Resumen de la tesis *Study and characterization on hybrid organic-inorganic perovskites for solar cell applications*.

Las perovskitas orgánicas-inorgánicas de haluros de metilamonio y plomo ($MAPbX_3$) y sus mezclas han mostrado propiedades optoelectrónicas óptimas como absorbente ideal para aplicaciones fotovoltaicas. En la última década, los dispositivos solares basados en perovskita han evolucionado rápidamente, pasando de una eficiencia inicial de tan sólo el 3.9% en 2009, hasta alcanzar una eficiencia del 22.7% en 2017 y, además, teniendo un coste de fabricación más bajo que las células solares de silicio.

Sin embargo, una de las principales desventajas del uso de absorbentes de perovskita en dispositivos fotovoltaicos es su baja estabilidad. Por lo general, las células que muestran un alto rendimiento, pierden su eficiencia y se degradan rápidamente. Para que estos materiales puedan ser producidos industrialmente a gran escala es necesario realizar estudios en profundidad que mejoren la eficiencia y estabilidad.

Una de las principales vías de mejora en la estabilidad y en la eficiencia es la ingeniería composicional, estrategia que hemos empleado en la elaboración de esta tesis y que consiste en la investigación y mejora de las propiedades optoelectrónicas y morfológicas, derivadas de la sustitución y/o combinación de cationes y aniones, que constituyen el material de perovskita.

Se han sintetizado polvos puros de perovskita $MAPbX_3$, para X = I, Br, Cl, a partir de los cuales se prepararon capas puras y mixtas $MAPbX_{3-x}Y_x$ para X, Y = I, Br, Cl, con el objetivo de mejorar sus propiedades optoelectrónicas y estructurales. Mediante análisis de difracción de rayos X, se estudió las propiedades estructurales de los polvos cristalinos y capas puras y mixtas. Mediante los análisis de UV-vis y fotoluminiscencia, se observó que el rango de absorción varía a lo largo del espectro visible en función del contenido del haluro en las capas. Los análisis de fotoluminiscencia y calorimetría diferencial de barrido muestran los cambios de fase de las perovskitas puras a distintas temperaturas, coincidiendo dichos cambios de fase en ambos análisis. La caracterización mediante FESEM de las perovskitas puras, muestra las diferencias morfológicas entre los polvos y capas.

Siguiendo esta línea de investigación, se estudiaron con más detalle las perovskitas mixtas de yodo-bromo, con un contenido de bromo de hasta el 33%, consiguiéndose ajustar el bandgap para evitar pérdidas significativas en la absorción y mejorar las propiedades optoelectrónicas, estructurales y morfológicas.

A pesar de las excelentes propiedades optoelectrónicas de las perovskitas de metilamonio, la presencia del catión orgánico disminuye su estabilidad, lo que ha llevado a investigar el uso de otros cationes inorgánicos. Las perovskitas de cesio, $CsPbX_3$, son una alternativa muy prometedora, y por esta razón hemos sintetizado capas finas de perovskitas de cesio mixtas, $CsPbBr_{3-x}I_x$, para determinar los efectos que produce la sustitución parcial del yodo en las propiedades físicas y la estabilidad. Se obtuvieron capas con una resistencia muy buena a la humedad y a la temperatura, que favorecerá la aplicación de este tipo de perovskitas en el campo fotovoltaico.

Se ha estudiado además la sustitución parcial del catión de metilamonio con otros cationes orgánicos, como el guanidinio (GA) e imidiazolio (IM). Se ha demostrado que pequeñas cantidades de guanidinio mejoran significativamente la estabilidad de las capas y su morfología. Se ha establecido que el límite de solubilidad del guanidinio en del 20%, aproximadamente, y se ha determinado la estructura cristalina de las mezclas. Se ha observado un aumento en la intensidad del pico de fotoluminiscencia para mezclas por debajo del límite de solubilidad.

Se obtuvieron resultados similares para la sustitución del metilamonio con pequeñas cantidades de imidazolio. Los análisis de difracción de rayos X establecieron el límite de solubilidad en aproximadamente el 10% y una mejora en la cristalinidad. Los resultados de fotoluminiscencia sugieren que pequeñas cantidades de imidazolio reducen significativamente las recombinaciones no radiativas, actuando como un pasivador efectivo.

Finalmente, se muestra el proceso de fabricación de dispositivos basados en $MAPbI_3$ y sintetizados en función de las condiciones ambientales, especialmente la humedad relativa y empleando el dietil éter como anti-solvente. Los dispositivos mostraron una eficiencia máxima del 14.73%. Se ha probado que la oxidación del spiro-OMeTAD, bajo condiciones controladas de humedad puede mejorar la eficiencia. Los dispositivos estudiados mostraron eficiencias similares, lo que demuestra la buena reproducibilidad.