der Winkelauflösungsgrenze des menschlichen Auges von ≈ 1 Bogenminute und mit dem Ziel eines homogenen optischen Eindrucks für alle BIPV-Anwendungen mit einem Betrachtungsabstand von mehr als 50 cm wird der Durchmesser der großen transparenten Flächen auf 120 μm festgelegt.²⁶¹ Bei der Ablation dieser größeren Flächen ist dabei die Strukturierung vom äußeren Rand hin zur Mitte der Flächen durchzuführen, um Rückkontaktspannungsbildung und einhergehende Defekte zu vermeiden. Um den höheren AVT von Glas mit 91% gegenüber Glas/ITO mit 88% auszunutzen, wird ein zweiter Laserstrukturierungsschritt (2-Schritt) bei erhöhter Pulsspitzenfluenzen durchgeführt, um das ITO zu entfernen. Aufgrund des notwendigen Abstands zum intakten Schichtstapel der Solarzelle wird dieser zweite Prozessschritt nur für die großen transparenten Flächen, wie in **Abbildung 6.3d** und **f** dargestellt, eingeführt. Die vollständige ITO Ablation ist dabei insbesondere in den Weißlichtinterferometriemessungen zu erkennen.

Die quantitative Evaluierung optischer und elektrischer Eigenschaften der transluzenten Perowskit-Solarzellen umfasst zunächst die Bestimmung des Lichttransmissionsgrads der laserstrukturierten transparenten Flächen unterschiedlicher Formen. Dabei wird der gemessene AVT-Wert der jeweiligen Solarzelle mit der relativen Verringerung des Kurzschlussstroms, verursacht durch den Laserstrukturierungsprozess, normiert. Damit ist die Auswertung der Transmissionseffizienz nicht von toleranzbehafteten Messungen einzelner Ablationskratergrößen abhängig, sondern berücksichtigt den tatsächlichen Einfluss der Ablation auf die Schichten der Solarzellen und der Entstehung inaktiver Flächen.

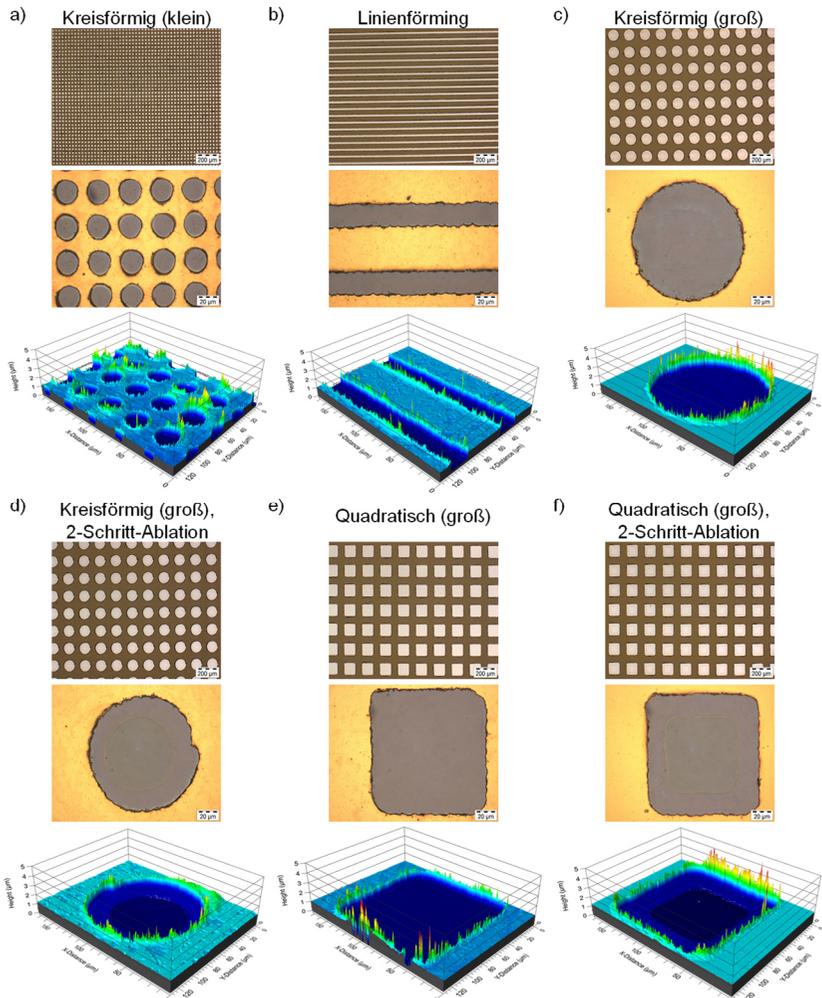


Abbildung 6.3. Qualitative Analyse laserstrukturierter transparenter Flächen in Perovskit-PV mittels Lichtmikroskopieaufnahmen (je oben und mittig) und Weißlichtinterferometriemessungen (unten). Optimierte Laserstrukturierungsparameter führen für unterschiedliche Formate (a-f) zu defektfreien Ergebnissen. Die scharfen Spitzen der Weißlichtinterferometriemessungen stellen keine Materialdefekte, sondern Messartefakte dar, die durch den sogenannten Batwing-Effekt verursacht werden und bei interferometrischen Messverfahren auftreten, wenn der Höhenunterschied kleiner ist als die Kohärenzlänge der verwendeten Lichtquelle.²⁶² Übersetzte und angepasste Abbildung aus Ritzer *et al.*²¹¹

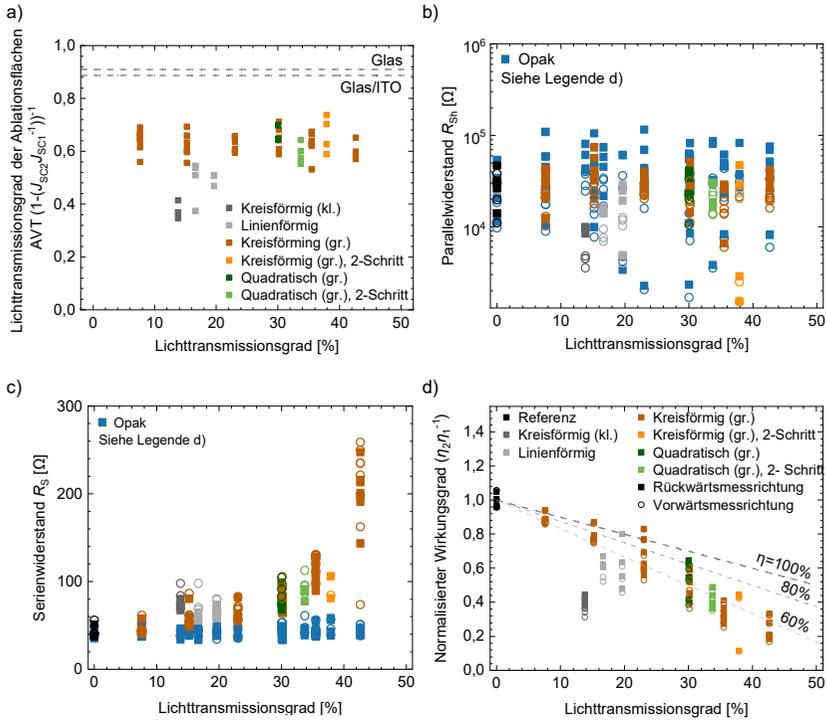


Abbildung 6.4. Charakterisierung der optischen und elektrischen Eigenschaften laserstrukturierter transluzenter Perowskit-Solarzellen bei Anwendung verschiedener Formate transparenter Flächen. (a) Lichttransmissionsgrad der transparenten Flächen. (b) Parallelwiderstand hergestellter Perowskit-Solarzellen vor (opak) und nach (transluzent) Laserstrukturierung transparenter Bereiche. (c) Serienwiderstand hergestellter Perowskit-Solarzellen vor (opak) und nach (transluzent) Laserstrukturierung transparenter Bereiche. (d) Normalisierte Wirkungsgrade der jeweiligen Geräte. Die gestrichelten Linien veranschaulichen die Prozesseffizienzen der Herstellung transluzenter Solarzellen. Übersetzte und angepasste Abbildung aus Ritzer *et al.*²¹¹

Wie in **Abbildung 6.4a** dargestellt, weisen die kleinen kreisförmigen sowie linienförmigen transparenten Flächen AVTs von 40% bis 50% auf, was auf die Absorption durch Materialrückstände insbesondere an den Rändern der Flächen zurückzuführen ist. Dagegen erreichen die größeren Formen AVTs von 60% bis über 70%, und kommen damit dem theoretischen Maximum von 88% (91%) deutlich näher. Transparente Bereiche mit zusätzlicher zentrischer ITO-Ablation zeigen nur geringe Verbesserungen der Lichttransmissionsgrade, da angenommen wird, dass sich die positiven Auswirkungen des höheren AVTs durch vollständigere

Materialablation mit der zusätzlichen Verringerung des J_{SC} aufgrund stärkerer lateraler Materialdegradation oder unbeabsichtigter Bildung von Rückkontaktspänen aufheben. Es wird allerdings erwartet, dass eine weitere Optimierung der Parameter der Laserstrukturierung negative Auswirkungen weiter mindert.

Ein weiterer wichtiger Qualitätsindikator für PV stellt der Füllfaktor FF dar, welcher unter anderem vom Parallel- und Serienwiderstand abhängig ist. Insbesondere die Verringerung des Parallelwiderstands ist ein häufiges Problem der Laserstrukturierung, da durch das Schmelzen oder die Spanbildung des metallischen Rückkontakts Kurzschlüsse entstehen können. Wie bereits die zuvor gezeigten qualitativen Ergebnisse nahelegten, ist eine relevante Verringerung der Parallelwiderstände der untersuchten Solarzellen in **Abbildung 6.4b** nicht zu erkennen. Die Schwankungen des Parallelwiderstands vor und nach der Laserstrukturierung befinden sich stattdessen innerhalb der statistischen Messwertverteilung. Der Serienwiderstand ist wiederum aufgrund der Reduzierung der Rückkontaktschicht (und Frontkontaktschicht) von Relevanz, was den Querschnitt und damit die Leitfähigkeit der Schichten verringert und weswegen eine Steigerung des Widerstands mit steigendem AVT erwartet wird. Wie in **Abbildung 6.4c** visualisiert, steigt der Serienwiderstand bei allen Formen stetig an und erreicht bei AVTs von ca. 35% einen Faktor von 2, während eine weitere Steigerung des AVTs zu einem deutlichen schnelleren Anstieg der Widerstände führt. Unter Berücksichtigung der einhergehenden Verringerung der effektiven Stromdichte der transluzenten Solarzelle führt ein linearer Anstieg des Serienwiderstands in ähnlichem Umfang zu konstanten ohmschen Verlusten und ist entsprechend hinnehmbar. Ebenso würde die Erhöhung der Rückkontaktschichtdicke oder eine Verringerung der Solarzellenstreifenbreite bei Modulen die ohmschen Verluste weiter verringern.

Zuletzt wird der Wirkungsgrad der transluzenten Perowskit-Solarzellen betrachtet. In **Abbildung 6.4d** ist hierzu der resultierende PCE normiert mittels anfänglichem PCE der Solarzelle über den jeweiligen AVT-Wert aufgetragen. Es ist anzumerken, dass das Verhältnis von erzeugtem Lichttransmissionsgrad und relativem Wirkungsgradverlust einen sehr guten Indikator für die Gesamtprozesseffizienz darstellt. Unter Berücksichtigung des maximalen AVT von Glas bzw. Glas/ITO, liegt das Optimum für einen solchen Laserstrukturierungsprozess also zwischen 88% und 91%. Zur Veranschaulichung sind die Prozesseffizienzen mittels gestrichelter Hilfslinien dargestellt. Für die Solarzellen mit kleinen kreisförmigen sowie linienförmigen transparenten Flächen nimmt der normierte PCE bereits bei AVTs von 10% bis 20% auf bis zu 0,4 ab. Dieses Ergebnis war nach den vorherigen Ergebnissen, welche Materialrückstände und geringere Lichttransmissionsgrade aufzeigten, zu erwarten. Im Gegensatz dazu demonstrieren Solarzellen mit großen

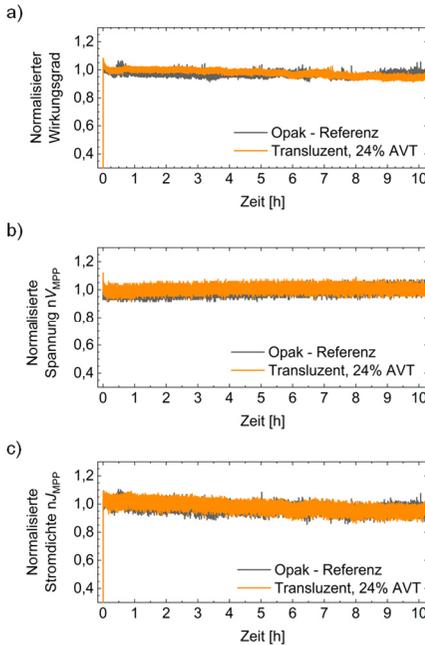


Abbildung 6.5. Evaluierung der Kurzzeitstabilität transluzenter Perowskit-Solarzellen. Eine transluzente Perowskit-Solarzelle mittleren Lichttransmissionsgrads sowie eine opake Referenzsolarzelle wurden mehr als 10 Stunden lang unter konstanter Beleuchtung (Maximum Power Point Tracking bei nominaler Betriebstemperatur der Zelle). Zeitlicher Verlauf (a) des stabilisierten Wirkungsgrads, (b) der Spannung und (c) der Stromdichte der jeweiligen Solarzelle. Messwerte wurden aufgrund der besseren Vergleichbarkeit mittels Anfangswert normiert. Übersetzte Abbildung aus Ritzer *et al.*²¹¹

transparenten Flächen deutlich geringere PCE-Rückgänge, welche insbesondere für kleinere AVT einem linearen Trend folgen und entsprechend gleichbleibende Prozessqualität bieten. Eine weitere Erhöhung der AVT führt bei allen vier Formen mit großen transparenten Flächen zu einem stärkeren Rückgang der PCEs, was auf den beobachteten deutlichen Anstieg des Serienwiderstands zurückzuführen ist. Dabei wird bei einem AVT von 44% eine maximale Prozesseffizienz von 70% erreicht. Die leistungsstärksten transluzenten Perowskit-Solarzellen weisen dabei PCEs von 16,2%, 13,9% und 8,1% bei AVTs von 8%, 15% und 38% auf (siehe **Abbildung 6.1**).

Ergänzend zur Betrachtung des Wirkungsgrades der hergestellten transluzenten Perowskit-Solarzellen wird in **Abbildung 6.5** noch die Kurzzeitstabilität des

Wirkungsgrades untersucht. Dabei gilt es zu überprüfen, ob oder inwieweit die Laserstrukturierung unter optimierten Parametern Defekte oder Materialveränderung induziert. Hierfür wird exemplarisch eine Perowskit-Solarzelle mittleren AVTs sowie eine opake Referenzsolarzelle derselben Charge für über 10 h unter konstanter Beleuchtung mittels MPP-Tracking bei nominaler Betriebstemperatur der Solarzelle gemessen. Dabei zeigen sich weder für das Verhalten des normierten Wirkungsgrades (**Abbildung 6.5a**), noch für Spannung und Stromdichte (**Abbildung 6.5b** und **c**) Unterschiede im zeitlichen Verlauf. Dies lässt darauf schließen, dass die Laserstrukturierung keine imminente oder beschleunigte Degradation verursacht hat.

6.3 Optische Qualität transluzenter Flächen

Nachdem geeignete Laserstrukturierungsparameter für optimale optische Eigenschaften transparenter Flächen sowie für minimale Verringerung der elektrischen Leistung der transluzenten Perowskit-Solarzellen definiert werden konnten, soll nun genauer auf die optischen Eigenschaften der entstehenden transluzenten Flächen eingegangen werden. Wie eingangs erläutert, wird davon ausgegangen, dass die Ästhetik eine der wichtigsten Akzeptanzkriterien für BIPV darstellt. Entsprechend stellen die Farbneutralität, ein homogener optischer Eindruck sowie eine streuungsarme Durchsicht zentrale Ziele dar.

Um die Beurteilung des optischen Eindrucks transluzenter Flächen zu ermöglichen, sowie über ausreichend Fläche für die Charakterisierungsverfahren zu verfügen, wird die transluzente Fläche durch Aufskalierung der Solarzellen auf 4 cm² Aperturfläche vergrößert. Die notwendige Vergleichbarkeit wird dadurch gewährleistet, dass alle Strukturierungslayouts der unterschiedlichen Formen transparenter Flächen so angepasst werden, dass die resultierenden transluzenten Flächen einen ungefähren AVT von 30% aufweisen.

Für die qualitative Beurteilung des optischen Eindrucks sind in **Abbildung 6.6** Fotos der Vorder- und Rückseite, sowie der Sicht durch eine transluzente Perowskit-Solarzelle dargestellt. Dabei werden für alle Formen homogene und defektfrei transluzente Flächen demonstriert, was die gleichbleibende Qualität der Laserstrukturierung für mehrere Millionen Laserpulse pro Substrat hervorhebt. Auffällig ist, dass es für die beiden kleineren Formen (kreisförmig und linienförmig, **Abbildung 6.6a** und **b**) augenscheinlich zu mehr Streuung kommt, was auf das höhere Verhältnis von Kraterkantenflächen zu Kraterinnenflächen zurückzuführen ist. Da die Abmessungen der hergestellten transparenten Bereiche (> 25 µm) und die jeweilige Periodizität (> 40 µm) die Kohärenzlänge des natürlichen Lichtspektrums des sichtbaren Lichts bei weitem überschreiten, werden keine Beugungsfarben beobachtet. Des Weiteren sind auf einigen Vorder- und Rückseitenaufnahmen störende Muster zu erkennen. Diese Muster sind allerdings für einen Betrachter nicht sichtbar, sondern resultieren durch den sogenannten Moiré-Effekt. Dabei überlagern sich zwei periodische Muster, was in diesem Fall den hergestellten transparenten Flächen und der pixelbasierten Anzeige von Monitoren entspricht.²⁶³ Dieser Effekt kann durch die räumliche Randomisierung der hergestellten transparenten Flächen leicht vermieden werden, wie **Abbildung 6.7** demonstriert. Betrachtet man die Qualität der Durchsicht, so zeigen sowohl die transluzente Perowskit-Solarzelle mit großen quadratischen transparenten Formen als auch die beiden Formen mit zusätzlicher ITO-Ablation (siehe **Abbildung 6.6c**, **d** und **f**) eine überlegene Klarheit und Schärfe der dahinterliegenden Objekte.

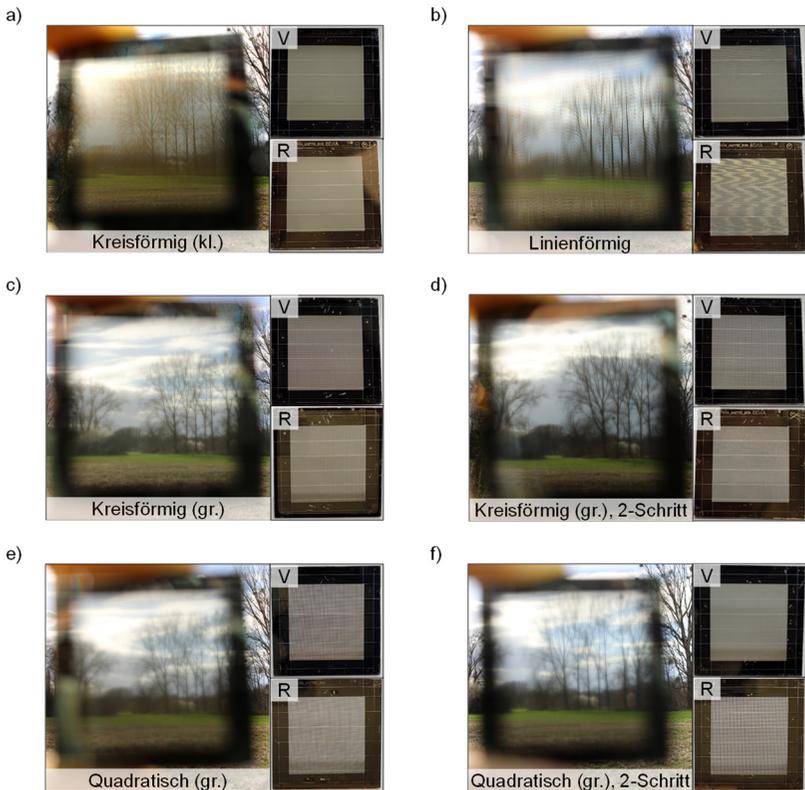


Abbildung 6.6. Qualitative Charakterisierung der optischen Eigenschaften transluzenter Perowskit-Solarmodule mit 4 cm^2 Aperturfläche, bestehend aus 5 monolithisch miteinander verschalteten Zellen. Durchsicht, Vorder- und Rückansicht der transluzenten Solarmodule mit den zuvor eingeführten Formaten transparenter Flächen (a-f). Übersetzte und angepasste Abbildung aus Ritzer *et al.*²¹¹

Die beobachteten qualitativen Unterschiede im optischen Eindruck transluzenter Perowskit-Solarzellen werden im Folgenden mittels Spektrophotometriemessungen und deren detaillierten Auswertung quantifiziert. In **Abbildung 6.8** sind dabei die Transmissionsspektren der unterschiedlichen Proben für einen Wellenlängenbereich zwischen 300 und 1100 nm dargestellt. Dabei zeigen besonders die transluzenten Flächen mit zusätzlicher ITO-Ablation höhere Lichttransmissionsgrade für das blaue Lichtspektrum und bereits ab 480 nm ein generell flaches Transmissionsspektrum, was die zuvor beobachtete neutrale Farbwiedergabe widerspiegelt. Diese Güte der neutralen Farbwiedergabe wird

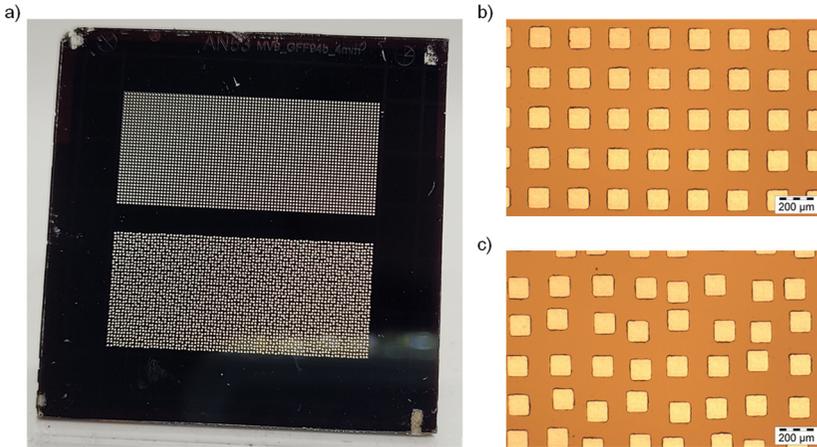


Abbildung 6.7. Veranschaulichung des Moiré-Effekts, der bei Bildern von transluzenten Flächen aufgrund der Überlagerung von zwei periodischen Strukturen (d. h. Anordnung von transparenten Flächen und pixelbasierten Monitoren als Anzeige) beobachtet werden kann. (a) Vorderseitenaufnahme einer transluzenten Perowskit-Solarzelle mit einer periodischen Anordnung von transparenten Flächen (oben) und räumlich randomisierten transparenten Flächen (unten). Das Auftreten eines visuellen Musters, das auf dem Moiré-Effekt beruht, wird durch die räumliche Randomisierung der transparenten Flächen deutlich abgeschwächt. Mikroskopische Aufnahmen der (b) periodischen Anordnung und der (c) räumlich randomisierten transparenten Flächen. Angepasste Abbildung aus Ritzer *et al.*²¹¹

insbesondere für kommerzielle Glasprodukte zum einen durch die Berechnungen der CIELAB-Farbkoordinaten L^* (Helligkeit der Farbe), a^* (rot/grün Färbung) und b^* (blau/gelb Färbung) sowie durch den zusammenfassenden Farbwiedergabeindex R_a angegeben (vergleiche Kapitel 2.3).^{126,127,264} Die für die gezeigten transluzenten Flächen resultierenden Farbkoordinaten sind in **Abbildung 6.9a** dargestellt und zeigen insbesondere unterschiedliche positive b^* -Werte, was einer gelblichen Tönung entspricht und die zwischen 11,7 bis 4,7 schwanken. Dabei zeigt die transluzente Fläche mit quadratischer Form transparenter Flächen eine bereits gute Farbwiedergabe mit $a^* = -2,4$ und $b^* = 6,5$. Durch die zusätzliche zentrische Ablation von ITO wird die Farbwiedergabe auf $a^* = 1,1$ und $b^* = 4,7$ verbessert, und erreicht damit die etablierte Qualitätsanforderung bezüglich Farbneutralität des internationalen Architekturglasmarktes ($5 < a^* < 1$ und $5 < b^* < 5$).^{126,265} Die resultierenden Farbwiedergabeindexwerte sind in **Abbildung 6.9b** gezeigt, wobei die Qualitätsanforderung an Architekturglas für leicht gelb getöntes Glas bei $R_a > 95$ liegt. Während die beiden transluzenten Flächen mit kleinen kreisförmigen und linienförmigen transparenten Flächen dieses Ziel verfehlen, kann insbesondere für die quadratische Fläche mit ITO-Ablation ein Wert von 97,2 erreicht werden und

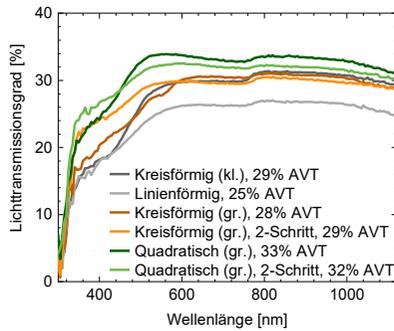


Abbildung 6.8. Transmissionsspektren transluzenter Perowskit-Solarmodule mit den zuvor eingeführten Formen transparenter Flächen. Übersetzte Abbildung aus Ritzer *et al.*²¹¹

zeigt damit nochmal die Eignung für architektonische Anwendungen. Zuletzt wird die Streuung und Verzerrung beim Blick durch die transluzenten Flächen anhand des Verhältnisses der diffusen ($> 3,8^\circ$ Abweichung vom Einfallswinkel) und der gesamten Transmission der lichtdurchlässigen Fläche, hier Streuungsanteil D_T genannt, quantitativ bewertet. Wie in **Abbildung 6.9c** dargestellt, weist dabei die transluzente Fläche mit kleinen kreisförmigen transparenten Bereichen den höchsten Streuungsanteil mit $D_T \approx 16\%$ auf, was auf das hohe Verhältnis von

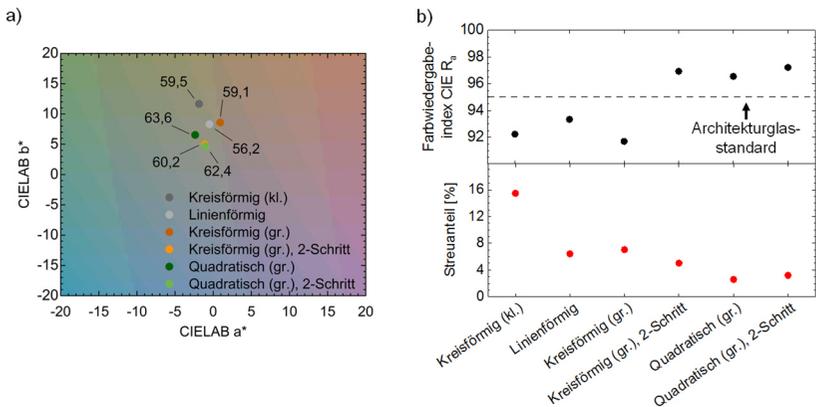


Abbildung 6.9. Quantitative Charakterisierung der optischen Eigenschaften transluzenter Perowskit-Solarmodule. (a) CIELAB-Farbraum-Koordinaten a^* und b^* der gemessenen Transmissionsspektren der hergestellten transluzenten Flächen. Die wahrgenommene Helligkeit L^* wird durch eingefügte Zahlen dargestellt. (b) Farbwiedergabeindex R_a (oben) und Streuanteil des transmittierten Lichts D_T (unten) von lichtdurchlässigen Flächen. Übersetzte und angepasste Abbildung aus Ritzer *et al.*²¹¹

Kraterrandfläche zu defektfreier, transparenter zentrischer Fläche zurückzuführen ist. Im Gegensatz dazu zeigen die anderen Formen erheblich geringere Streuung, wobei die quadratischen transparenten Flächen mit nur $D_T \approx 3\%$ erneut die besten optischen Eigenschaften aufweisen. Eine tabellarische Übersicht aller optischen Messwerte der transluzenten Flächen ist in Tabelle 8.10 des Anhangs gegeben.

An dieser Stelle wird darauf hingewiesen, dass die gezeigten Ergebnisse für unverkapselte Perowskit-PV gelten. Während eine PV-übliche Verkapselung mit einem weiteren Glassubstrat nur minimale Unterschiede in AVT und Färbung hervorrufen sollte und entsprechend erwartet wird, dass weiterhin die Qualitätsanforderung für architektonische Glasprodukte erfüllt sein wird, gibt es für Perowskit-Verkapselungen zusätzliche Anforderungen. Infolge der gesetzlichen Vorschriften ist die Minimierung möglicher Bleileckagen von Perowskit-PV, insbesondere für Systeme in unmittelbarer Nähe zum Menschen wie BIPV, von großer Bedeutung.²⁶⁶ Die bisher entwickelten Lösungen lassen sich in physikalische Barrieren, die das Eindringen oder Austreten von Wasser und Sauerstoff verhindern, und Schichten mit Chemisorption, die Blei im freien Zustand chemisch absorbieren und binden, unterteilen. Für beide Kategorien gibt es jeweils technische Lösungen in Form einer zusätzlichen Beschichtung auf/unter dem funktionalen Schichtstapel (z.B. selbstheilendes Epoxidharz²⁶⁷, Kationenaustauschharz²⁶⁸) sowie in Form einer in den Schichtstapel integrierten Schicht (z.B. Bleisulfathülle⁷⁶, Blei-Chelatierungsschicht⁷⁵). Da diese Strategien entwickelt wurden, um auch für die transparente Vorderseite von Perowskit-Photovoltaik geeignet zu sein, zeigen optimierte Ansätze nur minimale Transmissionsverluste.²⁶⁹ Entsprechend ist zu erwarten, dass ihre Anwendung die Transmission und den Farbeindruck von transluzenten Bauelementen nur unwesentlich beeinträchtigt, während insbesondere interne Verkapselungs- oder Chemisorptionsschichten ebenfalls mit dem entwickelten Laserstrukturierungsverfahren kompatibel sind.

6.4 Aufskalierung zu transluzenten Perowskit-Solarmodulen

Neben der Sicherstellung eines geeigneten optischen Eindrucks größerer transluzenter Flächen ist zu gewährleisten, dass auch für transluzente Perowskit-Solarmodule die elektrische Leistung nicht überproportional gegenüber steigendem AVT abnimmt. Dafür wird die photovoltaisch aktive Fläche um den Faktor 40 von Solarzellen mit $0,105 \text{ cm}^2$ zu verschalteten Solarmodulen mit 4 cm^2 Aperturfläche aufskaliert. Die Solarmodule bestehen dabei aus 5 monolithisch verschalteten Solarzellenstreifen ($\approx 20 \text{ mm} \times 4 \text{ mm}$), wobei die Serienschaltung auf den zuvor optimierten Laserstrukturierten P1, P2 und P3 Verschaltungslinien basiert.¹³⁴ Nach Herstellung des opaken Solarmoduls werden die transparenten Flächen mithilfe der für Solarzellen optimierten Laserstrukturierungsparameter fabriziert, wobei ein AVT von 30% angestrebt wird.

Das leistungsstärkste transluzente Perowskit-Solarmodul weist dabei einen PCE von 9,0% bei 32% AVT auf (**Abbildung 6.10a**), mit einem FF von 74%, einer V_{OC} von 5,5 V und einer $J_{SC, \text{subcell}}$ von $11,1 \text{ mA cm}^{-2}$ in Rückwärtsmessung. Betrachtet man die Vorwärtsmessung mit einem PCE von 8,3%, einem FF von 70%, einer V_{OC} von 5,4 V und einer $J_{SC, \text{subcell}}$ von $11,0 \text{ mA cm}^{-2}$, ist nur minimale J - V -Hysterese zu beobachten. Ebenso weist die gesamte transluzente Fläche des Solarmoduls

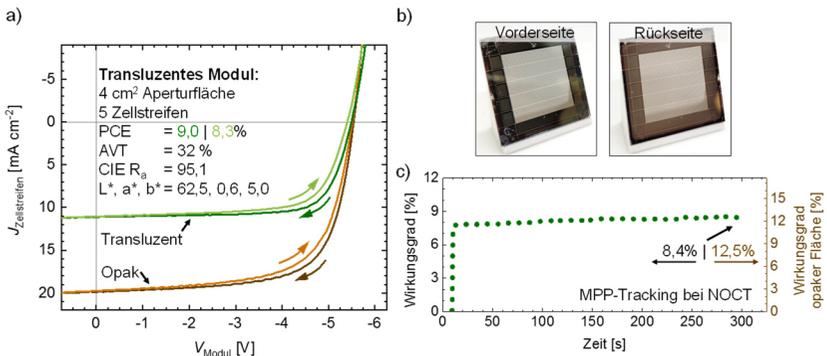


Abbildung 6.10. Elektrische und optische Charakterisierung des leistungsstärksten transluzenten Perowskit-Solarmoduls mit 4 cm^2 Aperturfläche und 5 monolithisch verschalteten Teilzellen. (a) Stromdichte-Spannungskennlinie des Champion-Solarmoduls vor (opak) und nach (transluzent) der Herstellung transparenter Flächen mittels Laserstrukturierung. (b) Vorder- und Rückseitenaufnahme des transluzenten Perowskit-Solarmoduls. (c) Kurzzeitstabilität des Wirkungsgrads unter kontinuierlicher Beleuchtung während des MPP-Trackings bei nominalen Betriebstemperaturen der Zelle (NOCT) ohne aktive Kühlung. Zum Vergleich sind der absolute Wirkungsgrad (links) sowie der Wirkungsgrad der opaken Fläche (rechts) dargestellt. Übersetzte und angepasste Abbildung aus Ritzer *et al.*²¹¹

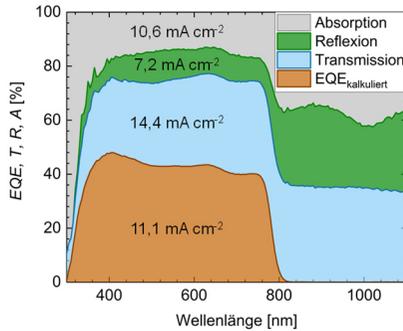


Abbildung 6.11. Konsistenzprüfung der Photonenbilanz des transluzenten Perowskit-Solarmoduls. Die dargestellten EQE-Spektren wurden mit einer Referenzsolarzelle gemessen, die in derselben Charge hergestellt und an die gemessene Stromdichte des transluzenten Solarmoduls angepasst wurde. Übersetzte und angepasste Abbildung aus Ritzer *et al.*²¹¹

sowohl einen homogenen optischen Eindruck als auch eine neutrale Farbwiedergabe mit einem R_a von 95,1 auf, wie in **Abbildung 6.10b** ersichtlich ist. Der leichte Anstieg des kurzzeitig stabilisierten PCE für MPP-Tracking bei nominaler Zellbetriebstemperatur, wie in **Abbildung 6.10c** dargestellt, ist vermutlich auf den Effekt des sogenannten „Light-Soaking“ zurückzuführen. Verglichen mit dem PCE des Solarmoduls vor Laserstrukturierung der transparenten Flächen von 15,2% (14,4%) behält das Solarmodul 59,2% (57,6%) des relativen PCE (siehe Tabelle 8.11 des Anhangs). Die Prozesseffizienz des Solarmoduls entspricht entsprechend 79% (76%) und unterstreicht die sowohl hohe Qualität des entwickelten Laserstrukturierungsprozesses, als auch die Machbarkeit der Aufskalierung zur Herstellung effizienter transluzenter Module. Die Konsistenzprüfung der Photonenbilanz mittels EQE, Transmissions- und Reflexionsmessung in **Abbildung 6.11** bestätigt zudem die Plausibilität der gemessenen optischen und elektrischen Eigenschaften.

6.5 Prozesstransfer zur Herstellung transluzenter Tandem-Photovoltaik

Neben dem Nachweis effizienter Aufskalierung transluzenter Perowskit-Photovoltaik ist es ebenso wichtig, das Potenzial dieser Technologie hinsichtlich höherer realisierbarer Wirkungsgrade aufzuzeigen, um wirtschaftliche Anreize zu verstärken. Grundsätzlich gehen dabei Perowskit-Solarzellen höherer Effizienz mit steigender Komplexität der Schichtstapelarchitektur, beispielsweise durch Verwendung zusätzlicher Passivierungsschichten, einher. Insbesondere die 2-Terminal-Perowskit-Perowskit-Tandem-Photovoltaik (2TPP-TPV) ist dabei durch die effizientere Nutzung eines breiten Bereichs des Sonnenspektrums von großem Interesse, umfasst aber zwangsläufig eine deutliche Steigerung der Anzahl funktionaler Schichten.^{70,229} Damit steigt wiederum das Risiko, dass die Verwendung von Laserstrukturierungsprozessen zu einer licht- oder wärmeinduzierten Degradation einzelner Schichten führt und so die Leistungsfähigkeit unmittelbar oder längerfristig beschleunigt abnimmt. Im Folgenden wird deshalb der Laserstrukturierungsprozess auf 2TPP-TPV übertragen und die resultierende Prozesseffizienz sowie die Wirkungsgrade der Tandem-Solarzellen/-module evaluiert. Zunächst werden 2TPP-Tandem-Solarzellen genutzt, die auf einer Schichtfolge aus IOH, 2PACz, einem rotationsbeschichteten Perowskit-Absorber mit einer Bandlücke von 1,78 eV ($\text{FA}_{0,8}\text{Cs}_{0,2}(\text{I}_{0,6}\text{Br}_{0,4})_3$), LiF, C_{60} , SnO_x , ITO, PEDOT:PSS, einem rotationsbeschichteten Perowskit-Absorber mit einer Bandlücke von 1,26 eV ($\text{Cs}_x(\text{FA}_{0,83}\text{MA}_{0,17})_{(1-x)}\text{Sn}_{0,5}\text{Pb}_{0,5}\text{I}_3$), PCBM, C_{60} , BCP und Au, wie in **Abbildung 6.12a** dargestellt, basieren.¹⁸⁹ Der photovoltaisch aktive Bereich wurde mit Hilfe einer Schattenmaske von 8,1 mm² Fläche definiert. Nach der Durchführung von Referenzmessungen wurden transparente Bereiche durch die Verwendung etablierter Laserstrukturierungslayouts mit angepassten Parametern hergestellt, um AVTs von 10% und 30% zu erreichen.

Die leistungsstärksten transluzenten 2TTP-Tandem-Solarzellen weisen PCEs von 17,7% bei 12% AVT bzw. 11,1% bei 31% AVT auf, mit FFs von 77% und 71%, V_{OC} von 1,95 V und 1,94 V und J_{SC} von 11,9 mA cm⁻² und 8,1 mA cm⁻² in Rückwärtsmessung. Betrachtet man die Vorwärtsmessung mit PCEs von 15,0% und 9,3%, FFs von 68% und 61%, V_{OC} von 1,94 V und 1,94 V und J_{SC} von 11,4 mA cm⁻² und 7,9 mA cm⁻², ist eine leichte *J-V*-Hysterese zu erkennen, wie in **Abbildung 6.12b** und **c** gezeigt. Diese ist jedoch auf den Schichtstapel selbst zurückzuführen, da die Hysterese bereits bei den Referenzmessungen (opak) vor Herstellung transluzenter Bereiche vorhanden ist. Hinsichtlich der optischen Eigenschaften demonstrieren beide transluzenten Tandem-Solarzellen einen homogenen Eindruck und eine ausgezeichnete Farbwiedergabe mit einem R_a von 95,1 und 95,5. Die Konsistenzprüfungen mittels Photonenbilanz sind in **Abbildung**

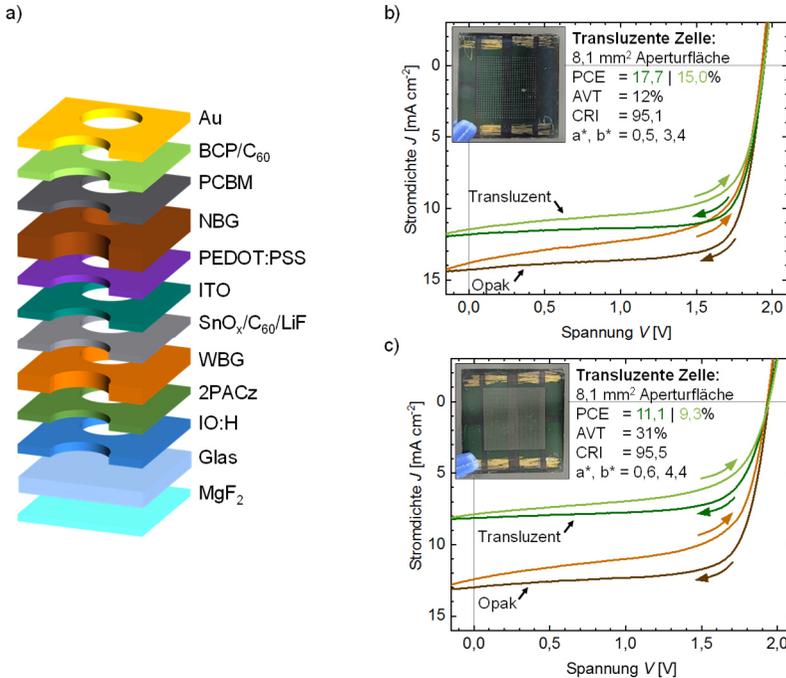


Abbildung 6.12. Transluzente Perowskit-Tandem-Photovoltaik. (a) Verwendete Schichtstapelsequenz für die Herstellung der ersten transluzenten 2-Terminal-Perowskit-Perowskit-Tandem-Solarzellen. Stromdichte-Spannungskennlinien der leistungsstärksten Tandem-Solarzellen mit 8,1 mm² Aperturfläche vor (opak) und nach (transluzent) der Herstellung von transparenten Flächen mit (b) 12% und (c) 31% Lichttransmissionsgrad. Die Aufnahmen zeigen die jeweilige Vorderseite und die grundlegenden optischen Eigenschaften der transluzenten Flächen. Übersetzte und angepasste Abbildung aus Ritzer *et al.*²¹¹

13 dargestellt und bestätigen die Plausibilität der gemessenen optischen und elektrischen Eigenschaften. Die Grundlage zur Bewertung der Prozesseffizienz ist wie zuvor neben dem jeweiligen AVT der Vergleich der PCEs vor und nach Laserstrukturierung transparenter Flächen. Die transluzenten Tandem-Solarzellen weisen dabei noch 86% (87%) und 60% (61%) PCE für Rückwärtsmessung (Vorwärtsmessung) auf (siehe Tabelle 8.12 des Anhangs). Die resultierenden Prozesseffizienzen von $\approx 79\%$ und $\approx 77\%$ demonstrieren die erfolgreiche Übertragung des entwickelten Laserstrukturierungsprozesses auf komplexere Tandem-Solarzellen bei gleichbleibend hoher optischer und elektrischer Qualität. Auch für transluzente 2TPP-TPV soll die Aufskalierung untersucht werden, wobei aufgrund der zeitintensiven Herstellung von 2TPP-TPV und der notwendigen

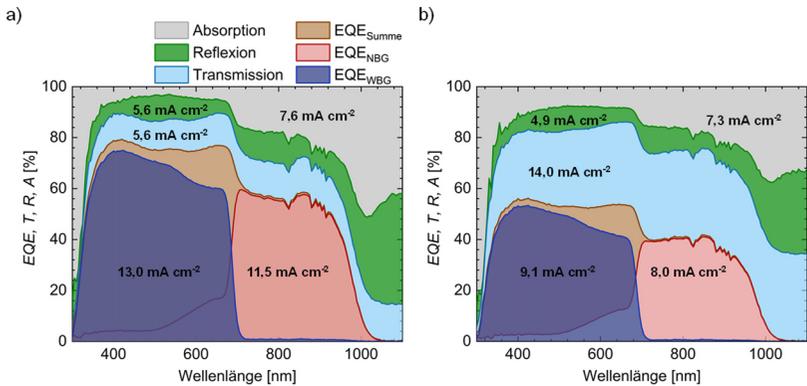


Abbildung 6.13. Konsistenzprüfung der Photonenbilanz der transluzenten 2-Terminal-Perowskit-Perowskit-Tandem-Solarzellen mit (a) 12% und (b) 31% Lichttransmissionsgrad. Übersetzte und angepasste Abbildung aus Ritzer *et al.*²¹¹

Einzelfertigung von Modulen der Umfang innerhalb dieser Arbeit auf die grundsätzliche Machbarkeit beschränkt wird. Dabei ist ein transluzentes 2TPP-Tandem-Solarmodul mit 12,25 cm² Aperturfläche, das ausschließlich mit skalierbaren Abscheidemethoden wie bspw. der Klingenbeschichtung, dem thermischen Verdampfen und der Kathodenerstäubung hergestellt ist, in **Abbildung 6.14a** (Tabelle 8.13 des Anhangs) präsentiert. Es weist dabei einen PCE von 10,3% bei 15% AVT auf, was einerseits die Machbarkeit unter Beweis stellt, andererseits deutlich aufzeigt, dass eine Veränderung der Abscheidemethoden auch immer eine Anpassung der Parameter der Laserstrukturierung für optimale Ergebnisse notwendig macht. **Abbildung 6.14b** zeigt wiederum die plausible Photonenbilanz auf.

Im Hinblick auf das anfängliche Ziel, einen simplen, industriell anwendbaren und reproduzierbaren Prozess für die Produktion zu entwickeln, beweist die Demonstration hochwertiger transluzenter Flächen sowohl rotationsbeschichteter Perowskit-Solarzellen, skalierbarer klingenbeschichteter Perowskit-Solarmodulen, sowie komplexer 2T-Tandem-PV die Robustheit des entwickelten Laserstrukturierungsprozesses. Der Prozess kann also auf eine Vielzahl unterschiedlicher Perowskit-Halbleiterschichten und Perowskit-PV-Architekturen angewendet werden, einschließlich solcher, die mit skalierbaren Methoden hergestellt werden. Neben der Feinanpassung an andere Bauelementarchitekturen muss der Laserstrukturierungsprozess jedoch auch Durchsatzraten aufweisen, die mit der Serienproduktion moderner PV-Fertigungsstätten kompatibel sind und typischerweise Produktionstaktzeiten für ein ≈ 1 m² Solarmodul im Minutenbereich erfordern. Angesichts der weiten Verbreitung der Laserstrukturierung in der

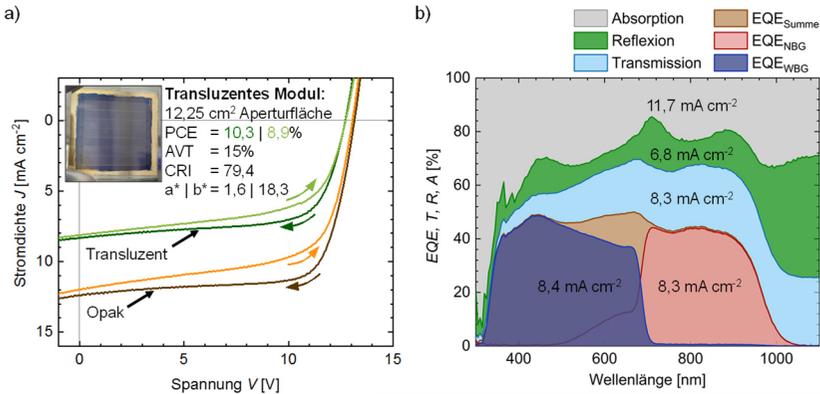


Abbildung 6.14. Transluzentes Perowskit-Tandem-Solarmodul. (a) Stromdichte-Spannungskennlinie eines transluzenten 2-Terminal-Perowskit-Perowskit-Tandem-Solarmoduls mit 12,25 cm² Aperturfläche, vor (opak) und nach (transluzent) der Herstellung transparenter Flächen mit 12% Lichttransmissionsgrad. (b) Konsistenzprüfung der Photonenbilanz der transluzenten 2-Terminal-Perowskit-Perowskit-Tandem-Solarmoduls. Die EQE-Spektren der oberen und unteren Teilzelle wurden mit einer Referenz-Tandem-Solarzelle gemessen und an die gemessene Stromdichte des transluzenten Tandem-Solarmoduls angepasst. Übersetzte und angepasste Abbildung aus Ritzer *et al.*²¹¹

heutigen industriellen Fertigung von Dünnschicht-Solarmodulen können verschiedene Strategien wie beispielsweise (1) eine hochfrequente gepulste Laserquelle (10 MHz) anstelle der in unserem Labormaßstab verwendeten Laserpulsrate von 10 kHz, oder (2) die parallele Anwendung mehrerer Galvanometerscanner²⁷⁰ genutzt werden, um den Durchsatz des Laserstrukturierungsprozesses um bis zu 3-4 Größenordnungen zu steigern. Durch die Anwendung dieser Strategien zur Verbesserung der Instrumentierung in Kombination mit einer weiteren Prozessoptimierung bezüglich der Herstellungszeit (z.B. Pulsüberlappung, Linienüberlappung) kann der Prozessdurchsatz der Laserstrukturierung von transluzenten Perowskit-Solarmodulen mit m²-Dimension in den Minutenbereich gesenkt werden. Die Herstellungszeit kann dabei transluzenter Flächen einfach abgeschätzt werden:

$$r_{tr} = \frac{AVT}{\eta_{tr} A_{ta}} \frac{l_{ta}}{v_l s} \tag{2.67}$$

Dabei entspricht r_{tr} der Herstellungsrate transluzenter Fläche, AVT dem angestrebten Lichttransmissionsgrad, η_{tr} der Transmissionseffizienz transparenter Flächen, A_{ta} der einzelnen transparenten Fläche, l_{ta} der Laserstrukturierungsweglänge für eine einzelne transparente Fläche, v_l der

Laserstrukturierungsgeschwindigkeit und s der Anzahl der parallel genutzten Scanner. Bezüglich der Optimierung des Laserstrukturierungslayouts ist die Proportionalität zwischen l_{a} und der Überlappung nebeneinanderliegender Strukturierungslinien l_{o} , sowie die Proportionalität zwischen v_{l} und der Laserpulsrate r_{l} , dem Ablationskraterdurchmesser d_{a} und der Überlappung nebeneinanderliegender Ablationskrater d_{o} entscheidend. Werden statt der bisherigen Laserstrukturierungsparameter die Parameter eines möglichen Lasersetups der Serienfertigung eingesetzt (siehe Tabelle 8.14 des Anhangs), wird die Herstellungszeit für transluzente Bereiche mit 30% AVT von derzeit $\approx 29 \text{ s cm}^{-2}$ ($= 4900 \text{ min m}^{-2}$) auf $\approx 2 \text{ min m}^{-2}$ reduziert.

6.6 Prinzip und Demonstration von Transmissionsgradienten

Während die Demonstration guter elektrischer und optischer Eigenschaften transluzenter Perowskit-Solarzellen, effizienter Aufskalierung zu Perowskit-Solarmodulen und einfacher Übertragbarkeit auf komplexere Tandem-PV auf das grundsätzliche Erreichen von Industriestandards und Wirtschaftlichkeit abgezielt haben, soll im Folgenden ein neues Konzept für bessere Ästhetik und Individualisierung von BIPV vorgestellt werden. In dieser Hinsicht bietet die Flexibilität der Laserstrukturierung neben der Herstellung unterschiedlicher transparenter Flächen auf verschiedenen Dünnschichtstapeln auch die Möglichkeit, die räumliche Verteilung der transparenten Flächen beliebig zu verändern. Durch die kontinuierliche Veränderung der Verteilungsdichte über die Substratfläche sollen Lichttransmissionsgradienten erzeugt werden, sodass gilt:

$$\nabla AVT \neq 0 \quad (2.68)$$

Zur Demonstration werden die zuvor vorgestellten Solarmodule mit 4 cm² Aperturfläche verwendet. Für die Generierung der Laserstrukturierungslayouts mit variabler Verteilungsdichte der transparenten Flächen wird ein selbsterstelltes MATLAB-Skript (MathWorks, USA) genutzt. Als Konzeptnachweis für beliebige und komplexe Transmissionsgradienten werden drei verschiedene Layouts vorgestellt, die die Machbarkeit und Effizienz demonstrieren. Dabei stellt das erste Layout mit einem Transmissionsgradienten, der parallel zu den Verbindungslinien und damit horizontal verläuft, die grundlegende Variante dar (siehe **Abbildung 6.15a**, oben). Der Gradient des zweiten Layouts (siehe **Abbildung 6.15b**, oben) verläuft orthogonal zu den Verbindungslinien (vertikal) und erfordert eine transmissionsgradabhängige Anpassung der Solarzellenbreiten, um Unterschiede des induzierten Stroms der seriell verschalteten Solarzellenstreifen und daraus resultierende PCE-Verluste zu vermeiden. Das dritte Layout weist einen radialen Gradienten auf (siehe **Abbildung 6.15c**, oben), wobei der Ursprung in der Aperturfläche des Solarmoduls zentriert ist, und erfordert ebenfalls eine Anpassung der Solarzellenbreiten. Alle Solarzellenbreitenanpassungen werden durch Kalkulation der integrierten Ströme einer Solarzelle nach der Laserstrukturierung realisiert. Die resultierenden Lichttransmissionsgrade wurden für zwei Modulbereiche mit der größten zu erwartenden Differenz (z.B. links und rechts für Layout 1) gemessen.

Fotos der leistungsstärksten transluzenten Perowskit-Solarmodule mit Lichttransmissionsgradienten sind in **Abbildung 6.15** (je unten) dargestellt und zeigen ein homogenes und defektfreies Laserstrukturierungsergebnis, wobei der optische Effekt der Lichttransmissionsgradienten deutlich zu sehen ist. Darüber

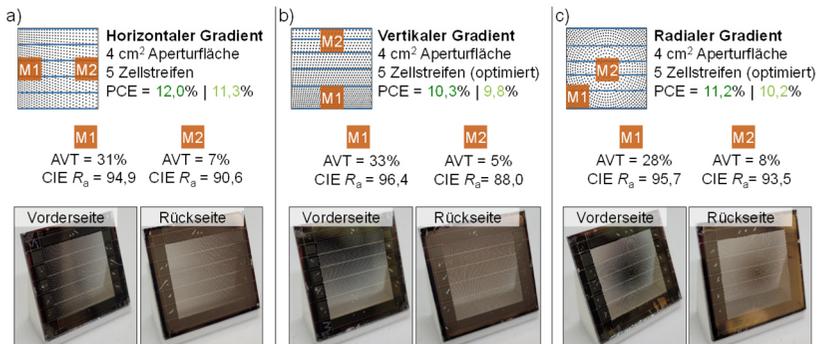


Abbildung 6.15. Konzept, Umsetzung und Charakterisierung von Transmissionsgradienten in transluzenten Perowskit-Solarmodulen mit 4 cm² Aperturfläche und 5 monolithisch verschalteten Teilzellen. Layouts der Laserstrukturierung (jeweils oben links) für transparente Flächen mit unterschiedlichen räumlichen Verteilungen und angepassten Verschaltungslinien basierend auf dem Konzept von (a) horizontalen, (b) vertikalen und (c) radialen Transmissionsgradienten. Grundlegende elektrische und optische Eigenschaften (jeweils oben rechts) von transluzenten Flächen der leistungsstärksten Solarmodule mit Transmissionsgradienten. Rück- und Vorderseite (jeweils unten links und rechts) der transluzenten Solarmodule. Übersetzte und angepasste Abbildung aus Ritzer *et al.*²¹¹

hinaus wurden bei den gezeigten Solarmodulen AVT-Gradienten von 31% auf 7% für die horizontale, von 33% auf 5% für die vertikale und von 28% auf 8% für die radiale Ausführung erreicht (siehe Tabelle 8.15 des Anhangs), was einer absoluten Änderung des Lichttransmissionsgrades von bis zu $\approx 7 \text{ \% cm}^{-1}$ entspricht. Zu den optischen Eigenschaften ist anzumerken, dass einige R_a -Werte unter dem gewünschten Schwellenwert von 95 liegen, was eine weitere Optimierung der Laserparameter zum Erreichen des Industriestandards für Architekturglas notwendig macht. Die transluzenten Perowskit-Solarmodule zeigen eine gute elektrische Leistung mit PCEs von 12,0% (11,3%) für horizontale, 10,3% (9,8%) für vertikale und 11,2% (10,2%) für radiale Gradienten in Rückwärtsmessungen (Vorwärts-). Ebenso bestätigen MPP-Messungen unter NOCT-Bedingungen über 300 s Dauer die Kurzzeitstabilität der Wirkungsgrade (siehe **Abbildung 8.3** des Anhangs).

Darüber hinaus zeigt der Vergleich der einzelnen normalisierten Kurzschlussströme der Solarzellenstreifen in **Abbildung 6.16** auf, dass es zu deutlichen Stromunterschieden bei fehlender Anpassung der Zellbreiten kommen kann. Für den horizontalen Gradienten ist dabei keine Anpassung notwendig und die resultierenden Ströme nehmen Werte innerhalb eines akzeptablen Toleranzbereichs von 5-10%_{rel} unter dem Höchstwert an. Dagegen ist die Anpassung der Solarzellenbreite für den vertikalen Gradienten essenziell, wie der

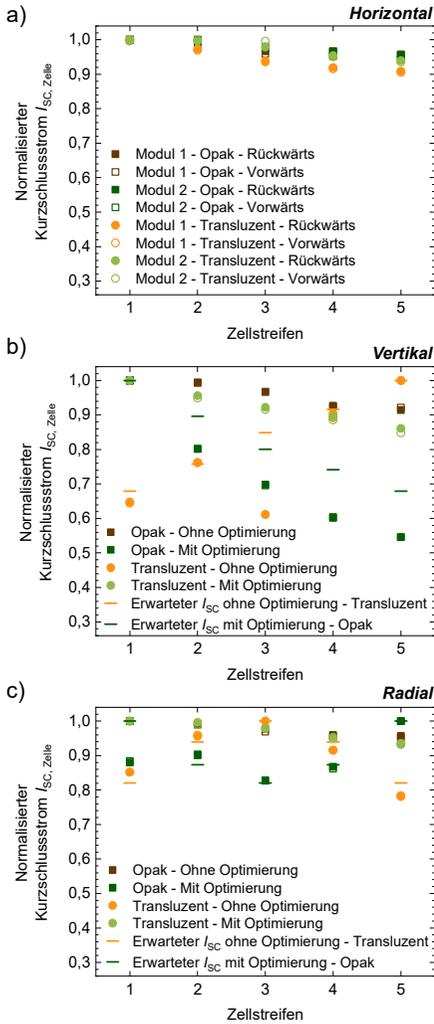


Abbildung 6.16. Vergleich der normalisierten Zellstreifenkurzschlussströme vor (opak) und nach (transluzent) der Herstellung von Transmissionsgradienten und ohne und mit Anpassung der Zellstreifenbreite zur Stromangleichung der Teilzellen in den transluzenten Perowskit-Solarmodulen. a) Kurzschlussstromvergleich für horizontale Transmissionsgradienten. b) Kurzschlussstromvergleich für vertikale Transmissionsgradienten mit und ohne Zellstreifenbreitenanpassung. (c) Kurzschlussstromvergleich für radiale Transmissionsgradienten mit und ohne Zellstreifenbreitenanpassung. Übersetzte und angepasste Abbildung aus Ritzer *et al.*²¹¹

maximale Unterschied der Kurzschlussströme von 35%_{rel} demonstriert (**Abbildung 6.16b**). Durch die Kalkulation des zu erwartenden Solarzellenstromunterschieds und der entsprechenden Anpassung der Solarzellenbreite kann dieser Unterschied auf ca. 14%_{rel} reduziert werden. Es wird erwartet, dass durch weitere Optimierungen des Laserstrukturierungsprozesses sowie der Parameter der Kalkulation des zu erwartenden Stromunterschieds die Anpassung noch besser gelingen kann. Der radiale Gradient führt ohne Anpassung zu einem relativen Unterschied von bis zu 22%_{rel} (siehe **Abbildung 6.16c**), wobei dieser durch die Solarzellenbreitenanpassung sehr erfolgreich auf nur 6%_{rel} minimiert wird.

6.7 Zusammenfassung und Diskussion

In diesem Kapitel wurde der Nutzen und Bedarf an (semi-)transparenter Photovoltaik für gebäudeintegrierte Anwendungen detailliert dargelegt und anschließend effiziente, farbneutrale und skalierbare transluzente Perowskit-(Tandem-)Photovoltaik demonstriert.

Durch den Einsatz des maßgeschneiderten Laserstrukturierungssystems konnten dabei reproduzierbar defektfreie transparente Flächen auf opaken Perowskit-Solarzellen mit minimalen 25 μm Durchmesser hergestellt werden. Der Einfluss der Laserstrukturierung auf Parallel- oder Serienwiderstand ist dabei für Lichttransmissionsgrade bis 40% der transluzenten Perowskit-Solarzellen vernachlässigbar, wodurch sich ein breiter Anwendungsbereich dieser Technologie ergibt. Eine weitere Steigerung der Lichttransmissionsgrade wird dabei als nicht sinnvoll erachtet, da die Entfernung eines zu großen Anteils der Rückelektrode den Serienwiderstand überproportional ansteigen lässt, zusätzliche Defekte (Späne) auftreten können, und der Wirkungsgrad deutlich zurückgeht. Ausgehend von Referenzsolarzellen mit ca. 19% Wirkungsgrad wurden für transluzente Perowskit-Solarzellen vielversprechende 16,2%, 13,9% und 8,1% PCEs bei AVTs von 8%, 15% und 38% erreicht, wobei bei Kurzzeitstabilitätsmessungen der Wirkungsgrade keine direkte oder beschleunigte Degradation ersichtlich war.

Werden größere Flächen betrachtet, stellt sich durch die Vielzahl mikroskopischer transparenter Flächen bereits ab 0,5 m Entfernung ein homogener optischer Eindruck ein. Dabei konnte durch rückstandsarme Laserstrukturierung sowohl eine sehr neutrale Farbwiedergabe ($R_a > 95$) als auch geringe Streuung ($D_T \approx 3\%$) für den Blick durch die transluzenten Flächen demonstriert werden. Durch die exzellenten optischen Eigenschaften wird die Verwendung als Architekturglas möglich. Neben der genaueren optischen Charakterisierung wurde ebenfalls die Auswirkung der Aufskalierung von transluzenten Solarzellen zu Solarmodulen mit einer Aperturfläche von 4 cm^2 untersucht. Während das leistungsstärkste transluzente Perowskit-Solarmodul einen Wirkungsgrad von 9% (8,4% sPCE) erreichte, beweist insbesondere das hohe Verhältnis von Lichttransmissionsgrad zur Verringerung aktiver Fläche nach Herstellung der transparenten Flächen, was der hierfür definierten Prozesseffizienz der Laserstrukturierung entspricht, von 79%, dass der Laserstrukturierungsprozess skalierbar ist.

Neben der optischen Eignung und der effizienten Skalierbarkeit wurde zudem untersucht, ob der Laserstrukturierungsprozess auch mit Perowskit-Perowskit-Tandem-Photovoltaik kompatibel ist, welche aufgrund der höheren Wirkungsgrade großes Potential besitzt, aber implizit mit einer deutlichen Komplexitätssteigerung des Schichtstapels einhergeht. Dabei konnten nach Anpassung der

Laserstrukturierungsparameter Wirkungsgrade von 17,7% bei 12% AVT bzw. 11,1% bei 31% AVT und ähnlicher hoher optischer Qualität erzielt werden. Die Prozesseffizienz von 79% zeigt dabei auf, dass die Wirkungsgrade durch bessere Ausgangssolarzellen oder –solarmodule noch deutlich gesteigert werden können.

Zuletzt wurde eine weitere Möglichkeit der Verbesserung der Ästhetik von BIPV-Elementen durch die kontinuierliche Verteilungsänderung transparenter Flächen konzeptionell vorgestellt und die effiziente Umsetzung demonstriert. Dabei konnten in drei exemplarischen Layouts Lichttransmissionsgradienten von bis zu 7 \% cm^{-1} gezeigt und zudem Wirkungsgradverluste durch Anpassung der Dimensionen einzelner Solarzellen minimiert werden.

Zusammenfassend eignet sich die entwickelte transluzente Perowskit-Photovoltaik aufgrund der neutralen Farbwiedergabe, des guten optischen Erscheinungsbilds, des möglichen AVT-Bereichs und der vergleichsweise hohen Wirkungsgrade insbesondere für Anwendungen in Glasfassaden. Während eine weitere Optimierung der Laserstrukturierung und die Nutzung effizienterer Perowskit-PV als Ausgangsbasis die wirtschaftlichen Anreize weiter erhöhen wird, bietet die mögliche Implementierung beliebiger Lichttransmissionsgradienten einen wichtigen Aspekt für die Individualisierung und Ästhetik der Glasfassaden. Dagegen sind für Anwendungen mit höherer AVT-Anforderung entweder wellenlängenselektive transparente PV zu bevorzugen, falls eine neutrale Farbwiedergabe gewünscht ist, oder nicht-wellenlängenselektive, semitransparente PV, wenn eine Tönung vorhanden sein darf. Durch die generell niedrigeren Wirkungsgrade dieser Technologien ist ein Wettbewerbsvorteil transluzenter Perowskit-Photovoltaik im niedrigen AVT-Bereich möglich.

7 Zusammenfassung, Diskussion und Ausblick

Zum Abschluss dieser Arbeit werden die wichtigsten Ergebnisse und Erkenntnisse in Kürze zusammengefasst. Darauf aufbauend soll der Fortschritt der technologischen Reife der Perowskit-Photovoltaik sowie die Relevanz der entwickelten Prozesse und Bauteile für die Industrie diskutiert werden. Zuletzt wird im Ausblick auf Verbesserungsmöglichkeiten der eigenen Arbeit sowie nach eigener Auffassung sinnvolle Folgeprojekte eingegangen.

7.1 Zusammenfassung und Diskussion

Angetrieben durch die komplexen Herausforderungen der modernen Energiepolitik, einen immer größeren Energiebedarf durch sichere, ökologisch nachhaltige und zugleich günstige Energieversorgung zu decken, wurde im Rahmen dieser Arbeit die Steigerung der technologischen Reife von Perowskit-Photovoltaik bezüglich der drei fundamentalen Ziele erreicht:

1. Um die Problematik der bisher verlustreichen Aufskalierung von Perowskit-Photovoltaik anzugehen, stand die Entwicklung einer effizienten Modulverschaltung basierend auf industriell anwendbaren Herstellungsverfahren und Komponenten im Vordergrund, sodass der Prozesstransfer in Fertigungsstraßen ohne Komplexitätssteigerungen oder wirtschaftliche Hürden gelingen kann.
2. Des Weiteren sollte geprüft werden, inwiefern eine effiziente Modulverschaltung auch für unterschiedliche Tandem-Konfigurationen mit deutlich komplexeren Schichtstapeln gelingt, damit die wesentlich höheren Wirkungsgrade der Tandem-Photovoltaik erschlossen werden.
3. Um weitere Gebäudeflächen wie Fassaden für die Photovoltaik zu erschließen, sollte zudem die Umsetzbarkeit transluzenter Perowskit-Photovoltaik mittels präziser Laserstrukturierung evaluiert und darauf aufbauend innovative und ästhetische gebäudeintegrierte Perowskit-PV-Lösungen konzipiert und umgesetzt werden.

Für die Entwicklung eines effizienten Aufskalierungsprozesses wurde ein Ansatz mittels vollständig dampfbasierter Herstellung der Schichten und monolithischer Verschaltung mittels neu konzipiertem und industriell anwendbarem Laserstrukturierungssystems gewählt. Die Durchführung von Laserparameterstudien ermöglichte die Strukturierung von Verschaltungslinien mit hohen Parallel- und niedrigen Kontaktwiderständen sowie minimaler lateraler Breite von nur 140 μm . Darauf aufbauend wurde das Modullayout hinsichtlich minimaler Aufskalierungsverluste mittels theoretischem Modell optimiert und die gleichbleibende hohe Qualität der hergestellten Schichten und Verschaltungslinien auch für größere Flächen durch optische und opto-elektronische Messverfahren (PL, LBIC) validiert. Durch diese Optimierung gelang die Herstellung effizienter Perowskit-Solarmodule mit Wirkungsgraden bis 18,0% für 4 cm^2 und 16,6% für 51 cm^2 Aperturfläche, was einer Aufskalierung der Fläche um einen Faktor von bis zu 500 entspricht. Dabei wurden erstmals sehr geringe Aufskalierungsverluste von nur 3,1 %_{rel} dec^{-1} für Perowskit-PV erreicht. Durch den Vergleich mit etablierten PV-Technologien (Silizium $\sim 3,9$ %_{rel} dec^{-1})^{71,271} wurde die effiziente Aufskalierbarkeit mittels vollständig-dampfbasiertem Ansatz bewiesen.

Die gewonnenen Erkenntnisse wurden genutzt, um die effiziente Aufskalierung von semitransparenter Perowskit-PV für Anwendungen in 4-Terminal-Tandem-Architekturen sowie von 2-Terminal-Perowskit-Perowskit-Tandem-PV zu entwickeln. Im Gegensatz zum vorherigen Aufskalierungsansatz, wurden hierfür ebenfalls lösungsbasierte Schichtherstellungsmethoden verwendet, wobei insbesondere für die 2-Terminal-Tandem-Solarmodule die vollständige Skalierbarkeit eingesetzter Methoden sichergestellt wurde. Durch erneute Laserparameterstudien der Verschaltungslinien, der Anpassung der im Schichtstapel eingesetzten Materialien und Schichtdicken sowie der individuellen Optimierung der Modullayouts konnte die Aufskalierung für beide Ansätze erfolgreich demonstriert werden. Die hergestellten semitransparenten Module erzielten Wirkungsgrade von bis zu 15,3% für 4 cm² und 14,5% für 11 cm² Aperturfläche, wobei das mechanische Stapeln mit einem CIGS-Modul einen Wirkungsgrad von 23,1% ergäbe. Zudem konnten die weltweit ersten 2-Terminal-Perowskit-Perowskit-Tandem-Solarmodule demonstriert werden, welche mit 22,5% und 19,3% für 2,6 cm² und 12,5 cm² Aperturfläche beeindruckende Wirkungsgrade erreichten, welche noch immer nur geringen Abstand zum inzwischen aktuellen Weltrekord von 21,6% für 14,3 cm² aufweisen.²¹⁰ Die erhöhten Aufskalierungsverluste von 7,0 %_{rel} dec⁻¹ bis 9,8 %_{rel} dec⁻¹ sind dabei auf die lösungsbasierten bzw. insbesondere die skalierbaren lösungsbasierten Schichtherstellungsmethoden zurückzuführen, sodass die Schichtherstellung weiterer zukünftiger Optimierungen bedarf.

Zuletzt wurde erfolgreich die Entwicklung transluzenter Perowskit-Photovoltaik für gebäudeintegrierte PV-Anwendungen demonstriert. Mittels Laserstrukturierung konnten defektfreie transparente Flächen erzeugt werden, die bereits aus einer Betrachtungsdistanz von 0,5 m einen homogenen Eindruck vermitteln und sich durch neutrale Farbwiedergabe sowie minimale Streuung als Architekturglas eignen. Die transluzenten Perowskit-Solarzellen erzielten vielversprechende Wirkungsgrade von bis zu 16,2% bei Lichttransmissionsgraden bis 38%, was sich erfolgreich auf deutlich komplexere Tandem-PV und größere Flächen ohne Einschränkungen übertragen ließ. So wurden Wirkungsgrade von bis zu 17,7% und 11,1% bei Lichttransmissionsgraden von 11% und 31% auf Flächen bis zu 12 cm² erreicht. Diese bisher einzigartige Kombination aus hohen Wirkungsgraden, neutraler Farbwiedergabe und geringer Streuung prädestiniert transluzente Perowskit-Photovoltaik für den Einsatz in Glasfassaden mit gewünschten Lichttransmissionsgraden bis 40%. Darüber hinaus ermöglicht die Entwicklung des neuen Konzepts der Transmissionsgradienten eine verbesserte Ästhetik von BIPV durch neue architektonische Freiheiten und Individualisierungsmöglichkeiten.

Zusammenfassend stellen die präsentierten Ergebnisse einen bedeutenden Fortschritt hinsichtlich der Skalierbarkeit von Perowskit- und Perowskit-Tandem-

Photovoltaik sowie deren Anwendungsmöglichkeiten in gebäudeintegrierten Photovoltaiklösungen dar. Die vollständige Herstellung mittels dampfbasierter Beschichtungsverfahren, welche bereits für andere Industrien wie der OLED-Herstellung etabliert sind,²⁷² und der Laserstrukturierung mittels kostengünstiger Nanosekundenlaser, welche in der industriellen Herstellung etablierter Dünnschichtphotovoltaik Einsatz finden,²⁷⁰ hat sich als idealer Ansatz für die effiziente Aufskalierung der Perowskit-Photovoltaik gezeigt. Der Transfer auf Perowskit-Tandem-Photovoltaik hat bewiesen, dass Aufskalierung und die Herstellung effizienter Tandem-Solarmodule auch mittels lösungsbasierter Beschichtungsverfahren gelingt, jedoch insbesondere für skalierbare Verfahren noch Herausforderungen und negative Auswirkungen auf den Wirkungsgrad besitzt. Zuletzt demonstriert die transluzente Perowskit-Photovoltaik das Potential von kostengünstiger effizienter Dünnschicht-Photovoltaik, auch in dichtbesiedelten Ländern wie Deutschland weitere Flächen durch BIPV-Lösungen zu erschließen,⁹⁸ wobei durch die neu eingeführten Transmissionsgradienten die Ästhetik von BIPV verbessert und damit die Akzeptanz der Bevölkerung voraussichtlich erhöht wird. Sollten die verbleibenden Hürden der Perowskit-Absorber durch die weitere Steigerung der Stabilität und die Verringerung der Toxizität ebenfalls überwunden werden, wird Perowskit-Photovoltaik somit entscheidend zur Bewältigung der Herausforderungen der Energieversorgung beitragen.

7.2 Ausblick

Während im Rahmen dieser Arbeit beeindruckende Fortschritte hinsichtlich der effizienten Aufskalierung und Modulverschaltung von Perowskit-(Tandem)-PV präsentiert und neue Anwendungsmöglichkeiten für die BIPV demonstriert wurden, soll im Folgenden ein Ausblick auf weitere Verbesserungsmöglichkeiten und vielversprechende Anknüpfungspunkte für zukünftige Forschungsprojekte gegeben werden.

Die in Kapitel 3.2.3.2 erfolgte Aufskalierung von kleinen Solarzellen (10 mm^2) zu großen Modulen (51 cm^2) mit monolithischer Verschaltung beweist das Überwinden aller wesentlichen technologischen Hürden für die Aufskalierung von Perowskit-Photovoltaik mittels dampfbasierter Beschichtungsmethoden. Bei der zusätzlichen Betrachtung von lösungsbasierten Beschichtungsmethoden erscheint dagegen die weitere Aufskalierung auf größere Flächen sinnvoll, um eine weitere Steigerung der technologischen Reife und einen leichteren Transfer in die Industrie zu erreichen. Denn während die weitere Aufskalierung für dampfbasierte Verfahren lediglich eine Anpassung der Größe der Beschichtungskammern und Verdampfungstiegel erfordern, die keine substantiellen Änderungen der Prozessbedingungen nach sich ziehen, führt diese für lösungsbasierte Beschichtungsmethoden zu einer weiter zunehmenden Komplexität des Trocknungsprozesses.^{273,274} Das entwickelte Laserstrukturierungssystem ist bereits für Größen bis etwa 250 cm^2 ausgelegt. Limitierungen der Fläche resultieren dagegen aus den vorhandenen lösungsbasierten Beschichtungsmaschinen, sodass für eine weitere Aufskalierung zunächst Anpassungen oder Erweiterungen dieser Maschinen erforderlich sind. Im Zusammenhang damit sollte auch für lösungsprozessierte Perowskit-Absorber eine Verringerung der Aufskalierungsverluste angestrebt werden. Ein vielversprechender Ansatz stellt dabei die Schlitzdüsenbeschichtung dar, die in Kombination mit starker Gasströmung eine deutlich schnellere und homogenere Trocknung ermöglicht und dadurch ideale Morphologien der mikrokristallinen Perowskit-Dünnschichten erzeugen kann.^{275,276} Erste Experimente zeigen bereits beeindruckende Wirkungsgrade und geringe Aufskalierungsverluste.²⁷⁷ Darüber hinaus könnten weitere funktionale Schichten, die bisher gedampft wurden, mittels Schlitzdüsenbeschichtung lösungsbasiert hergestellt werden (z.B. 2PACz als ETL oder PCBM als HTL),¹⁸⁹ wodurch weitere Durchsatz- und Kostenvorteile für die industrielle Herstellung entstehen würden.

Weiterhin machen die vielversprechenden Ergebnisse bezüglich hocheffizienter Perowskit-Tandem-PV in Kapitel 5 weitere Arbeiten erstrebenswert. Hierbei ist das physische Stapeln der semitransparenten Perowskit-Solarmodule mit CIGS oder Modulen anderer PV-Technologien sinnvoll, um die theoretischen Ergebnisse zu bestätigen, weitere Wirkungsgradsteigerungen durch den Einsatz lichtkoppelnder

Materialien zu erreichen und Leistungsdaten beim Einsatz im Freien zu sammeln. Ebenso sollte die Kombination der 2-Terminal-Perowskit-Tandem-Photovoltaik mit anderen etablierten Dünnschicht-Photovoltaik-Technologien erprobt werden. Die dabei notwendige gemeinsame monolithische Verschaltung könnte aufgrund der abweichenden Materialeigenschaften komplexere Anforderungen aufweisen. Insbesondere für CIGS könnte aufgrund des bekannten Aufschmelzens und Bildung von Kurzschlüssen bei Verwendung langpulsiger Laser ein hybrider mechanisch-optischer Strukturierungsprozess notwendig sein.²⁵³

Während in Kapitel 5.3.1 bereits gezeigt wurde, dass die Laserstrukturierung anderer metallischer Rückkontaktschichten wie Silber oder Kupfer ebenfalls sehr gut gelingt, wurden bisherige Ergebnisse für opake Perowskit- und Perowskit-Tandem-PV unter Verwendung von Gold-Rückkontaktschicht, wie sie für Referenzsolarzellen Standard sind, demonstriert. Da die kommerzielle Nutzung von Goldrückkontaktschichten aufgrund der hohen Kosten ungeeignet ist, könnte die Herstellung von Modulen mit günstigeren, industriell anwendbaren Metallrückkontaktschichten und insbesondere die Untersuchung deren Langzeitstabilität und möglicher Degradationsprozesse wichtige neue Erkenntnisse bringen.^{278,279}

Aufbauend auf den Erkenntnissen dieser Arbeit zur Aufskalierung und Laserstrukturierung, sowie den in Kapitel 6 demonstrierten farbneutralen und effizienten transluzenten Perowskit-Solarzellen und -Module eröffnen sich zudem durch zwei mögliche Folgeprojekte vielversprechende Perspektiven für die Perowskit-PV: Einerseits könnten die Beschichtungs- und Strukturierungsprozesse auf leichte und flexible, polymerbasierte Substrate übertragen werden und damit innovative Anwendungen im Bereich Leichtbau-Photovoltaik ermöglichen.^{186,280,281} Die zusätzliche Kombination mit dem Konzept transluzenter Perowskit-PV könnte die Attraktivität dieser Technologie weiter steigern und mit gebäudeintegrierter flexibler und transparenter PV praktisch unbegrenzte Designmöglichkeiten erlauben. Andererseits könnte ebenfalls die nachträgliche Verschaltung zur Individualisierung beitragen. Dabei wird die Verschaltung und damit die Form des Moduls erst nach Herstellung aller Schichten festgelegt, sodass nahezu beliebige Modulgeometrien bei geringen Mehrkosten möglich wären.²⁸² Hinzu kommt, dass die nachgelagerte Strukturierung insbesondere für lösungsbasierte Abscheideverfahren durch unversehrte Oberflächen mit homogenen Benetzungseigenschaften einfachere Prozessbedingungen zur Folge hätte.

Aus den vorangegangenen Vorschlägen für weitere Optimierungen und Folgeprojekte wird die Vielseitigkeit und das noch große Potential der Perowskit-Photovoltaik, aber auch die hierfür notwendigen weiteren Forschungsaktivitäten trotz der im Rahmen dieser Arbeit präsentierten beeindruckenden Ergebnisse deutlich.

8 Anhang

Im Folgenden werden ergänzende Informationen aufgeführt, die im Hauptteil aufgrund des Umfangs nicht dargestellt wurden. Der Anhang enthält dabei zunächst eine Auflistung der wissenschaftlichen Kontributionen, die zu den in der vorliegenden Arbeit präsentierten Ergebnissen beigetragen haben. Darüber hinaus werden ergänzende Informationen zu den Ergebniskapiteln 4, 5 und 6 bereitgestellt, um zusätzliche Einblicke in die technische Umsetzung zu gewähren, sowie eine Übersicht über die charakterisierenden Kenngrößen der jeweils hergestellten PV-Bauelemente zu bieten.

8.1 Auflistung der wissenschaftlichen Kontributionen zu dieser Arbeit nach dem CRediT-System

An den in der vorliegenden Arbeit präsentierten wissenschaftlichen Ergebnissen sowie den zugrundeliegenden Veröffentlichungen haben verschiedene Wissenschaftlerinnen und Wissenschaftler durch unterschiedliche wissenschaftliche Kontributionen beigetragen. Die Urheber sind in alphabetischer Reihenfolge Agit Basibüyük (AB), Alexander Diercks (AD), Bahram Abdollahi Nejand (BAN), Bryce Sidney Richards (BSR), David Benedikt Ritzer (DBR), Fabian Schackmar (FS), Felix Laufer (FL), Hang Hu (HH), Helge Eggers (HE), Marco Alejandro Ruiz Preciado (MRP), Roja Singh (RS), Stefan Bergfeld (SB), Saba Gharibzadeh (SG), Somayeh Moghadamzadeh (SM), Simon Ternes (ST), Tobias Abzieher (TA), Thomas Feeney (TF) und Ulrich Wilhelm Paetzold (UWP). Die Wichtigkeit und Anzahl der Kontributionen soll im Folgenden durch die Reihenfolge der Nennung der Urheber dargestellt werden. Zur besseren Übersichtlichkeit wird die Darstellung der Kontributionen in mehrere Kategorien unterteilt, die an das CRediT System angelehnt^{34,283} und für Kontributionen an den wissenschaftlichen Ergebnissen einer Dissertationsschrift angepasst sind. Im Folgenden sind zunächst die Kategorien und deren Definitionen aufgeführt.

Tabelle 8.1. Definition der für die in der vorliegenden Arbeit gewählten Kontributionskategorien zur Unterteilung wissenschaftlicher Beiträge und Beteiligung an den präsentierten Ergebnissen. Die Kategorien sind an das CRedit-System angelehnt.

Kategorie	Definition
Konzeptualisierung	Ideenfindung für Forschungsvorhaben; Entwicklung von Forschungszielen, Hypothesenbildung und Forschungsstrategie
Methodik	Entwurf und Entwicklung einer Versuchsmethodik; einschließlich experimenteller und analytischer Ansätze
Experimentelle Durchführung	Durchführung der experimentellen Arbeiten und der Charakterisierungsverfahren zur Datenerhebung
Ressourcen	Versorgung mit Versuchsproben
Validierung	Überprüfung der Ergebnisse und der Methodik
Analyse und Software	Datenanalyse mittels statistischer, mathematischer und rechnerischer Methoden; Entwicklung notwendiger Software-Tools
Datenkuration	Datenaufbereitung und -management für die spätere Wiederverwendung
Visualisierung	Erstellung von Grafiken und Diagrammen zur Präsentation von Ergebnissen, sowie deren Trends und Zusammenhänge
Veröffentlichung – Originalentwurf	Vorbereitung, Erstellung und/oder Präsentation der Ergebnisse als Erstentwurf der Veröffentlichung
Veröffentlichung – Review und Editing	Prüfen, Kommentieren und/oder Überarbeiten des Manuskripts oder der Präsentation vor/nach Veröffentlichung
Betreuung	Unterstützung und Anleitung bei wissenschaftlichen Inhalten und Methoden; Mentoring; Überwachung des Forschungsfortschritts und Qualitätssicherung der Forschungsergebnisse
Finanzierungsakquisition	Identifikation, Beantragung und Verwaltung von Finanzierungsmitteln für Forschungsprojekte
Projektverwaltung	Planung, Organisation und Überwachung von Projekten, einschließlich Zeitmanagement, Ressourcenkoordination und Kommunikation

Tabelle 8.2. Tabellarische Übersicht über die Urheber der wissenschaftlichen Kontribution der in Kapitel 4 präsentierten Ergebnisse.

Kategorie	Urheber	Details
Konzeptualisierung	DBR, TA, UWP	
Methodik	DBR, TA, UWP	Planung der Experimente zur Laserstrukturierung durch DBR; Planung zu Experimenten zur Aufskalierung durch DBR und TA; Unterstützung durch UWP
Experimentelle Durchführung	DBR, TA, FL, SM	Fertigung der laserstrukturierten Verschaltungslinien durch DBR; Fertigung gedampfter ETL-, Perowskit-Halbleiter- und HTL-Schichten durch TA; Fertigung der Rückelektrode durch DBR; Elektrische Charakterisierung durch DBR; Chemische Charakterisierung durch TA; PL Messungen durch FL und SM
Ressourcen	TA, TF	Übergabe einiger Proben für die Optimierung der Laserstrukturierungsprozesse durch TA und TF
Validierung	DBR	
Analyse und Software	DBR, AB	
Datenkuration	DBR	
Visualisierung	DBR	
Veröffentlichung – Originalentwurf	DBR	
Veröffentlichung – Review und Editing	TA, UWP, BSR	
Wissenschaftliche Betreuung	UWP, TA, SB, BSR	
Finanzierungsakquisition	UWP, BSR	
Projektverwaltung	UWP, BSR	

Tabelle 8.3. Tabellarische Übersicht über die Urheber der wissenschaftlichen Kontribution der in Kapitel 5.1 präsentierten Ergebnisse.

Kategorie	Urheber	Details
Konzeptualisierung	DBR, UWP	
Methodik	DBR, UWP	Planung der Experimente und der Charakterisierungsverfahren durch DBR; Unterstützung durch UWP
Experimentelle Durchführung	DBR, RS	Fertigung der semitransparenten PV-Bauelemente durch DBR und RS; Fertigung der Verkapselung durch RS; Charaktersierungen durch DBR; Theoretische Optimierung durch DBR
Ressourcen	RS	Bereitstellung von Proben zur Parameteroptimierung der Laserstrukturierung
Validierung	DBR	
Analyse und Software	DBR	
Datenkuration	DBR	
Visualisierung	DBR	
Veröffentlichung – Originalentwurf	-	
Veröffentlichung – Review und Editing	-	
Wissenschaftliche Betreuung	UWP	
Finanzierungsakquisition	UWP	
Projektverwaltung	UWP	

Tabelle 8.4. Tabellarische Übersicht über die Urheber der wissenschaftlichen Kontribution der in Kapitel 5.2 präsentierten Ergebnisse.

Kategorie	Urheber	Details
Konzeptualisierung	DBR, BAN, HH, UWP	
Methodik	DBR, BAN, HH, UWP	Planung von Experimenten zur Verschaltung von Perowskit-Tandem-Solarmodulen durch DBR; Planung von Experimenten zur Aufskalierung der Schichtherstellung durch BAN; Unterstützung durch HH und UWP
Experimentelle Durchführung	DBR, BAN, HH, FL, FS, RS	Fertigung der Verschaltungslinien durch DBR; Fertigung der funktionalen Schichten durch BAN; Durchführung der PL Messungen durch FL und FS; Unterstützung bei Klängenbeschichtungsverfahren durch FS; Fertigung der Verkapselung durch RS; Elektrische und optische Charakterisierung durch DBR und BAN; Theoretische Optimierung durch DBR
Ressourcen	SM, HH, TF	Bereitstellung von Proben zur Parameteroptimierung der Laserstrukturierung durch SM, HH und TF
Validierung	DBR	
Analyse und Software	DBR, AB	
Datenkuration	DBR	
Visualisierung	DBR, BAN	
Veröffentlichung – Originalentwurf	DBR, BAN, HH	
Veröffentlichung – Review und Editing	UWP, BSR, TA	
Wissenschaftliche Betreuung	UWP	
Finanzierungsakquisition	UWP	
Projektverwaltung	UWP	

Tabelle 8.5. Tabellarische Übersicht über die Urheber der wissenschaftlichen Kontribution der in Kapitel 6 präsentierten Ergebnisse.

Kategorie	Urheber	Details
Konzeptualisierung	DBR, UWP, TA	
Methodik	DBR, UWP, TA	Ideengebung zur Zielsetzung und Umsetzung durch DBR und TA; Planung der Experimente und Methoden zur Charakterisierung durch DBR
Experimentelle Durchführung	DBR	Optimierung der Herstellung der laserstrukturierten transparenten Flächen durch DBR; Fertigung und Charakterisierung transparenter Perowskit-(Tandem-) PV durch DBR
Ressourcen	BAN, MRP, SG, HH, AD, TF	Bereitstellung von Proben zur Optimierung der Parameter der Laserstrukturierung und Herstellung von transparenter Perowskit-PV durch MRP, SG, AD und TF, sowie von Perowskit-Tandem-PV durch BAN und HH
Validierung	DBR	
Analyse und Software	DBR	
Datenkuration	DBR	
Visualisierung	DBR	
Veröffentlichung – Originalentwurf	DBR	
Veröffentlichung – Review und Editing	UWP, TA, BSR	
Wissenschaftliche Betreuung	UWP	
Finanzierungsakquisition	UWP	
Projektverwaltung	UWP	

8.2 Ergänzende Informationen zu Kapitel 4

Tabelle 8.6 Photovoltaische Parameter der leistungsstärksten Referenzsolarzelle aus Kapitel 4.5 mit einer Aperturfläche von $0,105 \text{ cm}^2$, die im selben Prozessdurchgang wie das 4 cm^2 Solarmodul hergestellt wurde. Photovoltaische Parameter sind für Rückwärtsmessung und Vorwärtsmessung (in Klammern) dargestellt.^{134,153}

<i>PCE</i> [%]	<i>FF</i> [%]	<i>V_{oc}</i> [V]	<i>J_{sc}</i> [mA cm⁻²]	<i>I_{sc}</i> [mA]
19,3 (19,2)	82 (81)	1,09 (1,09)	21,6 (21,7)	2.2 (2.3)

Tabelle 8.7 Photovoltaische Parameter der leistungsstärksten Referenzsolarzelle aus Kapitel 4.5 mit einer Aperturfläche von $0,105 \text{ cm}^2$, die im selben Prozessdurchgang wie das 51 cm^2 Solarmodul hergestellt wurde. Photovoltaische Parameter sind für Rückwärtsmessung und Vorwärtsmessung (in Klammern) dargestellt.^{134,153}

<i>PCE</i> [%]	<i>FF</i> [%]	<i>V_{oc}</i> [V]	<i>J_{sc}</i> [mA cm ⁻²]	<i>sPCE</i> [%]
18,1 (17,9)	82 (80)	1,05 (1,05)	21,2 (21,5)	2.2 (2.3)

8.3 Ergänzende Informationen zu Kapitel 5

Tabelle 8.8 Photovoltaische Parameter der leistungsstärksten semitransparenten Referenzsolarzelle aus Kapitel 5.2.3 mit einer Aperturfläche von 0,105 cm². Photovoltaische Parameter sind für Rückwärtsmessung und Vorwärtsmessung (in Klammern) dargestellt.

<i>PCE</i> [%]	<i>FF</i> [%]	<i>V_{oc}</i> [V]	<i>J_{sc}</i> [mA cm ⁻²]	<i>sPCE</i> [%]
17,7 (16,5)	80 (76)	1,19 (1,18)	18,7 (18,5)	16,9

Tabelle 8.9 Photovoltaische Parameter der leistungsstärksten 2-Terminal-Perowskit-Perowskit-Tandem-Solarzelle (Referenz) aus Kapitel 5.3.4 mit einer Aperturfläche von 0,105 cm². Photovoltaische Parameter sind für Rückwärtsmessung und Vorwärtsmessung (in Klammern) dargestellt.

<i>PCE</i> [%]	<i>FF</i> [%]	<i>V_{oc}</i> [V]	<i>J_{sc}</i> [mA cm ⁻²]
24,9 (22,1)	72 (63)	1,66 (1,63)	17,0 (17,2)

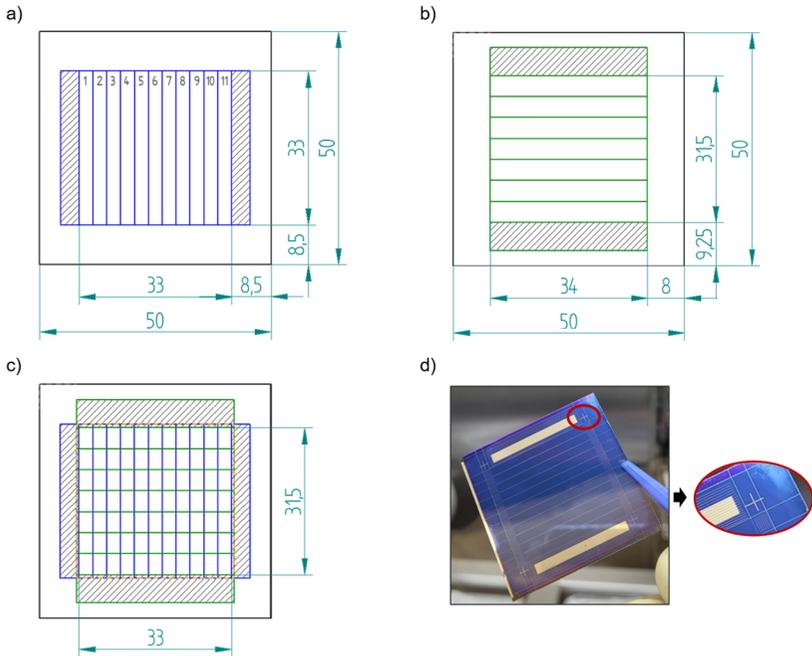


Abbildung 8.1. Laserstrukturierungslayouts zur Herstellung der zwei Solarmodulkomponenten eines Tandem-Solarmoduls in 4-Terminal-Tandem-Konfiguration sowie deren relative Positionierung zueinander für minimale Wirkungsgradverluste. (a) Layout 1: Perowskit-Solarmodul mit 11 monolithisch verschalteten Solarzellenstreifen und zwei Kontaktflächen. (b) Layout 2: CIGS/CIS-Solarmodul mit 7 monolithisch verschalteten Solarzellenstreifen und zwei Kontaktflächen. (c) Layout 3: Mechanisch gestapelte Solarmodule, wobei die Solarzellenstreifen relativ zueinander um 90° gedreht sind, um Stromunterschiede der einzelnen CIGS/CIS-Solarzellenstreifen durch Schatten des darüberliegenden Perowskit-Solarmodul zu vermeiden. (d) Fotografie und Detailausschnitt der transparenten Referenzmarkierung zur genauen Positionierung der gestapelten Solarmodule mittels Lichtmikroskop.

8.4 Ergänzende Informationen zu Kapitel 6

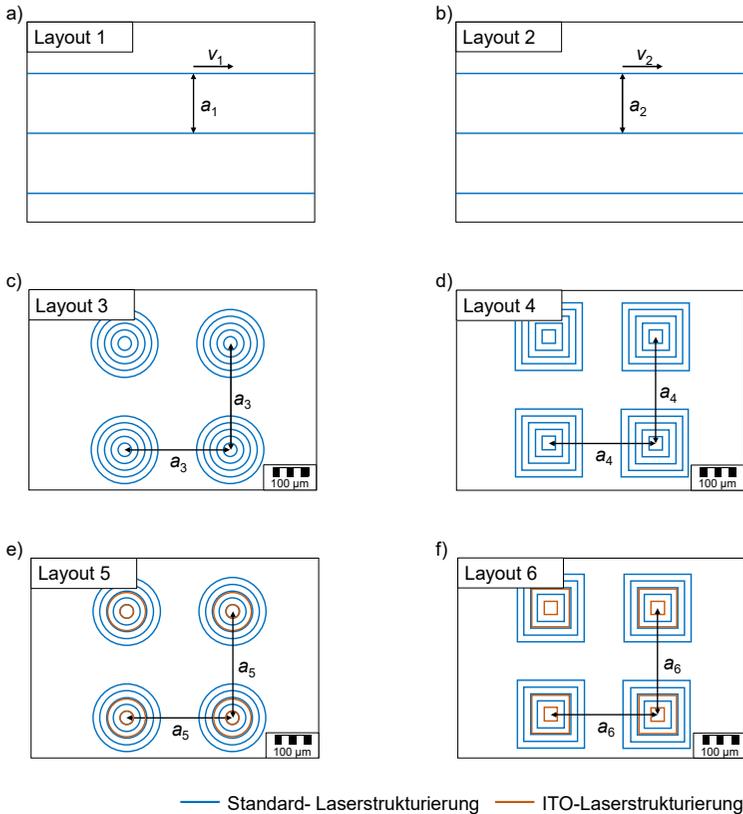


Abbildung 8.2. Laserstrukturierungslayouts zur Herstellung transparenter Flächen unterschiedlicher Form in Perovskit-Photovoltaik. a) Layout 1 – kleine kreisförmige transparente Flächen. b) Layout 2 – kleine linienförmige transparente Flächen. c) Layout 3 – große kreisförmige transparente Flächen. d) Layout 4 – große quadratische transparente Flächen. e) Layout 5 – große kreisförmige transparente Flächen mit ITO-Ablation. f) Layout 6 – große quadratische transparente Flächen mit ITO-Ablation. Die Laserstrukturierungsgeschwindigkeit v_1 für Layout 1 muss an den gewünschten AVT angepasst werden. So beträgt v_2 für Layout 2-6 100 mm s^{-1} . Die ITO-Ablation wird mit einer Laserstrukturierungsgeschwindigkeit von 50 mm s^{-1} durchgeführt. Weiterhin wurde die Sprunggeschwindigkeit auf 2000 mm/s , die Sprungverzögerung auf $300 \mu\text{s}$ und die Laserverzögerung auf $250 \mu\text{s}$ (an) und $300 \mu\text{s}$ (aus) festgelegt. Übersetzte und angepasste Abbildung aus Ritzer *et al.*²¹¹

Tabelle 8.10. Optische Parameter transluzenter Perowskit-Photovoltaik mit einer Aperturfläche von 4 cm² nach der Herstellung von laserstrukturierten transparenten Flächen. Übersetzte und angepasste Tabelle aus Ritzer *et al.*²¹¹

Form transparenter Flächen	AVT_{total} (%)	R_a	L^*	a^*	b^*	$AVT_{diffuse}$ (%)	$\frac{AVT_{specular}}{AVT_{total}^1}$ (%)
Kreisförmig, kl.	29	92.2	59.5	1.9	11.7	4.4	84.5
Linienförmig,	25	93.3	56.2	0.5	8.3	1.6	93.6
Kreisförmig, gr.	28	91.7	59.1	0.9	8.6	2.0	93.0
Kreisförmig, gr., 2-Schritt	29	96.9	60.2	1.1	5.0	1.5	95.0
Quadratisch, gr.	33	96.5	63.6	2.4	6.5	0.9	97.4
Quadratisch, gr., 2-Schritt	32	97.2	62.4	1.1	4.7	1.0	96.8

Tabelle 8.11. Optische und photovoltaische Parameter des leistungsstärksten transparenten Perowskit-Solarmoduls mit einer Aperturfläche von 4 cm^2 vor und nach der Herstellung der laserstrukturierten transparenten Flächen. Photovoltaische Parameter sind für Rückwärtsmessung und Vorwärtsmessung (in Klammern) dargestellt. Übersetzte und angepasste Tabelle aus Ritzer et al.²¹¹

Form transparenter Fläche	Vor Laserstrukturierung					Nach Laserstrukturierung					Vergleich				
	AVT_{total} (%)	R_a	L^*	a^*	b^*	PCE (%)	FF (%)	V_{oc} (V)	J_{sc} (mA cm^{-2})	PCE (%)	FF (%)	V_{oc} (V)	J_{sc} (mA cm^{-2})	PCE-Verlust (% _{rel})	Prozess-effizienz (%)
Quadratisch, gr., 2-Schritt	32	95.1	62.5	0.6	5.0	15.2 (13.2)	69 (66)	5.54 (5.52)	19.91 (19.71)	9.0 (8.3)	74 (70)	5.50 (5.40)	11.11 (11.01)	40.8 (42.4)	78.9 (75.9)

Tabelle 8.12. Optische und photovoltaische Parameter der leistungsstärksten transluzenten 2-Terminal-Perowskit-Perowskit-Tandem-Solarzellen mit 8,1 mm² Aperturfläche vor und nach der Herstellung der laserstrukturierten transparenten Flächen. Photovoltaische Parameter sind für Rückwärtsmessung und Vorwärtsmessung (in Klammern) dargestellt. Übersetzte und angepasste Tabelle aus Ritzer et al.²¹¹

Form transparenter Fläche	AVT _{total} (%)	R _s	L*	a*	b*	Vor Laserstrukturierung						Nach Laserstrukturierung				Vergleich	
						PCE (%)	FF (%)	V _{oc} (V)	J _{sc} (mA cm ⁻²)	PCE (%)	FF (%)	V _{oc} (V)	J _{sc} (mA cm ⁻²)	PCE-Verlust (% _{total})	Prozess-effizienz (%)		
Quadratisch, gr., 2-Schritt	12	95.1	39.5	0.5	3.4	20.7 (17.3)	75 (64)	1.94 (1.93)	14.33 (13.93)	17.7 (15.0)	77 (68)	1.95 (1.94)	11.85 (11.36)	14.5 (13.3)	79.3 (86.2)		
Quadratisch, gr., 2-Schritt	31	95.5	61.3	0.6	4.4	18.4 (15.2)	73 (64)	1.94 (1.93)	13.01 (12.37)	11.1 (9.3)	71 (61)	1.94 (1.94)	8.10 (7.85)	39.7 (38.8)	77.3 (79.1)		

Tabelle 8.13. Optische und photovoltaische Parameter des leistungsstärksten transluzenten 2-Terminal-Perowskit-Perowskit-Tandem-Solarmodul mit 12,25 cm² Aperturfläche vor und nach der Herstellung der laserstrukturierten transparenten Flächen. Photovoltaische Parameter sind für Rückwärtsmessung und Vorwärtsmessung (in Klammern) dargestellt. Übersetzte und angepasste Tabelle aus Ritzer et al.^{2,11}

Form transparenter Fläche	Vor Laserstrukturierung						Nach Laserstrukturierung				Vergleich				
	AVT _{total} (%)	R _s	L*	a*	b*	PCE (%)	FF (%)	V _{oc} (V)	J _{sc} (mA cm ⁻²)	PCE (%)	FF (%)	V _{oc} (V)	J _{sc} (mA cm ⁻²)	PCE-Verlust (% _{rel})	Prozess-effizienz (%)
Quadratisch, gr., 2-Schritt	15	79.4	44.7	1.6	18.3	16.7 (14.0)	73 (64)	13.15 (13.06)	12.18 (11.76)	10.3 (8.9)	68 (61)	12.72 (12.73)	8.33 (8.11)	38.3 (36.4)	39.2 (41.2)

Tabelle 8.14. Laserstrukturierungsparameter zur Herstellung transluzenter Perowskit-Photovoltaik und resultierende Fertigungsrate. Die Fertigungsrate wird dabei für die in der vorliegenden Arbeit verwendeten Parameter und Randbedingungen des vorhandenen Laserstrukturierungssystems berechnet. Notwendige Anpassungen an ein Laserstrukturierungssystem für die industrielle Fertigung und die Auswirkung auf die Fertigungsrate werden ebenfalls vorgestellt.

System und Layout	Lichttransmissions- grad AVT [%]	Transmissions- effizienz η_{tr} [%]	Transparente Fläche A_{ta} [mm ²]	Strukturierungs- länge pro transparenter Fläche l_{ta} [mm]	Strukturierungs- geschwindigkeit V_{ta} [m s ⁻¹]	Anzahl paralleler Scanner	Fertigungsrate transluzenter Fläche r_t [min m ⁻²]
Referenz aus Kap. 7	30	80	0,0144	1,12	0,1	1	4861
Industrielles Laserstrukturierungssystem und Prozessoptimierung	30	85	0,0144	0,8	15	9	2,4

Tabelle 8.15. Optische und photovoltaische Parameter der transluzenten Perowskit-Solarmodule mit Transmissionsgradienten und 4 cm² Aperturfläche vor und nach der Herstellung der laserstrukturierten transparenten Flächen. Photovoltaische Parameter sind für Rückwärtsmessung und Vorwärtsmessung (in Klammern) dargestellt. Optische Messwerte beziehen sich dabei auf die Ergebnisse für die lokalen Flächen M1 und M2, wie in **Abbildung 6.15** markiert. Übersetzte und angepasste Tabelle aus Ritzer *et al.*^{2,11}

Transmissionsgradient	spot	AVT _{total} (%)	R _a	L*	a*	b*	Vor Laserstrukturierung				Nach Laserstrukturierung				Vergleich
							PCE (%)	FF (%)	V _{oc} (V)	J _{sc} (mA cm ⁻²)	PCE (%)	FF (%)	V _{oc} (V)	J _{sc} (mA cm ⁻²)	
horizontal	M1	31	94.9	61.7	0.8	4.8	16.0 (14.9)	72 (69)	5.61 (5.55)	19.76 (19.61)	12.0 (11.3)	74 (71)	5.58 (5.52)	11.61 (11.57)	25.0 (24.2)
	M2	7	90.6	31.3	0.8	3.5									
vertical	M1	33	96.4	63.0	0.3	4.0	13.3 (11.9)	76 (69)	5.49 (5.37)	15.98 (15.98)	10.3 (9.8)	66 (65)	5.39 (5.26)	11.57 (11.45)	22.6 (17.6)
	M2	5	88.0	25.0	2.1	4.2									
radial	M1	28	95.7	59.2	1.0	4.8	12.9 (11.9)	65 (61)	5.26 (5.17)	18.89 (18.84)	11.2 (10.2)	72 (68)	5.36 (5.17)	11.53 (11.65)	13.2 (14.3)
	M2	8	93.5	24.1	1.9	3.9									

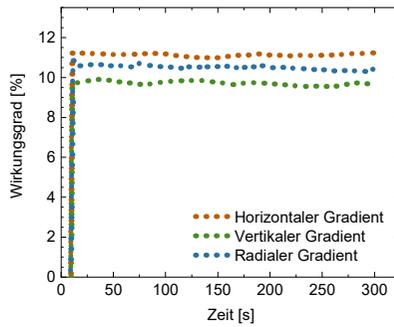


Abbildung 8.3. Kurzzeitstabilität des Wirkungsgrads der transluzenten Perowskit-Solarmodule mit 4 cm² Aperturfläche nach Herstellung von Transmissionsgradienten unter kontinuierlicher Beleuchtung und MPP-Tracking bei nominalen Betriebstemperaturen der Zelle (NOCT) ohne aktive Kühlung unter kontinuierlicher Beleuchtung. Übersetzte und angepasste Abbildung aus Ritzer *et al.*²¹¹

Literaturverzeichnis

1. Department of Economic and Social Affairs (2022). World Population Prospects 2022 - Summary of Results. *United Nations*, 1–52.
2. OECD Social and Welfare Statistics (database) (2024). How's Life? Well-Being doi: 10.1787/b8a8569d-en.
3. Tebaldi, C., Debeire, K., Eyring, V., Fischer, E., Fyfe, J., Friedlingstein, P., Knutti, R., Lowe, J., O'Neill, B., Sanderson, B., et al. (2021). Climate model projections from the Scenario Model Intercomparison Project (ScenarioMIP) of CMIP6. *Earth Syst. Dyn.* 12, 253–293. doi: 10.5194/esd-12-253-2021.
4. Oxford Martin School, and University of Oxford (2024). Global Direct Primary Energy Consumption 2020. *Our World Data*, 1. <https://ourworldindata.org/grapher/global-primary-energy>.
5. Tong, X., Zhang, G., Wang, Z., Wen, Z., Tian, Z., Wang, H., Ma, F., and Wu, Y. (2018). Distribution and potential of global oil and gas resources. *Pet. Explor. Dev.* 45, 779–789. doi: 10.1016/S1876-3804(18)30081-8.
6. Brown, M.A., Wang, Y., Sovacool, B.K., and D'Agostino, A.L. (2014). Forty years of energy security trends: A comparative assessment of 22 industrialized countries. *Energy Res. Soc. Sci.* 4, 64–77. doi: 10.1016/j.erss.2014.08.008.
7. Riahi, K., van Vuuren, D.P., Kriegler, E., Edmonds, J., O'Neill, B.C., Fujimori, S., Bauer, N., Calvin, K., Dellink, R., Fricko, O., et al. (2017). The Shared Socioeconomic Pathways and their energy, land use, and greenhouse gas emissions implications: An overview. *Glob. Environ. Chang.* 42, 153–168. doi: 10.1016/j.gloenvcha.2016.05.009.
8. Sps, T., Panel, I., Change, C., and Agreement, P. (2023). What are the SSPs? *Carbon Br. - Clear Clim.*, 1–16. <https://www.carbonbrief.org/explainer-how-shared-socioeconomic-pathways-explore-future-climate-change/>.
9. Lindsey, R., and Dahlman, L. (2024). Climate Change: Global Temperature. <https://www.climate.gov/News-Features/Understanding-Climate/Climate-Change-Global-Temperature>.
10. Pinault, J.L. (2018). Anthropogenic and natural radiative forcing: Positive feedbacks doi: 10.3390/jmse6040146.
11. Perera, A.T.D., Nik, V.M., Chen, D., Scartezzini, J.L., and Hong, T. (2020). Quantifying the impacts of climate change and extreme climate events on energy systems. *Nat. Energy* 5, 150–159. doi: 10.1038/s41560-020-0558-0.
12. Folke, C., Polasky, S., Rockström, J., Galaz, V., Westley, F., Lamont, M., Scheffer, M., Österblom, H., Carpenter, S.R., Chapin, F.S., et al. (2021). Our

- future in the Anthropocene biosphere doi: 10.1007/s13280-021-01544-8.
13. Ebi, K.L. (2016). Adaptation and resilience. *Public Health Rev.* 37, 1421–1426. doi: 10.1186/s40985-016-0032-5.
 14. Habibullah, M.S., Din, B.H., Tan, S.H., and Zahid, H. (2022). Impact of climate change on biodiversity loss: global evidence. *Environ. Sci. Pollut. Res.* 29, 1073–1086. doi: 10.1007/s11356-021-15702-8.
 15. Kost, C., Shammugam, S., Fluri, V., Peper, D., Memar, A.D., and Schlegl, T. (2021). Stromgestehungskosten Erneuerbare Energien. *FRAUNHOFER-INSTITUT FÜR SOLARE ENERGIESYSTEME ISE*, 44.
 16. Umweltbundesamt (2023). Der Europäische Emissionshandel Teilnehmer und Prinzip des Europäischen Emissionshandels Die Handelsperioden im Emissionshandel Treibhausgasemissionen deutscher Energie- und Industrieanlagen im Jahr 2014. 15–18. <https://www.umweltbundesamt.de/daten/klima/der-europaeische-emissionshandel#teilnehmer-prinzip-und-umsetzung-des-europaischen-emissionshandels>.
 17. Association, N.E. (2018). Energy Subsidies. *Econ. Asp. Energy* 27, 725–743. <https://world-nuclear.org/information-library/economic-aspects/energy-subsidies.aspx>.
 18. Owusu, P.A., and Asumadu-Sarkodie, S. (2016). A review of renewable energy sources, sustainability issues and climate change mitigation. *Cogent Eng.* 3. doi: 10.1080/23311916.2016.1167990.
 19. Deutsche Bundesregierung (2023). Energiewende beschleunigen. <https://www.bundesregierung.de/breg-de/schwerpunkte/klimaschutz/planungs-und-genehmigungsbeschleunigung/erneuerbare-netzausbau-2194562>.
 20. Bundesnetzagentur (2024). Zubau Erneuerbarer Energien 2023. 2023–2024.
 21. Becker, B., and Pereira, J.P. (2021). Economic Analysis of Rooftop Solar Panels in the Case of Hamburg, Germany.
 22. Steinhäuser, R., Siebert, R., Steinführer, A., and Hellmich, M. (2015). National and regional land-use conflicts in Germany from the perspective of stakeholders. *Land use policy* 49, 183–194. doi: 10.1016/j.landusepol.2015.08.009.
 23. Ghosh, A. (2020). Potential of building integrated and attached/applied photovoltaic (BIPV/BAPV) for adaptive less energy-hungry building's skin: A comprehensive review. *J. Clean. Prod.* 276, 123343. doi: 10.1016/j.jclepro.2020.123343.
 24. Gholami, H., Røstvik, H.N., and Steemers, K. (2021). The contribution of building-integrated photovoltaics (Bipv) to the concept of nearly zero-energy cities in europe: Potential and challenges ahead. *Energies* 14, 1–22. doi: 10.3390/en14196015.
 25. Mainzer, K., Fath, K., Mckenna, R., Stengel, J., Fichtner, W., and Schultmann, F. (2014). A high-resolution determination of the technical potential for residential-roof-mounted photovoltaic systems in Germany. *Sol. Energy* 105, 715–731. doi:

- 10.1016/j.solener.2014.04.015.
26. Fischer, M. (2024). International Technology Roadmap for Photovoltaics, 15th Edition at PVCellTech, VDMA.
 27. Green, M.A., Dunlop, E.D., Yoshita, M., Kopidakis, N., Bothe, K., Siefert, G., and Hao, X. (2023). Solar cell efficiency tables (version 62). *Prog. Photovoltaics Res. Appl.*, 651–663. doi: 10.1002/pip.3726.
 28. Pathak, C.S., Choi, H., Kim, H., Lim, J., Cho, S.-K., Ham, D.S., and Song, S. (2024). Recent Progress in Coating Methods for Large-Area Perovskite Solar Module. *Sol. RRL* 8. doi: 10.1002/solr.202300860.
 29. Sharif, R., Khalid, A., Ahmad, S.W., Rehman, A., Qutab, H.G., Akhtar, H.H., Mahmood, K., Afzal, S., and Saleem, F. (2023). A comprehensive review of the current progresses and material advances in perovskite solar cells. *Nanoscale Adv.* 5, 3803–3833. doi: 10.1039/d3na00319a.
 30. Fu, F., Li, J., Yang, terry chien-jen, Liang, H., Faes, A., Jeangros, Q., Ballif, C., and Hou, Y. (2022). Monolithic Perovskite-silicon Tandem Solar cells from the Lab to Fab. *Adv. Mater.* 34.
 31. Ho-Baillie, A.W.Y., Zheng, J., Mahmud, M.A., Ma, F.J., McKenzie, D.R., and Green, M.A. (2021). Recent progress and future prospects of perovskite tandem solar cells. *Appl. Phys. Rev.* 8. doi: 10.1063/5.0061483.
 32. Aydin, E., Allen, T.G., Bastiani, M. De, Razzaq, A., Xu, L., Ugur, E., Liu, J., and De Wolf, S. (2024). Pathways toward commercial perovskite/silicon tandem photovoltaics. *Science (80-.)*. 383, 1–13. doi: 10.1126/science.adh3849.
 33. Elsmami, M.I., Fatima, N., Jallorina, M.P.A., Sepeai, S., Su'ait, M.S., Ludin, N.A., Teridi, M.A.M., Sopian, K., and Ibrahim, M.A. (2021). Recent issues and configuration factors in perovskite-silicon tandem solar cells towards large scaling production. *Nanomaterials* 11. doi: 10.3390/nano11123186.
 34. Brand, A., Allen, L., Altman, M., Hlava, M., and Scott, J. (2015). Beyond authorship: Attribution, contribution, collaboration, and credit. *Learn. Publ.* 28, 151–155. doi: 10.1087/20150211.
 35. Würfel, P., and Würfel, U. (2016). Physics of Solar Cells 3rd ed. (Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA).
 36. Kang, S., Sharma, R., Sim, J.K., and Lee, C.R. (2013). Band gap engineering of tandem structured CIGS compound absorption layer fabricated by sputtering and selenization. *J. Alloys Compd.* 563, 207–215. doi: 10.1016/j.jallcom.2013.02.112.
 37. Sarritzu, V., Sestu, N., Marongiu, D., Chang, X., Wang, Q., Masi, S., Colella, S., Rizzo, A., Gocalinska, A., Pelucchi, E., et al. (2018). Direct or Indirect Bandgap in Hybrid Lead Halide Perovskites? *Adv. Opt. Mater.* 6, 1–8. doi: 10.1002/adom.201701254.
 38. Schultz, M.L. (1964). Silicon: Semiconductor properties. *Infrared Phys.* 4, 93–112. doi: 10.1016/0020-0891(64)90015-6.

39. Baranowski, M., and Plochocka, P. (2020). Advanced Energy Materials - 2020 - Baranowski - Excitons in Metal-Halide Perovskites.pdf. *Adv. Energy Mater.* 10. doi: 10.1002/aenm.201903659.
40. SHOCKLEY, W., and READ, W.T. (1991). Statistics of the Recombinations of Holes and Electrons. *Semicond. Devices Pioneer. Pap.*, 62–69. doi: 10.1142/9789814503464_0002.
41. Pincherle, L. (1955). Auger effect in semiconductors. *Proc. Phys. Soc. Sect. B* 68, 319–320. doi: 10.1088/0370-1301/68/5/108.
42. Aydin, E., De Bastiani, M., and De Wolf, S. (2019). Defect and Contact Passivation for Perovskite Solar Cells. *Adv. Mater.* 31, 1–20. doi: 10.1002/adma.201900428.
43. Caprioglio, P., Wolff, C.M., Sandberg, O.J., Armin, A., Rech, B., Albrecht, S., Neher, D., and Stolterfoht, M. (2020). On the Origin of the Ideality Factor in Perovskite Solar Cells. *Adv. Energy Mater.* 10, 1–9. doi: 10.1002/aenm.202000502.
44. Mambriani, T., Dubois, A.M., Longeaud, C., Badosa, J., Haefelin, M., Prieur, L., and Radivoniuk, V. (2015). Photovoltaic yield: Correction method for the mismatch between the solar spectrum and the reference ASTM G 173-03 spectrum. *EPJ Photovoltaics* 6. doi: 10.1051/epjpv/2014011.
45. Kay, H.F., and Bailey, P.C. (1957). Structure and properties of CaTiO₃. *Acta Crystallogr.* 10, 219–226. doi: 10.1107/s0365110x57000675.
46. Kojima, A., Teshima, K., Shirai, Y., and Miyasaka, T. (2008). Novel Photoelectrochemical Cell with Mesoscopic Electrodes Sensitized by Lead-halide Compounds (11). *ECS Meet. Abstr. MA2008-02*, 27–27. doi: 10.1149/ma2008-02/1/27.
47. Stoumpos, C.C., and Kanatzidis, M.G. (2015). The Renaissance of Halide Perovskites and Their Evolution as Emerging Semiconductors. *Acc. Chem. Res.* 48, 2791–2802. doi: 10.1021/acs.accounts.5b00229.
48. Correa-Baena, J.P., Saliba, M., Buonassisi, T., Grätzel, M., Abate, A., Tress, W., and Hagfeldt, A. (2017). Promises and challenges of perovskite solar cells. *Science (80-.)*. 358, 739–744. doi: 10.1126/science.aam6323.
49. Zhang, K., Zhu, N., Zhang, M., Wang, L., and Xing, J. (2021). Opportunities and challenges in perovskite LED commercialization. *J. Mater. Chem. C* 9, 3795–3799. doi: 10.1039/d1tc00232e.
50. Li, L., Ye, S., Qu, J., Zhou, F., Song, J., and Shen, G. (2021). Recent Advances in Perovskite Photodetectors for Image Sensing. *Small* 17, 1–27. doi: 10.1002/sml.202005606.
51. Forgács, D., Pérez-Del-Rey, D., Ávila, J., Momblona, C., Gil-Escrig, L., Dänekamp, B., Sessolo, M., and Bolink, H.J. (2017). Efficient wide band gap double cation-double halide perovskite solar cells. *J. Mater. Chem. A* 5, 3203–3207. doi: 10.1039/c6ta10727c.
52. Saliba, M., Matsui, T., Seo, J.Y., Domanski, K., Correa-Baena, J.P., Nazeeruddin,

- M.K., Zakeeruddin, S.M., Tress, W., Abate, A., Hagfeldt, A., et al. (2016). Cesium-containing triple cation perovskite solar cells: Improved stability, reproducibility and high efficiency. *Energy Environ. Sci.* 9, 1989–1997. doi: 10.1039/c5ee03874j.
53. Xiao, Z., and Yan, Y. (2017). Progress in Theoretical Study of Metal Halide Perovskite Solar Cell Materials. *Adv. Energy Mater.* 7, 1–20. doi: 10.1002/aenm.201701136.
54. Gharibzadeh, S., Hossain, I.M., Fassl, P., Nejad, B.A., Abzieher, T., Schultes, M., Ahlswede, E., Jackson, P., Powalla, M., Schäfer, S., et al. (2020). 2D/3D Heterostructure for Semitransparent Perovskite Solar Cells with Engineered Bandgap Enables Efficiencies Exceeding 25% in Four-Terminal Tandems with Silicon and CIGS. *Adv. Funct. Mater.* 30. doi: 10.1002/adfm.201909919.
55. Yun, Y., Han, G.S., Park, G.N., Kum, J., Park, J., Vidyasagar, D., Jung, J., Choi, W.C., Choi, Y.J., Heo, K., et al. (2022). A Wide Bandgap Halide Perovskite Based Self-Powered Blue Photodetector with 84.9% of External Quantum Efficiency. *Adv. Mater.* 34. doi: 10.1002/adma.202206932.
56. Wang, C., Song, Z., Li, C., Zhao, D., and Yan, Y. (2019). Bandgap Mixed Tin-Lead Perovskites and Their Applications in All-Perovskite Tandem Solar Cells. *Adv. Funct. Mater.* 29. doi: 10.1002/adfm.201808801.
57. Ball, J.M., Stranks, S.D., Hörantner, M.T., Hüttner, S., Zhang, W., Crossland, E.J.W., Ramirez, I., Riede, M., Johnston, M.B., Friend, R.H., et al. (2015). Optical properties and limiting photocurrent of thin-film perovskite solar cells. *Energy Environ. Sci.* 8, 602–609. doi: 10.1039/c4ee03224a.
58. Galkowski, K., Mitioglu, A., Miyata, A., Plochocka, P., Portugall, O., Eperon, G.E., Wang, J.T.W., Stergiopoulos, T., Stranks, S.D., Snaith, H.J., et al. (2016). Determination of the exciton binding energy and effective masses for methylammonium and formamidinium lead tri-halide perovskite semiconductors. *Energy Environ. Sci.* 9, 962–970. doi: 10.1039/c5ee03435c.
59. Yin, Y., Guo, Z., Chen, G., Zhang, H., and Yin, W.J. (2021). Recent progress in defect tolerance and defect passivation in halide perovskite solar cells. *Wuli Huaxue Xuebao/ Acta Phys. - Chim. Sin.* 37, 1–10. doi: 10.3866/PKU.WHXB202008048.
60. Kiermasch, D., Rieder, P., Tvingstedt, K., Baumann, A., and Dyakonov, V. (2016). Improved charge carrier lifetime in planar perovskite solar cells by bromine doping. *Sci. Rep.* 6, 1–7. doi: 10.1038/srep39333.
61. Guo, F., Qiu, S., Hu, J., Wang, H., Cai, B., Li, J., Yuan, X., Liu, Y., Forberich, K., Brabec, C.J., et al. (2019). A Generalized Crystallization Protocol for Scalable Deposition of High-Quality Perovskite Thin Films for Photovoltaic Application. *Adv. Sci.* 6. doi: 10.1002/advs.201901067.
62. Galazka, Z. (2020). Czochralski Method. In: Higashiwaki, M., Fujita, S. (eds) Gallium Oxide. 293rd ed. (Springer Series in Materials Science) doi: https://doi.org/10.1007/978-3-030-37153-1_2.
63. Abzieher, T. (2019). Thermische Koverdampfung von hybriden Perowskit-

Halbleitern für den Einsatz in Solarzellen.

64. Chen, M., Kapil, G., Wang, L., Razey Sahamir, S., Baranwal, A.K., Nishimura, K., Sanehira, Y., Zhang, Z., Akmal Kamarudin, M., Shen, Q., et al. (2022). High performance wide bandgap Lead-free perovskite solar cells by monolayer engineering. *Chem. Eng. J.* 436, 135196. doi: 10.1016/j.cej.2022.135196.
65. Al-Ashouri, A., Magomedov, A., Roß, M., Jošt, M., Talaikis, M., Chistiakova, G., Bertram, T., Márquez, J.A., Köhnen, E., Kasparavičius, E., et al. (2019). Conformal monolayer contacts with lossless interfaces for perovskite single junction and monolithic tandem solar cells. *Energy Environ. Sci.* 12, 3356–3369. doi: 10.1039/c9ee02268f.
66. Pandey, S. Hydrogenated Indium Oxide (IO:H) by Plasma Enhanced Spatial Atomic Layer Deposition for Thin film PV Application.
67. Vaynzof, Y. (2020). The Future of Perovskite Photovoltaics—Thermal Evaporation or Solution Processing? *Adv. Energy Mater.* 10. doi: 10.1002/aenm.202003073.
68. Hu, Z., Wang, Z., An, Q., and Zhang, F. (2020). Semitransparent polymer solar cells with 12.37% efficiency and 18.6% average visible transmittance. *Sci. Bull.* 65, 131–137. doi: 10.1016/j.scib.2019.09.016.
69. Wang, K., Zheng, L., Hou, Y., Nozariasbmarz, A., Poudel, B., Yoon, J., Ye, T., Yang, D., Pogrebnyakov, A. V., Gopalan, V., et al. (2022). Overcoming Shockley-Queisser limit using halide perovskite platform? *Joule* 6, 756–771. doi: 10.1016/j.joule.2022.01.009.
70. Shockley, W., and Queisser, H. (1960). Detailed balance limit of efficiency of p-n junction solar cells. *Renew. Energy Four Vol. Set* 32, 35–54. doi: 10.4324/9781315793245-44.
71. National Renewable Energy Laboratory (2023). Best Research-Cell Efficiencies. <https://www.nrel.gov/pv/cell-efficiency.html>.
72. Green, M., Dunlop, E., Hohl-Ebinger, J., Yoshita, M., Kopidakis, N., and Hao, X. (2021). Solar cell efficiency tables (version 57). *Prog. Photovoltaics Res. Appl.* 29, 3–15. doi: 10.1002/pip.3371.
73. Rakocevic, L., Gehlhaar, R., Merckx, T., Qiu, W., Paetzold, U.W., Fledderus, H., and Poortmans, J. (2017). Interconnection Optimization for Highly Efficient Perovskite Modules. *IEEE J. Photovoltaics* 7, 404–408. doi: 10.1109/JPHOTOV.2016.2626144.
74. Howard, I.A., Abzieher, T., Hossain, I.M., Eggers, H., Schackmar, F., Ternes, S., Richards, B.S., Lemmer, U., and Paetzold, U.W. (2019). Coated and Printed Perovskites for Photovoltaic Applications. *Adv. Mater.* 31. doi: 10.1002/adma.201806702.
75. Niu, B., Wu, H., Yin, J., Wang, B., Wu, G., Kong, X., Yan, B., Yao, J., Li, C.Z., and Chen, H. (2021). Mitigating the Lead Leakage of High-Performance Perovskite Solar Cells via in Situ Polymerized Networks. *ACS Energy Lett.* 6, 3443–3449. doi: 10.1021/acsenenergylett.1c01487.

76. Yang, S., Chen, S., Mosconi, E., Fang, Y., Xiao, X., Wang, C., Zhou, Y., Yu, Z., Zhao, J., Gao, Y., et al. (2019). Stabilizing halide perovskite surfaces for solar cell operation with wide-bandgap lead oxysalts. *Science (80-.)*. 365, 473–478. doi: 10.1126/science.aax3294.
77. Jiang, Y., Qiu, L., Juarez-Perez, E.J., Ono, L.K., Hu, Z., Liu, Z., Wu, Z., Meng, L., Wang, Q., and Qi, Y. (2019). Reduction of lead leakage from damaged lead halide perovskite solar modules using self-healing polymer-based encapsulation. *Nat. Energy* 4, 585–593. doi: 10.1038/s41560-019-0406-2.
78. Vidal, R., Alberola-Borràs, J.A., Sánchez-Pantoja, N., and Mora-Seró, I. (2021). Comparison of Perovskite Solar Cells with other Photovoltaics Technologies from the Point of View of Life Cycle Assessment. *Adv. Energy Sustain. Res.* 2. doi: 10.1002/aesr.202000088.
79. Wagner, L., Suo, J., Yang, B., Bogachuk, D., Gervais, E., Pietzcker, R., Gassmann, A., and Goldschmidt, J.C. (2023). The Resource Demand of Terawatt-Scale Perovskite Tandem Photovoltaics.
80. Chavan, G.T., Kim, Y., Khokhar, M.Q., Hussain, S.Q., Cho, E.C., Yi, J., Ahmad, Z., Rosaiah, P., and Jeon, C.W. (2023). A Brief Review of Transparent Conducting Oxides (TCO): The Influence of Different Deposition Techniques on the Efficiency of Solar Cells. *Nanomaterials* 13. doi: 10.3390/nano13071226.
81. Rozati, S.M., and Ziabari, S.A.M. (2022). A review of various single layer, bilayer, and multilayer TCO materials and their applications. *Mater. Chem. Phys.* 292, 126789. doi: 10.1016/j.matchemphys.2022.126789.
82. Turan, B. (2015). Laser processing for the integrated series connection of thin-film silicon solar cells.
83. Gečys, P., Markauskas, E., Nishiwaki, S., Buecheler, S., De Loor, R., Burn, A., Romano, V., and Račiukaitis, G. (2017). CIGS thin-film solar module processing: Case of high-speed laser scribing. *Sci. Rep.* 7, 1–9. doi: 10.1038/srep40502.
84. Cunningham, D., Rubcich, M., and Skinner, D. (2002). Cadmium telluride PV module manufacturing at BP solar. *Prog. Photovoltaics Res. Appl.* 10, 159–168. doi: 10.1002/pip.417.
85. Barua, A.K. (1985). Amorphous Silicon Thin Film Solar Cells. 205–215.
86. Di Giacomo, F., Castriotta, L.A., Kosasih, F.U., Di Girolamo, D., Ducati, C., and Di Carlo, A. (2020). Upscaling Inverted Perovskite Solar Cells: Optimization of Laser Scribing for Highly Efficient Mini-Modules. *Micromachines* 11, 1127. doi: 10.3390/mi1121127.
87. Rakocevic, L., Schöpe, G., Turan, B., Genoe, J., Aernouts, T., Haas, S., Gehlhaar, R., and Poortmans, J. (2020). Perovskite modules with 99% geometrical fill factor using point contact interconnections design. *Prog. Photovoltaics Res. Appl.*, 1–8. doi: 10.1002/pip.3312.
88. Westin, P.O., Zimmermann, U., and Edoff, M. (2008). Laser patterning of P2 interconnect via in thin-film CIGS PV modules. *Sol. Energy Mater. Sol. Cells* 92, 1230–1235. doi: 10.1016/j.solmat.2008.04.015.

89. Westin, P.O., Zimmermann, U., Ruth, M., and Edoff, M. (2011). Next generation interconnective laser patterning of CIGS thin film modules. *Sol. Energy Mater. Sol. Cells* 95, 1062–1068. doi: 10.1016/j.solmat.2010.11.015.
90. Wang, Z., Song, Z., Yan, Y., Liu, S. (Frank), and Yang, D. (2019). Perovskite—a Perfect Top Cell for Tandem Devices to Break the S–Q Limit. *Adv. Sci.* 6. doi: 10.1002/advs.201801704.
91. Eperon, G.E., Hörantner, M.T., and Snaith, H.J. (2017). Metal halide perovskite tandem and multiple-junction photovoltaics. *Nat. Rev. Chem.* 1. doi: 10.1038/S41570-017-0095.
92. Werner, J., Niesen, B., and Ballif, C. (2018). Perovskite/Silicon Tandem Solar Cells: Marriage of Convenience or True Love Story? – An Overview. *Adv. Mater. Interfaces* 5, 1–19. doi: 10.1002/admi.201700731.
93. Langenhorst, M., Sautter, B., Schmager, R., Lehr, J., Erik Ahlswede, Powalla, M., Lemmer, U., Richards, B.S., and Paetzold, U. (2018). Energy yield of all thin-film perovskite CIGS tandem solar modules. *Prog. Photovoltaics*. doi: 10.1002/pip.3091.
94. Jiang, S., Bai, Y., Ma, Z., Jin, S., Zou, C., and Tan, Z. (2022). Recent Advances of Monolithic All-Perovskite Tandem Solar Cells From Materials to Devices. *Chinese J. Chem.* 40. doi: 10.1002/cjoc.202100672.
95. Traverse, C.J., Chen, P., and Lunt, R.R. (2018). Lifetime of Organic Salt Photovoltaics. *Adv. Energy Mater.* 8, 1–7. doi: 10.1002/aenm.201703678.
96. Traverse, C.J., Young, M., Suddard-Bangsund, J., Patrick, T., Bates, M., Chen, P., Wingate, B., Lunt, S.Y., Anctil, A., and Lunt, R.R. (2017). Anions for Near-Infrared Selective Organic Salt Photovoltaics. *Sci. Rep.* 7, 1–8. doi: 10.1038/s41598-017-16539-3.
97. Ravishankar, E., Booth, R.E., Saravitz, C., Sederoff, H., Ade, H.W., and O'Connor, B.T. (2020). Achieving Net Zero Energy Greenhouses by Integrating Semitransparent Organic Solar Cells. *Joule* 4, 490–506. doi: 10.1016/j.joule.2019.12.018.
98. Traverse, C.J., Pandey, R., Barr, M.C., and Lunt, R.R. (2017). Emergence of highly transparent photovoltaics for distributed applications. *Nat. Energy* 2, 849–860. doi: 10.1038/s41560-017-0016-9.
99. Almora, O., Baran, D., Bazan, G.C., Berger, C., Cabrera, C.I., Catchpole, K.R., Erten-Ela, S., Guo, F., Hauch, J., Ho-Baillie, A.W.Y., et al. (2021). Device Performance of Emerging Photovoltaic Materials (Version 1). *Adv. Energy Mater.* 11. doi: 10.1002/aenm.202002774.
100. Singh, S.C., Zeng, H., Guo, C., and Cai, W. (2012). Lasers: Fundamentals, Types, and Operations. *Nanomater. Process. Charact. with Lasers*, 1–34. doi: 10.1002/9783527646821.ch1.
101. Weber, H., Herzinger, G., and Poprawe, R. (2005). Laser Fundamentals Volume 1. doi: <https://doi.org/10.1007/b57081>.
102. Bergfeld, S. (2013). Clean Surface Required. *Laser Tech. J.* 10, 20–25. doi:

- 10.1002/latj.201300011.
103. Pflöging, W. (2018). A review of laser electrode processing for development and manufacturing of lithium-ion batteries. *Nanophotonics* 7, 549–573. doi: 10.1515/nanoph-2017-0044.
104. Knüttel, T., Bergfeld, S., and Haas, S. (2013). Laser texturing of surfaces in thin-film silicon photovoltaics - A comparison of potential processes. *J. Laser Micro Nanoeng.* 8, 222–229. doi: 10.2961/jlmn.2013.03.0007.
105. Haas, S. (2010). Untersuchung und Optimierung der Serienschaltung von Silizium-Dünnschicht-Solarmodulen.
106. Domke, M. (2015). Transiente physikalische Mechanismen bei der Laserablation von dünnen Metallschichten.
107. Meyer, A., Sterzl, Y., and Pflöging, W. (2023). High repetition ultrafast laser ablation of graphite and silicon/graphite composite electrodes for lithium-ion batteries. *J. Laser Appl.* 35. doi: 10.2351/7.0001180.
108. Reinhold, C., and Pflöging, W. (2024). Ultrafast laser structuring of high-voltage cathode materials for lithium-ion batteries. *12873*, 36. doi: 10.1117/12.3001737.
109. Musazzi, S., and Perini, U. Springer Series in Optical Sciences 182 Laser-Induced Breakdown Spectroscopy Theory and Applications.
110. Strategic Market Research (2024). Market Dynamics : Drivers , Restraints , and Opportunity . Market Segmentation (Targeting the Right Beam : Segmentation in the Nanosecond Pulsed Semiconductor Laser Market). <https://www.strategicmarketresearch.com/market-report/nanosecond-pulsed-semiconductor-laser-market>.
111. Allied Market Research (2021). Ultrafast Lasers Market Size & Outlook – 2021-2030. <https://www.alliedmarketresearch.com/ultrafast-lasers-market-A12544>.
112. Schultz, C., Fenske, M., Dagar, J., Zeiser, A., Bartelt, A., Schlatmann, R., Unger, E., and Stegemann, B. (2020). Ablation mechanisms of nanosecond and picosecond laser scribing for metal halide perovskite module interconnection – An experimental and numerical analysis. *Sol. Energy* 198, 410–418. doi: 10.1016/j.solener.2020.01.074.
113. Bayer, L., Ye, X., Lorenz, P., and Zimmer, K. (2017). Studies on perovskite film ablation and scribing with ns-, ps- and fs-laser pulses. *Appl. Phys. A Mater. Sci. Process.* 123, 1–8. doi: 10.1007/s00339-017-1234-5.
114. Shirk, M.D. (1999). Ablation of Diamond and Graphite With Experimental Verification. *Iowa State Univ. Digit. Repos.*, 178.
115. Pflöging, W. (2021). Recent progress in laser texturing of battery materials: A review of tuning electrochemical performances, related material development, and prospects for large-scale manufacturing. *Int. J. Extrem. Manuf.* 3. doi: 10.1088/2631-7990/abca84.
116. Garrison, B.J., and Srinivasan, R. (1985). Laser ablation of organic polymers: Microscopic models for photochemical and thermal processes. *J. Appl. Phys.*

- 57, 2909–2914. doi: 10.1063/1.335230.
117. Rist, U., Sterzl, Y., and Pflöging, W. (2024). Laser-induced forward transfer (LIFT) process for flexible construction of advanced 3D silicon anode designs in high-energy lithium-ion batteries. *12873*, 30. doi: 10.1117/12.3003087.
118. Shchatsinin, I. (2009). Chapter 6 Pulse Characterisation Techniques. *Free Clust. Free Mol. Strong Shaped Laser Fields*, 79–94.
119. Liu, J.M. (1982). Simple technique for measurements of pulsed Gaussian-beam spot sizes. *Opt. Lett.* 7, 196. doi: 10.1364/ol.7.000196.
120. Wald, G. (1945). Human vision and the spectrum. *Science (80-.)*. 101, 653–658. doi: 10.1126/science.101.2635.653.
121. Barbur, J.L., and Stockman, A. (2010). Photopic, Mesopic and Scotopic Vision and Changes in Visual Performance. *Encycl. Eye* 3, 323–331.
122. Bowmaker, J.K., and Dartnall, H.J.A. (1980). Visual Pigments of Rods and Cones in a Human Retina. *J. Physiol.*, 501–511. doi: 10.1113/jphysiol.1980.sp013097.
123. Malacara, D. (2011). The Nature of Color. *Color Vis. Color. Theory Appl. Second Ed.*, 1–22. doi: 10.1117/3.881172.ch1.
124. Fairman, H.S., Brill, M.H., and Hemmendinger, H. (1997). How the CIE 1931 color-matching functions were derived from Wright-Guild data. *Color Res. Appl.* 22, 11–23. doi: 10.1002/(SICI)1520-6378(199702)22:1<11::AID-COL4>3.0.CO;2-7.
125. Chen, J., Cranton, W., and Fihn, M. (2016). Handbook of visual display technology. *Handb. Vis. Disp. Technol.*, 1–3564. doi: 10.1007/978-3-319-14346-0.
126. Yang, C., Liu, D., Bates, M., Barr, M.C., and Lunt, R.R. (2019). How to Accurately Report Transparent Solar Cells. *Joule* 3, 1803–1809. doi: 10.1016/j.joule.2019.06.005.
127. Yang, C., Liu, D., Bates, M., Barr, M.C., and Lunt, R.R. (2019). Supplemental Information for How to Report Transparent Solar Cells. *Joule*.
128. Dai, R., Xie, T.B., Gong, W., and Chang, S.P. (2008). A high precision profilometer based on vertical scanning microscopic interferometry. *J. Shanghai Univ.* 12, 255–260. doi: 10.1007/s11741-008-0312-2.
129. Eisgruber, I. L.; Sites, S.R. (1996). Extraction of Individual-cell Photocurrents and Shunt Resistances in Encapsulated Modules using Large-scale Laser Scanning. 4, 63–75.
130. Mundt, L.E., Kwopil, W., Yakoob, M.A., Herterich, J.P., Kohlstadt, M., Wurfel, U., Schubert, M.C., and Glunz, S.W. (2019). Quantitative Local Loss Analysis of Blade-Coated Perovskite Solar Cells. *IEEE J. Photovoltaics* 9, 452–459. doi: 10.1109/JPHOTOV.2018.2888835.
131. Finn, J.R., Hansen, B.R., and Granata, J.E. (2009). Multiple junction cell characterization using the LBIC method: Early results, issues, and pathways to

- improvement. *Conf. Rec. IEEE Photovolt. Spec. Conf.*, 000564–000569. doi: 10.1109/PVSC.2009.5411621.
132. Oussalah, S., Djezzar, B., and Jerisian, R. (2005). A comparative study of different contact resistance test structures dedicated to the power process technology. *Solid. State. Electron.* 49, 1617–1622. doi: 10.1016/j.sse.2005.08.004.
133. Turan, B., Huuskonen, A., Kühn, I., Kirchartz, T., and Haas, S. (2017). Supporting Information Cost Effective Absorber Patterning of Perovskite Solar Cells by Nanosecond Laser Processing.
134. Ritzer, D.B., Abzieher, T., Basibüyük, A., Feeney, T., Laufer, F., Ternes, S., Richards, B.S., Bergfeld, S., and Paetzold, U.W. (2022). Upscaling of perovskite solar modules: The synergy of fully evaporated layer fabrication and all-laser-scribed interconnections. *Prog. Photovoltaics Res. Appl.* 30, 360–373. doi: 10.1002/pip.3489.
135. Sutherland, B.R., and Sargent, E.H. (2016). Perovskite photonic sources. *Nat. Photonics* 10, 295–302. doi: 10.1038/nphoton.2016.62.
136. Jena, A.K., Kulkarni, A., and Miyasaka, T. (2019). Halide Perovskite Photovoltaics: Background, Status, and Future Prospects. *Chem. Rev.* 119, 3036–3103. doi: 10.1021/acs.chemrev.8b00539.
137. De Wolf, S., Holovsky, J., Moon, S.J., Löper, P., Niesen, B., Ledinsky, M., Haug, F.J., Yum, J.H., and Ballif, C. (2014). Organometallic halide perovskites: Sharp optical absorption edge and its relation to photovoltaic performance. *J. Phys. Chem. Lett.* 5, 1035–1039. doi: 10.1021/jz500279b.
138. Kojima, A., Teshima, K., Shirai, Y., and Miyasaka, T. (2009). Organometal halide perovskites as visible-light sensitizers for photovoltaic cells. *J. Am. Chem. Soc.* 131, 6050–6051. doi: 10.1021/ja809598r.
139. Galagan, Y. (2018). Perovskite Solar Cells: Toward Industrial-Scale Methods. *J. Phys. Chem. Lett.* 9, 4326–4335. doi: 10.1021/acs.jpcclett.8b01356.
140. Niu, G., Guo, X., and Wang, L. (2015). Review of recent progress in chemical stability of perovskite solar cells. *J. Mater. Chem. A* 3, 8970–8980. doi: 10.1039/c4ta04994b.
141. Ke, W., and Kanatzidis, M.G. (2019). Prospects for low-toxicity lead-free perovskite solar cells. *Nat. Commun.* 10, 1–4. doi: 10.1038/s41467-019-08918-3.
142. Salhi, B., Wudil, Y.S., Hossain, M.K., Al-Ahmed, A., and Al-Sulaiman, F.A. (2018). Review of recent developments and persistent challenges in stability of perovskite solar cells. *Renew. Sustain. Energy Rev.* 90, 210–222. doi: 10.1016/j.rser.2018.03.058.
143. Snaith, H.J. (2018). Present status and future prospects of perovskite photovoltaics. *Nat. Mater.* 17, 372–376. doi: 10.1038/s41563-018-0071-z.
144. Saliba, M., Correa-Baena, J.P., Wolff, C.M., Stolterfoht, M., Phung, N., Albrecht, S., Neher, D., and Abate, A. (2018). How to Make over 20% Efficient Perovskite

- Solar Cells in Regular (n-i-p) and Inverted (p-i-n) Architectures. *Chem. Mater.* 30, 4193–4201. doi: 10.1021/acs.chemmater.8b00136.
145. Jiang, Q., Zhao, Y., Zhang, X., Yang, X., Chen, Y., Chu, Z., Ye, Q., Li, X., Yin, Z., and You, J. (2019). Surface passivation of perovskite film for efficient solar cells. *Nat. Photonics* 13, 460–466. doi: 10.1038/s41566-019-0398-2.
146. Jeong, M., Choi, I.W., Go, E.M., Cho, Y., Kim, M., Lee, B., Jeong, S., Jo, Y., Choi, H.W., Lee, J., et al. (2020). Stable perovskite solar cells with efficiency exceeding 24.8% and 0.3-V voltage loss. *Science (80-.)*. 369, 1615–1620. doi: 10.1126/science.abb7167.
147. Lee, S.W., Bae, S., Kim, D., and Lee, H.S. (2020). Historical Analysis of High-Efficiency, Large-Area Solar Cells: Toward Upscaling of Perovskite Solar Cells. *Adv. Mater.* 2002202, 1–25. doi: 10.1002/adma.202002202.
148. Ulična, S., Dou, B., Kim, D.H., Zhu, K., Walls, J.M., Bowers, J.W., and Van Hest, M.F.A.M. (2018). Scalable Deposition of High-Efficiency Perovskite Solar Cells by Spray-Coating. *ACS Appl. Energy Mater.* 1, 1853–1857. doi: 10.1021/acsaem.8b00328.
149. Yang, M., Li, Z., Reese, M.O., Reid, O.G., Kim, D.H., Siol, S., Klein, T.R., Yan, Y., Berry, J.J., Van Hest, M.F.A.M., et al. (2017). Perovskite ink with wide processing window for scalable high-efficiency solar cells. *Nat. Energy* 2, 1–9. doi: 10.1038/nenergy.2017.38.
150. Dai, X., Deng, Y., van Brackle, C.H., and Huang, J. (2019). Meniscus fabrication of halide perovskite thin films at high throughput for large area and low-cost solar panels. *Int. J. Extrem. Manuf.* 1. doi: 10.1088/2631-7990/ab263e.
151. Deng, Y., Xu, S., Chen, S., Xiao, X., Zhao, J., and Huang, J. (2021). Defect compensation in formamidinium – caesium perovskites for highly efficient solar mini-modules with improved photostability. *Nat. Energy* 6, 633–641.
152. Giacomo, F. Di, Fledderus, H., Gorter, H., Kirchner, G., Vries, I. De, Dogan, I., Verhees, W., Zardetto, V., Najafi, M., Zhang, D., et al. (2018). Large area 140 cm² perovskite solar modules made by sheet to sheet and roll to roll fabrication with 14.5% efficiency. *2018 IEEE 7th World Conf. Photovolt. Energy Conversion, WCPEC 2018 - A Jt. Conf. 45th IEEE PVSC, 28th PVSEC 34th EU PVSEC*, 2795–2798. doi: 10.1109/PVSC.2018.8548157.
153. Ritzer, D.B., Abzieher, T., Basibüyük, A., Feeney, T., Laufer, F., and Ternes, S. Supporting Information Upscaling of Perovskite Solar Modules: The Synergy of Fully-Evaporated Layer Fabrication and All-Laser-Scribed Interconnections.
154. Dou, B., Whitaker, J.B., Bruening, K., Moore, D.T., Wheeler, L.M., Ryter, J., Breslin, N.J., Berry, J.J., Garner, S.M., Barnes, F.S., et al. (2018). Roll-to-Roll Printing of Perovskite Solar Cells. *ACS Energy Lett.* 3, 2558–2565. doi: 10.1021/acsenerylett.8b01556.
155. Hwang, K., Jung, Y.S., Heo, Y.J., Scholes, F.H., Watkins, S.E., Subbiah, J., Jones, D.J., Kim, D.Y., and Vak, D. (2015). Toward large scale roll-to-roll production of fully printed perovskite solar cells. *Adv. Mater.* 27, 1241–1247. doi: 10.1002/adma.201404598.

156. Xu, F., Liu, J., Subbiah, A.S., Liu, W., Kang, J., Harrison, G.T., Yang, X., Isikgor, F.H., Aydin, E., Bastiani, M. De, et al. (2021). Potassium Thiocyanate-Assisted Enhancement of Slot-Die-Coated Perovskite Films for High-Performance Solar Cells. *2000044*. doi: 10.1002/smssc.202000044.
157. Gao, L.L., Li, C.X., Li, C.J., and Yang, G.J. (2017). Large-area high-efficiency perovskite solar cells based on perovskite films dried by the multi-flow air knife method in air. *J. Mater. Chem. A* 5, 1548–1557. doi: 10.1039/c6ta09565h.
158. Odabaşı, Ç., and Yıldırım, R. (2020). Assessment of Reproducibility, Hysteresis, and Stability Relations in Perovskite Solar Cells Using Machine Learning. *Energy Technol.* 8, 1–12. doi: 10.1002/ente.201901449.
159. Zhu, X., Yang, D., Yang, R., Yang, B., Yang, Z., Ren, X., Zhang, J., Niu, J., Feng, J., and Liu, S. (2017). Superior stability for perovskite solar cells with 20% efficiency using vacuum co-evaporation. *Nanoscale* 9, 12316–12323. doi: 10.1039/c7nr04501h.
160. Ono, L.K., Leyden, M.R., Wang, S., and Qi, Y. (2016). Organometal halide perovskite thin films and solar cells by vapor deposition. *J. Mater. Chem. A* 4, 6693–6713. doi: 10.1039/c5ta08963h.
161. Roß, M., Gil-Escrig, L., Al-Ashouri, A., Tockhorn, P., Jošt, M., Rech, B., and Albrecht, S. (2020). Co-Evaporated p-i-n Perovskite Solar Cells beyond 20% Efficiency: Impact of Substrate Temperature and Hole-Transport Layer. *ACS Appl. Mater. Interfaces* 12, 39261–39272. doi: 10.1021/acsami.0c10898.
162. Gil-Escrig, L., Momblona, C., La-Placa, M.G., Boix, P.P., Sessolo, M., and Bolink, H.J. (2018). Vacuum Deposited Triple-Cation Mixed-Halide Perovskite Solar Cells. *Adv. Energy Mater.* 8. doi: 10.1002/aenm.201703506.
163. Longo, G., Momblona, C., La-Placa, M.G., Gil-Escrig, L., Sessolo, M., and Bolink, H.J. (2018). Fully Vacuum-Processed Wide Band Gap Mixed-Halide Perovskite Solar Cells. *ACS Energy Lett.* 3, 214–219. doi: 10.1021/acsenerylett.7b01217.
164. Yu, Y., Zhao, D., Grice, C.R., Meng, W., Wang, C., Liao, W., Cimaroli, A.J., Zhang, H., Zhu, K., and Yan, Y. (2016). Thermally evaporated methylammonium tin triiodide thin films for lead-free perovskite solar cell fabrication. *RSC Adv.* 6, 90248–90254. doi: 10.1039/c6ra19476a.
165. Abzieher, T., Moghadamzadeh, S., Schackmar, F., Eggers, H., Sutterlüti, F., Farooq, A., Kojda, D., Habicht, K., Schmager, R., Mertens, A., et al. (2019). Electron-Beam-Evaporated Nickel Oxide Hole Transport Layers for Perovskite-Based Photovoltaics. *Adv. Energy Mater.* 9, 1–13. doi: 10.1002/aenm.201802995.
166. Li, J., Wang, H., Chin, X.Y., Dewi, H.A., Vergeer, K., Goh, T.W., Lim, J.W.M., Lew, J.H., Loh, K.P., Soci, C., et al. (2020). Highly Efficient Thermally Co-evaporated Perovskite Solar Cells and Mini-modules. *Joule* 4, 1035–1053. doi: 10.1016/j.joule.2020.03.005.
167. Turan, B., Huuskonen, A., Kühn, I., Kirchartz, T., and Haas, S. (2017). Cost-Effective Absorber Patterning of Perovskite Solar Cells by Nanosecond Laser Processing. *Sol. RRL* 1, 1700003. doi: 10.1002/solr.201700003.

168. Matteocci, F., Razza, S., Di Giacomo, F., Casaluci, S., Mincuzzi, G., Brown, T.M., D'Epifanio, A., Licocchia, S., and Di Carlo, A. (2014). Solid-state solar modules based on mesoscopic organometal halide perovskite: A route towards the up-scaling process. *Phys. Chem. Chem. Phys.* *16*, 3918–3923. doi: 10.1039/c3cp55313b.
169. Lei, T., Li, F., Zhu, X., Dong, H., Niu, Z., Ye, S., Zhao, W., Xi, J., Jiao, B., Ding, L., et al. (2020). Flexible Perovskite Solar Modules with Functional Layers Fully Vacuum Deposited. *Sol. RRL* *2000292*, 1–9. doi: 10.1002/solr.202000292.
170. Schultz, C., Schneider, F., Neubauer, A., Bartelt, A., Jost, M., Rech, B., Schlatmann, R., Albrecht, S., and Stegemann, B. (2018). Evidence of PbI₂ - Containing Debris Upon P2 Nanosecond Laser Patterning of Perovskite Solar Cells. *IEEE J. Photovoltaics* *8*, 1244–1251. doi: 10.1109/JPHOTOV.2018.2858934.
171. Du, M., Zhu, X., Wang, L., Wang, H., Feng, J., Jiang, X., Cao, Y., Sun, Y., Duan, L., Jiao, Y., et al. (2020). High-Pressure Nitrogen-Extraction and Effective Passivation to Attain Highest Large-Area Perovskite Solar Module Efficiency. *Adv. Mater.* *32*, 1–10. doi: 10.1002/adma.202004979.
172. Pisoni, S., Fu, F., Widmer, R., Carron, R., Moser, T., Groening, O., Tiwari, A.N., and Buecheler, S. (2018). Impact of interlayer application on band bending for improved electron extraction for efficient flexible perovskite mini-modules. *Nano Energy* *49*, 300–307. doi: 10.1016/j.nanoen.2018.04.056.
173. Walter, A., Moon, S.J., Kamino, B.A., Lofgren, L., Sacchetto, D., Matteocci, F., Taheri, B., Bailat, J., Di Carlo, A., Ballif, C., et al. (2018). Closing the cell-to-module efficiency gap: A fully laser scribed perovskite minimodule with 16% steady-state aperture area efficiency. *IEEE J. Photovoltaics* *8*, 151–155. doi: 10.1109/JPHOTOV.2017.2765082.
174. Schultz, C., Fenske, M., Dagar, J., Zeiser, A., Bartelt, A., Schlatmann, R., Unger, E., and Stegemann, B. (2020). Ablation mechanisms of nanosecond and picosecond laser scribing for metal halide perovskite module interconnection – An experimental and numerical analysis. *Sol. Energy* *198*, 410–418. doi: 10.1016/j.solener.2020.01.074.
175. Stegemann, B., Fink, F., Endert, H., Schüle, M., Schultz, C., Quaschnig, V., Niederhofer, J., and Pahl, H.-U. (2012). Novel concept for laser patterning of thin film solar cells. *Laser Tech. J.* *9*, 25–29. doi: 10.1002/latj.201290004.
176. Ren, A., Lai, H., Hao, X., Tang, Z., Xu, H., Yu Jeco, B.M.F., Watanabe, K., Wu, L., Zhang, J., Sugiyama, M., et al. (2020). Efficient Perovskite Solar Modules with Minimized Nonradiative Recombination and Local Carrier Transport Losses. *Joule* *4*, 1263–1277. doi: 10.1016/j.joule.2020.04.013.
177. Li, J., Dewi, H.A., Wang, H., Lew, J.H., Mathews, N., Mhaisalkar, S., and Bruno, A. (2020). Design of Perovskite Thermally Co-Evaporated Highly Efficient Mini-Modules with High Geometrical Fill Factors. *Sol. RRL* *4*, 1–8. doi: 10.1002/solr.202000473.
178. Abzieher, T., Feeney, T., Schackmar, F., Donie, Y.J., Hossain, I.M., Schwenzer, J.A., Hellmann, T., Mayer, T., Powalla, M., and Paetzold, U.W. (2021). From

- Groundwork to Efficient Solar Cells : On the Importance of the Substrate Material in Co-Evaporated Perovskite Solar Cells. *2104482*. doi: 10.1002/adfm.202104482.
179. Rakocevic, L., Gehlhaar, R., Jaysankar, M., Song, W., Aernouts, T., Fledderus, H., and Poortmans, J. (2018). Translucent, color-neutral and efficient perovskite thin film solar modules. *J. Mater. Chem. C* **6**, 3034–3041. doi: 10.1039/c7tc05863b.
 180. Eggers, H., Schackmar, F., Abzieher, T., Sun, Q., Lemmer, U., Vaynzof, Y., Richards, B.S., Hernandez-Sosa, G., and Paetzold, U.W. (2019). Inkjet-Printed Micrometer-Thick Perovskite Solar Cells with Large Columnar Grains. *Adv. Energy Mater.* *1903184*. doi: 10.1002/aenm.201903184.
 181. Ahmadian-Yazdi, M.-R., and Eslamian, M. (2021). Effect of Marangoni Convection on the Perovskite Thin Liquid Film Deposition. *Langmuir*. doi: 10.1021/acs.langmuir.0c03120.
 182. Schackmar, F., Eggers, H., Frericks, M., Richards, B.S., Lemmer, U., Hernandez-Sosa, G., and Paetzold, U.W. (2021). Perovskite Solar Cells with All-Inkjet-Printed Absorber and Charge Transport Layers. *Adv. Mater. Technol.* **6**. doi: 10.1002/admt.202000271.
 183. National Renewable Energy Laborator (2023). Champion Module Efficiencies. **1**.
 184. Ding, Y., Ding, B., Kanda, H., Usiobo, O.J., Gallet, T., Yang, Z., Liu, Y., Huang, H., Sheng, J., Liu, C., et al. (2022). Single-crystalline TiO₂ nanoparticles for stable and efficient perovskite modules. *Nat. Nanotechnol.* **17**, 598–605. doi: 10.1038/s41565-022-01108-1.
 185. Zhang, K., Ding, B., Wang, C., Shi, P., Zhang, X., Liu, C., Yang, Y., Gao, X., Wang, R., Tao, L., et al. (2023). Highly Efficient and Stable FAPbI₃ Perovskite Solar Cells and Modules Based on Exposure of the (011) Facet. *Nano-Micro Lett.* **15**, 1–11. doi: 10.1007/s40820-023-01103-8.
 186. Yang, D., Yang, R., Zhang, C., Ye, T., Wang, K., Hou, Y., Zheng, L., Priya, S., and Liu, S. (Frank) (2023). Highest-Efficiency Flexible Perovskite Solar Module by Interface Engineering for Efficient Charge-Transfer. *Adv. Mater.* *2302484*, 1–7. doi: 10.1002/adma.202302484.
 187. Li, H., Zhou, J., Tan, L., Li, M., Jiang, C., Wang, S., Zhao, X., Liu, Y., Zhang, Y., Ye, Y., et al. (2022). Sequential vacuum-evaporated perovskite solar cells with more than 24% efficiency. *Sci. Adv.* **8**, 1–9. doi: 10.1126/sciadv.abo7422.
 188. Chung, J., Kim, S.W., Li, Y., Mariam, T., Wang, X., Rajakaruna, M., Saeed, M.M., Abudulimu, A., Shin, S.S., Guye, K.N., et al. (2023). Engineering Perovskite Precursor Inks for Scalable Production of High-Efficiency Perovskite Photovoltaic Modules. *Adv. Energy Mater.* **13**, 1–10. doi: 10.1002/aenm.202300595.
 189. Nejand, B.A., Ritzer, D.B., Hu, H., Schackmar, F., Moghadamzadeh, S., Feeney, T., Singh, R., Laufer, F., Schmager, R., Azmi, R., et al. (2022). Scalable two-terminal all-perovskite tandem solar modules with a 19.1% efficiency. *Nat. Energy* **7**, 620–630. doi: 10.1038/s41560-022-01059-w.

190. Khan, F., Rezgui, B.D., Khan, M.T., and Al-Sulaiman, F. (2022). Perovskite-based tandem solar cells: Device architecture, stability, and economic perspectives. *Renew. Sustain. Energy Rev.* 165. doi: 10.1016/j.rser.2022.112553.
191. Haegel, N.M., Verlinden, P., Victoria, M., Altermatt, P., Atwater, H., Barnes, T., Breyer, C., Case, C., De Wolf, S., Deline, C., et al. (2023). Photovoltaics at multi-terawatt scale: Waiting is not an option. *Science (80-)*. 380, 39–42. doi: 10.1126/science.adf6957.
192. Duan, L., Walter, D., Chang, N., Bullock, J., Kang, D., Phang, S.P., Weber, K., White, T., Macdonald, D., Catchpole, K., et al. (2023). Stability challenges for the commercialization of perovskite–silicon tandem solar cells. *Nat. Rev. Mater.* 8, 261–281. doi: 10.1038/s41578-022-00521-1.
193. Kothandaraman, R.K., Jiang, Y., Feurer, T., Tiwari, A.N., and Fu, F. (2020). Near-Infrared-Transparent Perovskite Solar Cells and Perovskite-Based Tandem Photovoltaics. *Small Methods* 4, 1–56. doi: 10.1002/smtd.202000395.
194. Bett, A.J., Schulze, P.S.C., Winkler, K.M., Kabakli, Ö.S., Ketterer, I., Mundt, L.E., Reichmuth, S.K., Siefer, G., Cojocaru, L., Tutsch, L., et al. (2020). Two-terminal Perovskite silicon tandem solar cells with a high-Bandgap Perovskite absorber enabling voltages over 1.8 V. *Prog. Photovoltaics Res. Appl.* 28, 99–110. doi: 10.1002/ppp.3208.
195. Löper, P., Moon, S.J., Martín De Nicolas, S., Niesen, B., Ledinsky, M., Nicolay, S., Bailat, J., Yum, J.H., De Wolf, S., and Ballif, C. (2015). Organic-inorganic halide perovskite/crystalline silicon four-terminal tandem solar cells. *Phys. Chem. Chem. Phys.* 17, 1619–1629. doi: 10.1039/c4cp03788j.
196. Bailie, C.D., Christoforo, M.G., Mailoa, J.P., Bowring, A.R., Unger, E.L., Nguyen, W.H., Burschka, J., Pellet, N., Lee, J.Z., Grätzel, M., et al. (2015). Semi-transparent perovskite solar cells for tandems with silicon and CIGS. *Energy Environ. Sci.* 8, 956–963. doi: 10.1039/c4ee03322a.
197. Mailoa, J.P., Bailie, C.D., Johlin, E.C., Hoke, E.T., Akey, A.J., Nguyen, W.H., McGehee, M.D., and Buonassisi, T. (2015). A 2-terminal perovskite/silicon multijunction solar cell enabled by a silicon tunnel junction. *Appl. Phys. Lett.* 106. doi: 10.1063/1.4914179.
198. Solliance Solar Research (2022). Four terminal perovskite-silicon PV tandem devices hit 30% efficiency. 5. <https://www.solliance.eu/2022/four-terminal-perovskite-silicon-pv-tandem-devices-hit-30-efficiency/>.
199. BELLINI, E. (2024). KAUST claims 33 . 7 % efficiency for perovskite / silicon tandem solar cell. *PV Mag. Int.*, 5. <https://www.pv-magazine.com/2023/05/30/kaust-claims-33-7-efficiency-for-perovskite-silicon-tandem-solar-cell/>.
200. Feeney, T., Hossain, I.M., Gharibzadeh, S., Gota, F., Singh, R., Fassel, P., Mertens, A., Farag, A., Becker, J.P., Paetel, S., et al. (2022). Four-Terminal Perovskite/Copper Indium Gallium Selenide Tandem Solar Cells: Unveiling the Path to >27% in Power Conversion Efficiency. *Sol. RRL* 6. doi: 10.1002/solr.202200662.

201. Jošt, M., Köhnen, E., Al-Ashouri, A., Bertram, T., Tomšič, Š., Magomedov, A., Kasparavicius, E., Kodalle, T., Lipovšek, B., Getautis, V., et al. (2022). Perovskite/CIGS Tandem Solar Cells: From Certified 24.2% toward 30% and beyond. *ACS Energy Lett.* *7*, 1298–1307. doi: 10.1021/acsenergylett.2c00274.
202. EPKI (2019). Perovskite-based photovoltaics: A unique chance for European PV-industry A White Paper from the European Perovskite Initiative.
203. Heo, J.H., and Im, S.H. (2016). CH₃NH₃PbBr₃–CH₃NH₃PbI₃ Perovskite–Perovskite Tandem Solar Cells with Exceeding 2.2 V Open Circuit Voltage. *Adv. Mater.* *28*, 5121–5125. doi: 10.1002/adma.201501629.
204. Lee, K.M., Chen, K.S., Wu, J.R., Lin, Y.D., Yu, S.M., and Chang, S.H. (2018). Highly efficient and stable semi-transparent perovskite solar modules with a trilayer anode electrode. *Nanoscale* *10*, 17699–17704. doi: 10.1039/c8nr06095a.
205. Lee, K.M., Chen, K.S., Wu, J.R., Lin, Y.D., Yu, S.M., and Chang, S.H. (2018). Si: Highly efficient and stable semi-transparent perovskite solar modules with a trilayer anode electrode. *Nanoscale* *10*, 17699–17704. doi: 10.1039/c8nr06095a.
206. Rai, M., Yuan, Z., Sadhu, A., Leow, S.W., Etgar, L., Magdassi, S., and Wong, L.H. (2021). Multimodal Approach towards Large Area Fully Semitransparent Perovskite Solar Module. *Adv. Energy Mater.* *11*, 1–10. doi: 10.1002/aenm.202102276.
207. Finkenauer, B.P., Akriti, Ma, K., and Dou, L. (2022). Degradation and Self-Healing in Perovskite Solar Cells. *ACS Appl. Mater. Interfaces* *14*, 24073–24088. doi: 10.1021/acsaami.2c01925.
208. Lin, B.Q., Huang, C.P., Tian, K.Y., Lee, P.H., Su, W.F., and Xu, L. (2022). Laser Patterning Technology Based on Nanosecond Pulsed Laser for Manufacturing Bifacial Perovskite Solar Modules. *Int. J. Precis. Eng. Manuf. - Green Technol.* *10*, 123–139. doi: 10.1007/s40684-022-00421-3.
209. Gu, H., Fei, C., Yang, G., Chen, B., Uddin, M.A., Zhang, H., Ni, Z., Jiao, H., Xu, W., Yan, Z., et al. (2023). Design optimization of bifacial perovskite minimodules for improved efficiency and stability. *Nat. Energy* *8*, 675–684. doi: 10.1038/s41560-023-01254-3.
210. Dai, X., Chen, S., Jiao, H., Zhao, L., Wang, K., Ni, Z., Yu, Z., Chen, B., Gao, Y., and Huang, J. (2022). Efficient monolithic all-perovskite tandem solar modules with small cell-to-module derate. *Nat. Energy* *7*, 923–931. doi: 10.1038/s41560-022-01102-w.
211. Ritzer, D.B., Abdollahi Nejand, B., Ruiz-Preciado, M.A., Gharibzadeh, S., Hu, H., Diercks, A., Feeney, T., Richards, B.S., Abzieher, T., and Paetzold, U.W. (2023). Translucent perovskite photovoltaics for building integration. *Energy Environ. Sci.* doi: 10.1039/d2ee04137e.
212. Gholami, H., Røstvik, H.N., and Müller-Eie, D. (2019). Holistic economic analysis of building integrated photovoltaics (BIPV) system: Case studies evaluation. *Energy Build.* *203*. doi: 10.1016/j.enbuild.2019.109461.

213. Heinsteinst, P., Ballif, C., and Perret-Aebi, L.E. (2013). Building integrated photovoltaics (BIPV): Review, potentials, barriers and myths. *Green* 3, 125–156. doi: 10.1515/green-2013-0020.
214. US Energy Information Administration EIA (2016). Commercial Buildings Energy Consumption Survey (CBECS) Data (US Energy Information Administration, 2012). *Commer. Build. Energy Consum. Surv.*, Table B1.
215. Li, Z., Ma, T., Yang, H., Lu, L., and Wang, R. (2021). Transparent and Colored Solar Photovoltaics for Building Integration. *Sol. RRL* 5, 1–21. doi: 10.1002/solr.202000614.
216. Jakica, N. (2018). State-of-the-art review of solar design tools and methods for assessing daylighting and solar potential for building-integrated photovoltaics. *Renew. Sustain. Energy Rev.* 81, 1296–1328. doi: 10.1016/j.rser.2017.05.080.
217. He, Y., and Schnabel, M.A. (2018). An approach for daylight calculation of a building integrated photovoltaic (BIPV) Façade. *Archit. Sci. Rev.* 61, 226–233. doi: 10.1080/00038628.2018.1470964.
218. Lee, K., Um, H.D., Choi, D., Park, J., Kim, N., Kim, H., and Seo, K. (2020). The Development of Transparent Photovoltaics. *Cell Reports Phys. Sci.* 1, 100143. doi: 10.1016/j.xcrp.2020.100143.
219. Liu, D., Yang, C., and Lunt, R.R. (2018). Halide Perovskites for Selective Ultraviolet-Harvesting Transparent Photovoltaics. *Joule* 2, 1827–1837. doi: 10.1016/j.joule.2018.06.004.
220. Liu, G., Wu, C., Zhang, Z., Chen, Z., Xiao, L., and Qu, B. (2020). Ultraviolet-Protective Transparent Photovoltaics Based on Lead-Free Double Perovskites at Solar RRL.
221. Li, Y., Ji, C., Qu, Y., Huang, X., Hou, S., Li, C.Z., Liao, L.S., Guo, L.J., and Forrest, S.R. (2019). Enhanced Light Utilization in Semitransparent Organic Photovoltaics Using an Optical Outcoupling Architecture. *Adv. Mater.* 31, 1–8. doi: 10.1002/adma.201903173.
222. Zhang, X., Qian, Y., Ling, X., Wang, Y., Zhang, Y., Shi, J., Shi, Y., Yuan, J., and Ma, W. (2020). α -CsPbBr₃Perovskite Quantum Dots for Application in Semitransparent Photovoltaics. *ACS Appl. Mater. Interfaces* 12, 27307–27315. doi: 10.1021/acsami.0c07667.
223. Liu, D., Yang, C., Chen, P., Bates, M., Han, S., Askeland, P., and Lunt, R.R. (2019). Lead Halide Ultraviolet-Harvesting Transparent Photovoltaics with an Efficiency Exceeding 1%. *ACS Appl. Energy Mater.* 2, 3972–3978. doi: 10.1021/acsaem.9b00270.
224. Yang, C., Sheng, W., Moemeni, M., Bates, M., Herrera, C.K., Borhan, B., and Lunt, R.R. (2021). Ultraviolet and Near-Infrared Dual-Band Selective-Harvesting Transparent Luminescent Solar Concentrators. *Adv. Energy Mater.* 11. doi: 10.1002/aenm.202003581.
225. Huaultmé, Q., Mwalukuku, V.M., Joly, D., Liotier, J., Kervella, Y., Maldivi, P., Narbey, S., Oswald, F., Riquelme, A.J., Anta, J.A., et al. (2020). Photochromic

- dye-sensitized solar cells with light-driven adjustable optical transmission and power conversion efficiency. *Nat. Energy* 5, 468–477. doi: 10.1038/s41560-020-0624-7.
226. Andrés Castán, J.M., Mwalukuku, V.M., Riquelme, A.J., Liotier, J., Hualmé, Q., Anta, J.A., Maldivi, P., and Demadrille, R. (2022). Photochromic spiro-indoline naphthoxazines and naphthopyrans in dye-sensitized solar cells. *Mater. Chem. Front.*, 2994–3005. doi: 10.1039/d2qm00375a.
227. Almora, O., Baran, D., Bazan, G.C., Berger, C., Cabrera, C.I., Catchpole, K.R., Erten-Ela, S., Guo, F., Hauch, J., Ho-Baillie, A.W.Y., et al. (2021). Device Performance of Emerging Photovoltaic Materials (Version 2). *Adv. Energy Mater.* 11. doi: 10.1002/aenm.202102526.
228. Shankar, A., Vijayakumar, K., and Babu, B.C. Techno-economic and energy assessment of building integrated photovoltaic module as an envelope of the building at International Transactions on Electrical Energy Systems, doi: <https://doi.org/10.1002/2050-7038.13105> doi: <https://doi.org/10.1002/2050-7038.13105>.
229. Lunt, R.R. (2012). Theoretical limits for visibly transparent photovoltaics. *Appl. Phys. Lett.* 101, 1–4. doi: 10.1063/1.4738896.
230. Lunt, R.R., and Bulovic, V. (2011). Transparent, near-infrared organic photovoltaic solar cells for window and energy-scavenging applications. *Appl. Phys. Lett.* 98. doi: 10.1063/1.3567516.
231. Chen, C.C., Dou, L., Zhu, R., Chung, C.H., Song, T. Bin, Zheng, Y.B., Hawks, S., Li, G., Weiss, P.S., and Yang, Y. (2012). Visibly transparent polymer solar cells produced by solution processing. *ACS Nano* 6, 7185–7190. doi: 10.1021/nn3029327.
232. Zuo, L., Shi, X., Fu, W., and Jen, A.K.Y. (2019). Highly Efficient Semitransparent Solar Cells with Selective Absorption and Tandem Architecture. *Adv. Mater.* 31, 1–9. doi: 10.1002/adma.201901683.
233. Yang, C., Moemeni, M., Bates, M., Sheng, W., Borhan, B., and Lunt, R.R. (2020). High-Performance Near-Infrared Harvesting Transparent Luminescent Solar Concentrators. *Adv. Opt. Mater.* 8, 1–6. doi: 10.1002/adom.201901536.
234. Yang, C., Atwater, H.A., Baldo, M.A., Baran, D., Barile, C.J., Barr, M.C., Bates, M., Bawendi, M.G., Bergren, M.R., Borhan, B., et al. (2022). Consensus statement: Standardized reporting of power-producing luminescent solar concentrator performance. *Joule* 6, 8–15. doi: 10.1016/j.joule.2021.12.004.
235. Yang, C., and Lunt, R.R. (2017). Limits of Visibly Transparent Luminescent Solar Concentrators. *Adv. Opt. Mater.* 5, 1–10. doi: 10.1002/adom.201600851.
236. Glaswerke Arnold Merkendorf GmbH & Co. (2008). Solar Architecture. *Voltarlux*. doi: 10.11129/detail.9783034614542.28.
237. Schott Solar GmbH (2010). ASI THRU thin-film solar module, semitransparent.
238. Romani, J., Ramos, A., and Salom, J. (2022). Review of Transparent and Semi-Transparent Building-Integrated Photovoltaics for Fenestration Application

- Modeling in Building Simulations. *Energies* 15. doi: 10.3390/en15093286.
239. Polysolar Limited (2022). PS-CT series panels.
240. Onyx Solar Group LLC (2022). Amorphous Silicon PV Glass.
241. Yang, D., Zhang, X., Hou, Y., Wang, K., Ye, T., Yoon, J., Wu, C., Sanghadasa, M., Liu, S. (Frank), and Priya, S. (2021). 28.3%-Efficiency Perovskite/Silicon Tandem Solar Cell By Optimal Transparent Electrode for High Efficient Semitransparent Top Cell. *Nano Energy* 84, 105934. doi: 10.1016/j.nanoen.2021.105934.
242. Chaturvedi, N., Gasparini, N., Corzo, D., Brandie, J., Wehbe, N., Troughton, J., and Baran, D. (2021). All Slot-Die Coated Non-Fullerene Organic Solar Cells with PCE 11%. *Adv. Funct. Mater.* 31. doi: 10.1002/adfm.202009996.
243. Meiss, J., Menke, T., Leo, K., Urich, C., Gnehr, W.M., Sonntag, S., Pfeiffer, M., and Riede, M. (2011). Highly efficient semitransparent tandem organic solar cells with complementary absorber materials. *Appl. Phys. Lett.* 99, 2009–2012. doi: 10.1063/1.3610551.
244. Li, X., Xia, R., Yan, K., Ren, J., Yip, H.L., Li, C.Z., and Chen, H. (2020). Semitransparent Organic Solar Cells with Vivid Colors. *ACS Energy Lett.* 5, 3115–3123. doi: 10.1021/acsenenergylett.0c01554.
245. Hu, Z., Wang, J., Ma, X., Gao, J., Xu, C., Wang, X., Zhang, X., Wang, Z., and Zhang, F. (2021). Semitransparent organic solar cells exhibiting 13.02% efficiency and 20.2% average visible transmittance. *J. Mater. Chem. A* 9, 6797–6804. doi: 10.1039/d1ta01135a.
246. Pascual-San-José, E., Sadoughi, G., Lucera, L., Stella, M., Martínez-Ferrero, E., Morse, G.E., Campoy-Quiles, M., and Burgués-Ceballos, I. (2020). Towards photovoltaic windows: Scalable fabrication of semitransparent modules based on non-fullerene acceptors via laser-patterning, doi: 10.1039/d0ta02994g doi: 10.1039/d0ta02994g.
247. Hu, Z., Wang, J., Ma, X., Gao, J., Xu, C., Yang, K., Wang, Z., Zhang, J., and Zhang, F. (2020). A critical review on semitransparent organic solar cells. *Nano Energy* 78, 105376. doi: 10.1016/j.nanoen.2020.105376.
248. Polysolar Limited (2021). PS-MC-ST Series panels.
249. Aleo Solar GmbH (2001). Aleo Solar PV Isolierglas Isolante.
250. Glaswerke Arnold GmbH & Co. KG (2011). VOLTARLUX ASI-Glas.
251. Park, J., Lee, K., and Seo, K. (2022). 25-Cm² Glass-Like Transparent Crystalline Silicon Solar Cells With an Efficiency of 14.5%. *Cell Reports Phys. Sci.* 3, 100715. doi: 10.1016/j.xcrp.2021.100715.
252. Tsai, C.Y., and Tsai, C.Y. (2020). See-through, light-through, and color modules for large-area tandem amorphous/microcrystalline silicon thin-film solar modules: Technology development and practical considerations for building-integrated photovoltaic applications. *Renew. Energy* 145, 2637–2646. doi: 10.1016/j.renene.2019.08.029.

253. Kuk, S., Wang, Z., Yu, H., Nam, C.Y., Jeong, J. hyun, and Hwang, D. (2019). Nanosecond laser scribing for see-through CIGS thin film solar cells. *Prog. Photovoltaics Res. Appl.*, 135–147. doi: 10.1002/ppp.3219.
254. Eperon, G.E., Burlakov, V.M., Goriely, A., and Snaith, H.J. (2014). Neutral color semitransparent microstructured perovskite solar cells. *ACS Nano* 8, 591–598. doi: 10.1021/nn4052309.
255. Eggers, H., Gharibzadeh, S., Koch, S., Schackmar, F., and Ritzer, D. (2022). Perovskite Solar Cells with Vivid, Angle-Invariant and Customizable Inkjet Printed Colorization for Building-Integrated Photovoltaics. *Sol. RRL* 6. doi: solr.202100897.
256. Xiao, K., Lin, Y.H., Zhang, M., Oliver, R.D.J., Wang, X., Liu, Z., Luo, X., Li, J., Lai, D., Luo, H., et al. (2022). Scalable processing for realizing 21.7%-efficient all-perovskite tandem solar modules. *Science (80-.)*. 376, 762–767. doi: 10.1126/science.abn7696.
257. Eggers, H., Schackmar, F., Abzieher, T., Sun, Q., Lemmer, U., Vaynzof, Y., Richards, B.S., Hernandez-Sosa, G., and Paetzold, U.W. (2020). Inkjet-Printed Micrometer-Thick Perovskite Solar Cells with Large Columnar Grains. *Adv. Energy Mater.* 10. doi: 10.1002/aenm.201903184.
258. Li, J., Dagar, J., Shargaieva, O., Flatken, M.A., Köbler, H., Fenske, M., Schultz, C., Stegemann, B., Just, J., Többens, D.M., et al. (2021). 20.8% Slot-Die Coated MAPbI₃ Perovskite Solar Cells by Optimal DMSO-Content and Age of 2-ME Based Precursor Inks. *Adv. Energy Mater.* 11. doi: 10.1002/aenm.202003460.
259. Qiu, L., He, S., Liu, Z., Ono, L.K., Son, D.Y., Liu, Y., Tong, G., and Qi, Y. (2020). Rapid hybrid chemical vapor deposition for efficient and hysteresis-free perovskite solar modules with an operation lifetime exceeding 800 hours. *J. Mater. Chem. A* 8, 23404–23412. doi: 10.1039/d0ta09007g.
260. Ruiz-Preciado, M.A., Gota, F., Fassl, P., Hossain, I.M., Singh, R., Laufer, F., Schackmar, F., Feeney, T., Farag, A., Allegro, I., et al. (2022). Monolithic Two-Terminal Perovskite/CIS Tandem Solar Cells with Efficiency Approaching 25%. *ACS Energy Lett.* 7, 2273–2281. doi: 10.1021/acscenergylett.2c00707.
261. Westheimer, G. (1975). Visual acuity and hyperacuity. In *Handbook of Optics*, pp. 570–572. doi: 10.1097/00006324-198708000-00002.
262. Tapilouw, A.M., Chang, Y.-W., Yu, L.-Y., and Wang, H.-W. (2016). Reduction of batwing effect in white light interferometry for measurement of patterned sapphire substrates (PSS) wafer. *Interferom. XVIII* 9960, 996006. doi: 10.1117/12.2236874.
263. Saveljev, V., Kim, S.-K., and Kim, J. (2018). Moiré effect in displays: a tutorial. *Opt. Eng.* 57, 1. doi: 10.1117/1.oe.57.3.030803.
264. Giusti, M.M., Wrolstad, R.E., and Smith, D.E. (2017). Food Analysis Laboratory Manual. In, pp. 219–224. doi: 10.1007/978-3-319-44127-6.
265. Berkeley Lab, US DOE, LBNL Windows and Daylighting Group, and National Fenestration Rating Council IGDB. Accessed: 2022/02/16.

266. Dou, J., Bai, Y., and Chen, Q. (2022). Challenges of lead leakage in perovskite solar cells. *Mater. Chem. Front.* 6, 2779–2789. doi: 10.1039/d2qm00632d.
267. Jiang, Y., Qiu, L., Juarez-Perez, E.J., Ono, L.K., Hu, Z., Liu, Z., Wu, Z., Meng, L., Wang, Q., and Qi, Y. (2019). Reduction of lead leakage from damaged lead halide perovskite solar modules using self-healing polymer-based encapsulation. *Nat. Energy* 4, 585–593. doi: 10.1038/s41560-019-0406-2.
268. Li, Z., Wu, X., Wu, S., Gao, D., Dong, H., Huang, F., Hu, X., Jen, A.K.-Y., and Zhu, Z. (2022). An effective and economical encapsulation method for trapping lead leakage in rigid and flexible perovskite photovoltaics. *Nano Energy* 93, 106853. doi: <https://doi.org/10.1016/j.nanoen.2021.106853>.
269. Chen, S., Deng, Y., Xiao, X., Xu, S., Rudd, P.N., and Huang, J. (2021). Preventing lead leakage with built-in resin layers for sustainable perovskite solar cells. *Nat. Sustain.* 4, 636–643. doi: 10.1038/s41893-021-00701-x.
270. Booth, H. (2010). Laser processing in industrial solar module manufacturing. *J. Laser Micro Nanoeng.* 5, 183–191. doi: 10.2961/jlmn.2010.03.0001.
271. National Renewable Energy Laboratory Champion Module Efficiencies.
272. Dickson, G. (2023). The Steady Evolution of OLED Displays. *Inf. Disp. (1975)* 39, 21–24. doi: 10.1002/msid.1438.
273. Remeika, M., and Qi, Y. (2018). Scalable solution coating of the absorber for perovskite solar cells. *J. Energy Chem.* 27, 1101–1110. doi: 10.1016/j.jechem.2017.10.005.
274. Abzieher, T., Moore, D.T., Roß, M., Albrecht, S., Silvia, J., Tan, H., Jeangros, Q., Ballif, C., Hoerantner, M.T., Kim, B.S., et al. (2024). Vapor phase deposition of perovskite photovoltaics: short track to commercialization? *Energy Environ. Sci.* 17, 1645–1663. doi: 10.1039/d3ee03273f.
275. Di Giacomo, F., Shanmugam, S., Fledderus, H., Bruijnaers, B.J., Verhees, W.J.H., Dorenkamper, M.S., Veenstra, S.C., Qiu, W., Gehlhaar, R., Merckx, T., et al. (2018). Up-scalable sheet-to-sheet production of high efficiency perovskite module and solar cells on 6-in. substrate using slot die coating. *Sol. Energy Mater. Sol. Cells* 181, 53–59. doi: 10.1016/j.solmat.2017.11.010.
276. Kim, J.E., Jung, Y.S., Heo, Y.J., Hwang, K., Qin, T., Kim, D.Y., and Vak, D. (2018). Slot die coated planar perovskite solar cells via blowing and heating assisted one step deposition. *Sol. Energy Mater. Sol. Cells* 179, 80–86. doi: 10.1016/j.solmat.2018.02.003.
277. Geistert, K., Ternes, S., Ritzer, D.B., and Paetzold, U.W. (2023). Controlling Thin Film Morphology Formation during Gas Quenching of Slot-Die Coated Perovskite Solar Modules. *ACS Appl. Mater. Interfaces.* doi: 10.1021/acscami.3c11923.
278. Behrouznejad, F., Shahbazi, S., Taghavinia, N., Wu, H.P., and Wei-Guang Diao, E. (2016). A study on utilizing different metals as the back contact of CH₃NH₃PbI₃ perovskite solar cells. *J. Mater. Chem. A* 4, 13488–13498. doi: 10.1039/c6ta05938d.

279. Samantaray, M.R., Rana, N.K., Kumar, A., Ghosh, D.S., and Changder, N. (2021). Stability study of large-area perovskite solar cells fabricated with copper. *Int. J. Energy Res.* 46, 1250–1262. doi: 10.1002/er.7243.
280. Holzhey, P., Prettl, M., Collavini, S., Chang, N.L., and Saliba, M. (2023). Toward commercialization with lightweight, flexible perovskite solar cells for residential photovoltaics. *Joule* 7.
281. Galagan, Y., Di Giacomo, F., Gorter, H., Kirchner, G., de Vries, I., Andriessen, R., and Groen, P. (2018). Roll-to-Roll Slot Die Coated Perovskite for Efficient Flexible Solar Cells. *Adv. Energy Mater.* 8. doi: 10.1002/aenm.201801935.
282. Gevaerts, V.S., Biezemans, A.F.K.V., Mannetje, H.H. It, Linden, H., and Bosman, J. (2018). Back End Monolithic Serial Interconnection Technology for CIGS with Shunt-free Laser Scribing and Inkjet Printing. In 2018 IEEE 7th World Conference on Photovoltaic Energy Conversion (WCPEC) (A Joint Conference of 45th IEEE PVSC, 28th PVSEC & 34th EU PVSEC) (IEEE), pp. 3567–3570. doi: 10.1109/PVSC.2018.8548280.
283. Allen, L., O'Connell, A., and Kiermer, V. (2019). How can we ensure visibility and diversity in research contributions? How the Contributor Role Taxonomy (CRedit) is helping the shift from authorship to contributorship. *Learn. Publ.* 32, 71–74. doi: 10.1002/leap.1210.

Veröffentlichungen und Konferenzbeiträge

Publikationen in Peer-Reviewed Journals

D. B. Ritzer, B. Abdollahi Nejand, M. A. Ruiz-Preciado, S. Gharibzadeh, H. Hu, A. Diercks, T. Feeney, B. S. Richards, T. Abzieher und U. W. Paetzold. Translucent perovskite photovoltaics for building integration. *Energy & Environmental Science*. April 2023. doi: 10.1039/d2ee04137e.

David B. Ritzer, Tobias Abzieher, Agit Basibüyük, Thomas Feeney, Felix Laufer, Simon Ternes, Bryce S. Richards, Stefan Bergfeld und Ulrich W. Paetzold. Upscaling of perovskite solar modules: The synergy of fully evaporated layer fabrication and all-laser-scribed interconnections. *Progress in Photovoltaics*. November 2021. doi: 10.1002/pip.3489.

Bahram Abdollahi Nejand, David B. Ritzer, Hang Hu, Fabian Schackmar, Somayeh Moghadamzadeh, Thomas Feeney, Roja Singh, Felix Laufer, Raphael Schmager, Raheleh Azmi, Milian Kaiser, Tobias Abzieher, Saba Gharibzadeh, Erik Ahlswede, Uli Lemmer, Bryce S. Richards & Ulrich W. Paetzold. Scalable two-terminal all-perovskite tandem solar modules with 19.1% efficiency. *Nature Energy*. Juli 2022. doi: 10.1038/s41560-022-01059-w.

Kristina Geister, Simon Ternes, David B. Ritzer und Ulrich W. Paetzold. Controlling Thin Film Morphology Formation during Gas Quenching of Slot-Die Coated Perovskite Solar Modules. *ACS Applied Material Interfaces*. Oktober 2023. doi: 10.1021/acsami.3c11923.

Hang Hu, David B. Ritzer, Alexander Diercks, Yang Li, Roja Sing, Paul Fassel, Qihao Jin, Fabian Schackmar, Ulrich W. Paetzold und Bahram Abdollahi Nejand. Void-free buried interface for scalable processing of p-i-n-based FAPbI₃ perovskite solar modules. *Joule*. Juli 2023. doi: 10.1016/j.joule.2023.05.017.

Ahmed Farag, Thomas Feeney, Ihteaz M. Hossain, Fabian Schackmar, Paul Fassel, Kathrin Küster, Rainer Bäuerle, Marco A. Ruiz-Preciado, Mario Hentschel, David B. Ritzer, Alexander Diercks, Yang Li, Bahram Abdollahi Nejand, Felix Laufer, Roja Singh, Ulrich Starke und Ulrich W. Paetzold. Evaporated Self-Assembled Monolayer Hole Transport Layers: Lossless Interfaces in p-i-n Perovskite Solar Cells. *Advanced Energy Materials*. Januar 2023. doi: 10.1002/aenm.202203982

Helge Eggers, Saba Gharibzadeh, Stefan Koch, Fabian Schackmar, David B. Ritzer, Tobias Abzieher, Bryce S. Richards, Christof Erban und Ulrich W. Paetzold. Perovskite Solar Cells with Vivid, Angle-Invariant, and Customizable Inkjet-Printed Colorization for Building-Integrated Photovoltaics. *Solar RRL*. Januar 2022. doi: 10.1002/solr.202100897

Somayeh Moghadamzadeh, Ihtez M. Hossain, Moritz Loy, David B Ritzer, Hang Hu, Dirk Hauschild, Adrian Mertens, Jan-Philipp Becker, Amir A. Haghhighirad, Erik Ahlswede, Lothar Weinhardt, Uli Lemmer, Bahram Abdollahi Nejang und Ulrich W. Paetzold. In₂O₃:H-Based Hole-Transport-Layer-Free Tin/Lead Perovskite Solar Cells for Efficient Four-Terminal All-Perovskite Tandem Solar Cells. *ACS Applied Material Interfaces*. September 2021. doi: 10.1021/acsami.1c06457

Malte Langenhorst, David B. Ritzer, Frederik Kotz, Patrick Risch, Stephan Dottermusch, Aiman Roslizar, Raphael Schmagar, Bryce S. Richards, Bastian E. Rapp und Ulrich W. Paetzold. Liquid Glass for Photovoltaics: Multifunctional Front Cover Glass for Solar Modules. *ACS Applied Material Interfaces*. August 2019. doi: 10.1021/acsami.9b12896

Beiträge zu wissenschaftlichen Konferenzen

PVSEC-34 (2023) – Poster

David B. Ritzer, Bahram Abdollahi Nejand, Hang Hu, Fabian Schackmar, Somayeh Moghadamzadeh, Thomas Feeney, Roja Singh, Felix Laufer und Ulrich W. Paetzold. Scalable Two-Terminal All-Perovskite Tandem Solar Modules With Advanced Laser-Patterned Interconnections. PVSEC-34. November 2023. Shenzhen, China.

PSCO-23 (2023) – Poster

David B. Ritzer, Bahram Abdollahi Nejand, Hang Hu, Helge Eggers und Ulrich W. Paetzold. Advanced Laser-Patterned Interconnection Concepts for Perovskite (Tandem) Solar Modules. PSCO-23. September 2023, Oxford, England.

WCPEC-8 (2022) - Präsentationsvortrag

David B. Ritzer, Marco A. Ruiz-Preciado, Bahram Abdollahi Nejand, Tobias Abzieher, Ulrich W. Paetzold. Envisaging Building-Integrated Translucent Tandem Photovoltaics: Process Optimization and Transfer to Perovskite Tandem Cells. WCPEC-8. September 2022. Mailand, Italien.

49th IEEE PVSC Conference (2022) – Präsentationsvortrag

David B. Ritzer, Marco A. Ruiz-Preciado, Bahram Abdollahi Nejand, Tobias Abzieher, Ulrich W. Paetzold. Paving the Way to Building-Integrated Translucent Tandem Photovoltaics: Process Optimization and Transfer to Perovskite-Perovskite 2-Terminal Tandem Cells. 49th IEEE PVSC Conference. Juni 2022. Philadelphia, USA.

EU PVSEC 2021 – Präsentationsvortrag

David B. Ritzer, Tobias Abzieher, Thomas Feeney, Felix Laufer, Simon Ternes, Agit Basibüyük, Stefan Bergfeld, Bryce S. Richards und Ulrich W. Paetzold. Efficient Upscaling of Perovskite Photovoltaics: Advantages of Fully-Evaporated Layer Fabrication and All-Laser-Scribed Interconnections. EU PVSEC 2021. September 2021. Digital.

2021 MRS Spring Meeting & Exhibit – Präsentationsvortrag

David B. Ritzer, Tobias Abzieher, Thomas Feeney, Felix Läufer, Agit Basibüyük, Stefan Bergfeld, Bryce S. Richards und Ulrich W. Paetzold. Efficient Upscaling of Perovskite Photovoltaics: The Synergy of Fully-Evaporated Layer Fabrication and All-Laser-Scribed Interconnections. 2021 MRS Spring Meeting & Exhibit. April 2021. Digital.

Betreute studentische Arbeiten

Pinaki Mohanty. Laser Sealing for Encapsulation of Perovskite Solar Modules. Masterarbeit. Karlsruher Institut für Technologie. Februar 2023.

Hang Yu. Laser Sealing for Encapsulation of Perovskite Photovoltaics. Karlsruher Institut für Technologie. Februar 2022.

Agit Basibüyük. Laser Beam Induced Current Measurements. Masterarbeit. Karlsruher Institut für Technologie. November 2020