(цезий свинец бром 3)

Межзерновые границы играют очень важную роль в определении оптоэлектронных свойств перовскитов, что требует атомического понимания лежащих в их основе механизмов. Недавно в перовскитных солнечных элементах была применена технология деформирования, позволяющая по-новому взглянуть на роль перовскитных материалов с межзереннной границей.

Металлогалогенидные (соединение металла и галогена) перовскиты являются многообещающими кандидатами для солнечных элементов следущего поколения благодаря своим превосходным оптоэлектронным свойствам. Рекордная эффективность преобразования энергии солнечных элементов на основе Металлгалогенидных перовскитов (МГП) быстро выросла с 3,8% в 2009 году до 26,1% сегодня, близкого к рекордному показателю солнечных элементов на основе кремния (28%). Также на основе смешания перовскитных и кремневых технологий получилось достич показателя в 33,5%. Для дальнейшего улучшения необходимо рассматривать области структрных дефектов, коотрые служат центрами рекомбинации носителей. Несмотря на то, что МГП структуры не сильно подвержены образованию дефектов, мы попрежнему наблюдаем рекомбинацию носителей на границах зерен. Кроме того мы предполагаем, что данные границы способствуют миграции ионов, что приводит к проблемам со стабильность. В настоящее время предлагается большое количество способов противодействия данным явлениям (увеличение размера зерен для уменьшения плотности межзерновых границ, насыщение оборванных связей на границах), однако до сих пор остается неясным механизм влияния межзеренных границ на производительность МГП батарей.

На рисунке (a) показана структура готовой модели CsPbBr3. Данная система находится в метастабильном состоянии, что приводит к самопроизвольному смещению по вертикали в течении всего нескольких пикосекунд. Кроме того, скольжение изменяет взаимосдействе между боковыми зернами, нарушая исходную равновесную структуру и вызывая напряжение в осевом направлении.

На рисунке (b) показаны относительные энергетические изменения модели в отношении эффектов скольжения и деформации, где положения атомов полностью расслаблены, но размер ячейки моделирования фиксирована. Мы вводим деформацию, изменяя осевую длину с шагом 1%. Исходная структура находится близко к минимуму энергетической кривой перед скольжением, поскольку постоянная решетки взята из оптимизированного объемного CsPbBr3. Скольжение значительно снижает энергию системы, а положительный наклон кривой энергии после скольжения указывает на наличие в модели растягивающей деформации. После уменьшения осевой длины на 2% система скольжения приближается к минимуму кривой энергии и становится свободной от деформаций. Более того, мы дополнительно устанавливаем длину -2%, чтобы учесть условия деформации при сжатии.

Мы моделируем систему на протяжении 5 ps. Первые 5 пс предназначены для нагрева системы до состояния равновесия, а траектории последних 5 пс используются для анализа. На рисунках с и d показаны флуктуации потенциальной энергии и статистические результаты соответственно. Среднеквадратичное значение потенциальной энергии (RMS) уменьшается в модели деформации при растяжении по сравнению с моделью без деформации, что согласуется с диаграммой энергия−деформация. Однако деформация при сжатии лишь незначительно увеличивает потенциальную энергию, и флуктуация подавляется, о чем свидетельствуют изменения стандартного отклонения. Эти результаты демонстрируют, что деформация в CsPbBr3 не только влияет на межатомную потенциальную энергию, но и препятствует структурным колебаниям.

(Среднеквадратичное значение и стандартное отклонение относительной потенциальной энергии приводят к траекториям за последние 5 пс.)

Рассмотрим плотность состояний (DOS), построенную на рисунке (a). Структура межзеренной границы создает электронные состояния вблизи края полосы, на которые редко влияет деформация. Тем не менее, межзеренная граница CsPbBr3 демонстрирует крупномасштабные движения при тепловых флуктуациях, и структурное искажение приводит к тому, что эти состояния GB находятся глубоко в запрещенной зоне. Рисунок (b) иллюстрирует схему этого процесса, а эволюция энергетического уровня модели GB при сжатии-деформации за последние 2 пс показана на рисунке (c) в качестве примера. (В химии HOMO и LUMO являются типами молекулярных орбиталей. Аббревиатуры обозначают самую высокую занятую молекулярную орбиталь и самую низкую незанятую молекулярную орбиталь соответственно.) Самый высокий занятая молекулярная орбиталь (HOMO) и низшая незанятая молекулярная орбиталь (LUMO) могут оказаться изолированными от других орбиталей во время колебаний, как указано стрелками. Ожидается, что такие электронные состояния улавливают фотогенерированные носители и облегчают их рекомбинацию, что приводит к потерям энергии.

На рисунке 2d показана оптимизированная структура GB CsPbBr3 после скольжения. На границах образуются ненасыщенные атомы Pb и Br. Когда структура GB искажается, отталкивание между занятыми Br орбитали повышают уровень HOMO, в то время как гибридизация между незанятыми орбиталями Pb снижает уровень LUMO, что приводит к состояниям-ловушкам средней щели.

В статистической механике среднеквадратичное смещение (MSD, также среднеквадратичное смещение, среднеквадратичное смещение или среднеквадратичное колебание) является мерой отклонения положения частицы относительно исходного положения с течением времени. Это наиболее распространенная мера пространственной протяженности случайного движения, и ее можно рассматривать как измерение части системы. В области биофизики и инженерии среднеквадратичное смещение измеряется с течением времени, чтобы определить, распространяется ли частица медленно из-за диффузии или вносит свой вклад и адвективную сила. (*В области физики , техники и наук о Земле адвекция — это перенос вещества или количества за счет объемного движения жидкости. Термин адвекция часто служит синонимом конвекции , и такое соответствие терминов используется в литературе. С технической точки зрения, конвекция применяется к движению жидкости (часто из-за градиентов плотности, создаваемых температурными градиентами), тогда как адвекция — это движение некоторого материала со скоростью жидкости. Таким образом, хотя это может показаться запутанным, технически правильно думать о том, что импульс переносится полем скорости в уравнениях Навье-Стокса, хотя результирующее движение будет считаться конвекцией. Из-за специфического использования термина «конвекция» для обозначения переноса в сочетании с температурными градиентами, вероятно, безопаснее использовать термин «адвекция», если вы не уверены в том, какая терминология лучше всего описывает конкретную систему*.)