

STRUKTUR KRISTAL DAN MORFOLOGI FILM PEROVSKITE YANG DIBUAT DENGAN METODE *SPIN-COATING* DUA TAHAP

SINTHIA RAHMANITA[‡], YUNIAR DWI INAYATIE, ANGGIA ERDIENZY, AYI BAHTIAR

*Departemen Fisika,
Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Padjadjaran
Jl. Raya Bandung-Sumedang Km 21, Jatinangor 45363*

Abstrak. Sel-surya dengan material aktif *perovskite* saat ini banyak dikembangkan para peneliti karena mampu menghasilkan efisiensi konversi di atas 20%, sehingga diharapkan dapat menjadi sel-surya masa depan. Kontrol morfologi dan struktur kristal *perovskite* merupakan kunci utama untuk meningkatkan efisiensi sel-surya dan stabilitas terhadap lingkungan. Film *perovskite* harus menunjukkan derajat kristalinitas yang tinggi dengan ukuran butir dalam orde mikrometer. Dalam makalah ini akan disampaikan studi terbaru kami tentang struktur kristal dan morfologi film *perovskite* metilamonium-iodida ($\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$) yang dibuat dengan metode *spin-coating* dua-tahap. Struktur kristal *perovskite* diukur dengan XRD dan morfologi permukaan film diukur dengan SEM. Dalam metode *spin-coating* dua-tahap ini, film *perovskite* dibuat dengan membuat lapisan PbI_2 terlebih dahulu, kemudian melapiskan metilamonium-iodida (MAI) di atas lapisan PbI_2 , sehingga lapisan PbI_2 dapat terkonversi menjadi *perovskite* $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$. Hasil studi kami menunjukkan bahwa kristal *perovskite* telah terbentuk dengan ukuran butir sekitar 1 mikrometer. Hasil studi ini dapat dijadikan metode standar dalam pembuatan sel-surya padat berbasis material aktif *perovskite* $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$.

Kata kunci : sel-surya, *perovskite*, struktur kristal, morfologi film

Abstract. Perovskite based solar cell has been intensively developed due to its ability to produce a power conversion efficiency above 20%, therefore, it is expected to be the future of solar cells. Control of morphology and crystal structure of perovskite is key important factor for improving solar cell efficiency and stability to the environment. Perovskite film should show a high degree of crystallinity with average grain size in the order of micrometers. In this paper we presented our recent studies on the crystal structure and morphology of the film perovskite-methylammonium iodide ($\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$) prepared by use of two-step spin-coating method. Perovskite crystal structure was measured by XRD and surface morphology of the film was investigated by SEM. In the two-step spin-coating method, perovskite film made by sequential spin-coated of PbI_2 layer first, followed by spin-coated of methylammonium iodide (MAI) directly on the top layer of PbI_2 , so PbI_2 layers can be converted into a perovskite $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$. Our results show that the perovskite crystal was formed with the grain size of about 1 micrometer. This study can be used as a standard method in preparation of perovskite active material $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ based solar cells.

Keywords : solar cells, *perovskite*, crystal structure, morphology of film

1. Pendahuluan

Salah satu alternatif energi terbarukan yang sedang berkembang adalah pemanfaatan energi matahari melalui sel surya yang dapat mengkonversi energi matahari menjadi energi listrik. Saat ini, berbagai sel-surya sudah dibuat dan dikomersialisasi menggunakan berbagai material sebagai lapisan aktifnya, seperti silikon, galium arsenida, kadmium telurida, silikon amorf, sel-surya *dye*, sel-surya organik/polimer dan sel-surya hibrid organik-inorganik [1]. Namun penggunaannya secara massal sebagai sumber energi listrik saat ini masih terkendala biaya produksi yang tinggi [2].

[‡]email : sinthiarahmanita@yahoo.co.id

Saat ini, sel-surya berbahan aktif material campuran bahan halida-organik/anorganik dengan struktur *perovskite* telah banyak menarik perhatian banyak peneliti, karena mampu menghasilkan efisiensi di atas 15% [3-5]. Khususnya bahan *perovskite* $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ (metil-amonium timbal halida) telah menghasilkan efisiensi sebesar 19% [6]. Salah satu faktor yang menentukan efisiensi sel-surya *perovskite* adalah morfologi lapisan aktifnya, yaitu film $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$. Film $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ harus memiliki ukuran kristal yang besar yaitu dalam rentang 500 - 1000 nm dan memiliki kristalinitas yang tinggi dengan bentuk kubik dan homogen, agar mampu menghasilkan sel-surya *perovskite* dengan efisiensi yang tinggi [5]. Pengembangan sel-surya berbasis material aktif *perovskite* masih sangat memerlukan perhatian khusus sebelum dapat diproduksi massal dan dipergunakan secara luas sebagai sumber energi listrik alternatif stabilitas yang masih rendah, karena material berbasis timbal (Pb) ini mudah teroksidasi dan reaktif terhadap lingkungan. Umumnya film *perovskite* dibuat di lingkungan inert. Karena itu penelitian tentang optimasi morfologi lapisan aktif $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ yang dibuat di lingkungan udara perlu dikaji untuk memperoleh lapisan aktif $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ dengan kristalinitas yang tinggi dan ukuran kristal yang besar dan stabil terhadap lingkungan luar [7-8].

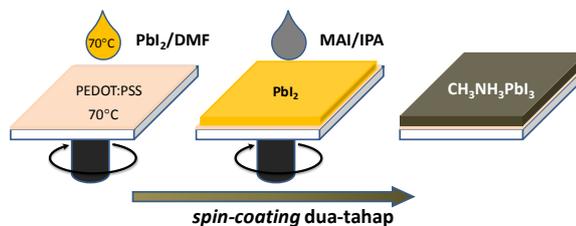
2. Metode Penelitian

Timbal iodida (PbI_2), *poly(3,4-ethylenedioxythiophene)poly(styrenesulfonate)* (PEDOT:PSS) dan metil amonium iodida (MAI/ $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}$) dibeli dari Luminescence Technology Inc. Taiwan, pelarut 2-propanol (IPA), dan N-N-dimetilformamida (DMF) dibeli dari Sigma Aldrich.

Larutan MAI dibuat dengan melarutkan 90 mg serbuk MAI dalam 2 ml IPA. Larutan timbal iodida (PbI_2) dibuat dengan melarutkan 900 mg serbuk PbI_2 dalam 2 ml pelarut DMF, kemudian diaduk pada suhu 70°C selama 24 jam. Untuk memperoleh larutan PbI_2 yang jernih perlu dilakukan sentrifugasi sebelum digunakan.

Film tipis *perovskite* dibuat dengan metode *spin-coating* dua tahap diatas substrat kaca dengan ukuran $1 \times 1 \text{ cm}^2$. Proses *spin-coating* dua-tahap diperlihatkan pada Gambar 1. Larutan PEDOT di-*spin-coating* di atas gelas dengan kecepatan putaran 1000 rpm selama 20 sekon dan kemudian dianiling pada suhu 110°C selama 20 menit. Proses *spin-coating perovskite* diawali dengan *spin-coating* larutan PbI_2 , kemudian dianiling pada suhu 40°C selama 3 menit dan dilanjutkan pada suhu 100°C selama 5 menit. Kemudian dilakukan *spin-coating* larutan MAI di atas lapisan PbI_2 yang selanjutnya film tipis dianiling pada suhu 100°C selama 5 menit, sehingga terjadi konversi dari PbI_2 menjadi *perovskite* $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$.

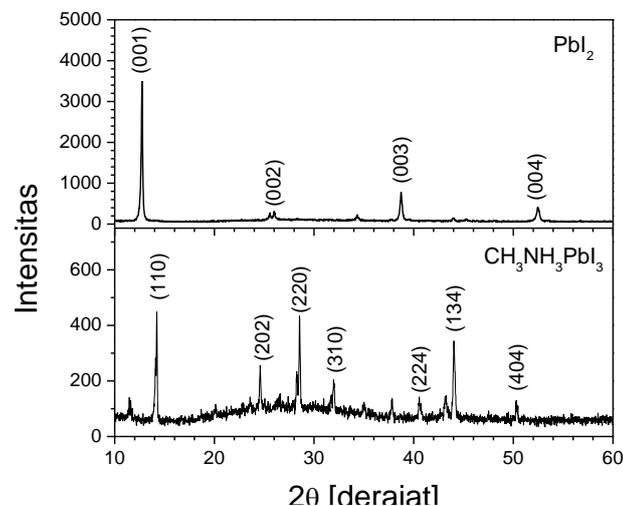
Karakterisasi film *perovskite* meliputi pengukuran XRD untuk mengetahui struktur kristal dan pengukuran SEM permukaan film *perovskite* untuk mengetahui morfologi kristal *perovskite* yang terbentuk



Gambar 1. Prosedur *spin-coating* dua tahap dalam pembuatan film tipis *perovskite*.

3. Hasil dan Pembahasan

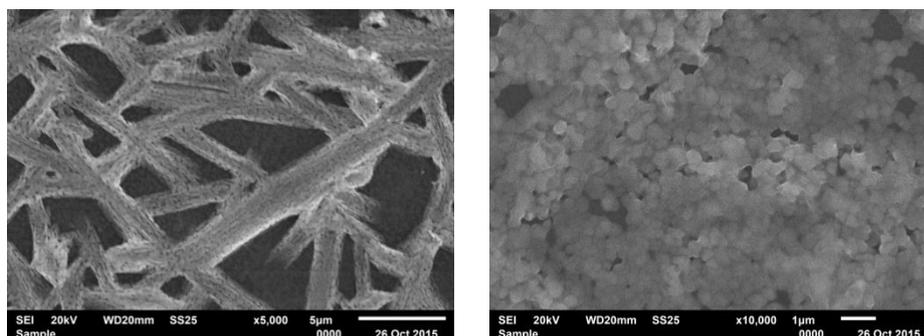
Gambar 2 menunjukkan pola XRD film PbI_2 dan *perovskite* $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$. Berdasarkan data literatur, PbI_2 yang dibuat dengan *spin-coating* dari pelarut DMF membentuk kristal *hexagonal 2H polytype* [3], yang merupakan bentuk kristal umum dari modifikasi PbI_2 . Pola XRD film PbI_2 yang dibuat di atas substrat gelas menunjukkan pertumbuhan kristal yang terorientasi dalam satu arah saja, yaitu sumbu-c (sumbu-z) dengan ditandai oleh 4 (empat) puncak utama yaitu pada sudut $12,7^\circ$; $25,9^\circ$; $38,7^\circ$ dan $52,4^\circ$ yang berturut-turut merupakan puncak dari bidang-bidang kristal (001), (002), (003) dan (004) [3].



Gambar 2. Pola XRD dari film PbI_2 (atas) dan *perovskite* $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ (bawah).

Puncak-puncak difraksi *perovskite* muncul pada sudut $14,2^\circ$; $24,6^\circ$; $28,5^\circ$; $31,8^\circ$; $40,5^\circ$; $44,0^\circ$ dan $50,3^\circ$ yang berturut-turut berkaitan dengan bidang kristal dari fasa tetragonal *perovskite* (110), (202), (220), (310), (224), (134) dan (404) [9,10]. Hasil XRD *perovskite* ini menunjukkan bahwa *perovskite* sudah terbentuk dengan struktur kristal tetragonal. Namun demikian, masih terdapat puncak difraksi pada sudut $12,7^\circ$ yang merupakan puncak PbI_2 . Hal ini berarti belum semua PbI_2 terkonversi menjadi *perovskite*, sehingga masih diperlukan optimasi pembuatan film *perovskite* yang mampu mengkonversi total PbI_2 menjadi *perovskite* $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$. Masih terdapatnya PbI_2 dalam *perovskite* akan mengakibatkan hambatan bagi muatan-muatan pembawa dalam *perovskite* untuk bergerak, karena PbI_2 merupakan material isolator, sehingga efisiensi konversi sel-surya menjadi rendah.

Hasil SEM permukaan film PbI_2 dan *perovskite* diperlihatkan pada Gambar 3. SEM film PbI_2 menunjukkan kristal-kristal yang berorientasi pada satu arah saja berupa batang-batang (*rod*). Hal ini sesuai dengan pola XRD PbI_2 yang bentuk kristalnya mengarah pada satu arah saja (sumbu-c). Foto SEM film *perovskite* memperlihatkan kristal *perovskite* yang berbentuk tetragonal dengan ukuran 500 nm – 1 mikrometer dan homogen sepanjang daerah pengamatan. Ukuran ini masih relatif kecil, karena ukuran kristal yang diharapkan adalah lebih besar dari 1 mikrometer, sehingga masih diperlukan optimasi pembuatan film *perovskite* dengan ukuran butiran yang melebihi 1 mikrometer.



Gambar 3. Foto SEM film PbI_2 (kiri) dan *perovskite* $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ (kanan)..

4. Kesimpulan

Film *perovskite* telah berhasil dibuat dengan metode *spin-coating* dua tahap. Pola XRD menunjukkan bahwa kristal *perovskite* berbentuk tetragonal yang dikonfirmasi oleh hasil foto SEM dengan ukuran kristal antara 500 nm sampai 1 mikrometer. Hasil studi ini dapat dijadikan metode standar dalam pembuatan sel-surya padat berbasis material aktif *perovskite* $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$. Masih ada material PbI_2 yang belum sepenuhnya terkonversi menjadi *perovskite*, sehingga diperlukan optimasi pembuatan film *perovskite* sebagai material aktif sel-surya yang dapat menghasilkan efisiensi konversi energi yang tinggi.

Ucapan terima kasih

Penelitian ini didanai oleh Kementerian Riset, Teknologi dan Pendidikan Tinggi (Kemenristekdikti) melalui skema Penelitian Kerjasama Internasional dan Publikasi Ilmiah dengan nomor kontrak 393/UN6.R/PL/2015 tanggal 16 Februari 2015.

Daftar Pustaka

1. M. A. Green, K. Emery, Y. Hishikawa, W. Warta and E. D. Dunlop, Solar cell efficiency tables (Version 45), Progress in Photovoltaics: Research and Applications, 23 (2015), 1-9.
2. N. Espinosa, R. G. Valverde, A. Urbina, F. Lenzmann, M. Manceau, D. Angmo and F. C. Krebs, Solar Energy Materials & Solar Cells 97 (2012), 3-13.
3. J. Burschka, N. Pellet, S. J. Moon, R. H. Baker, P. Gao, M. K. Nazeeruddin and M. Grätzel, Nature 499 (2013), 316-319.
4. N. J. Jeon, J. H. Noh, Y. C. Kim, W. S. Yang, S. Ryu and S. I. Seok, Nature Materials 13 (2014), 1-7.
5. W. Nie, H. Tsai, R. Asadpour, J.-C. Blancon, A. J. Neukirch, G. Gupta, J. J. Crochet, M. Chhowalla, S. Tretiak, M. A. Alam, H.-L. Wang and A. D. Mohite, Science 347 (2015), 522-525.
6. H. Zhou, Q. Chen, G. Li, S. Luo, T.-b. Song, H. S. Duan, Z. Hong, J. You, Y. Liu, Y. Yang, Science 345 (2014), 542-546.
7. H.-S. Ko, J.-W. Lee, N.-G. Park, Journal of Materials Chemistry A 3 (2015), 8808-8815.
8. G. Sfyri, C. V. Kumar, D. Raptis, V. Dracopoulos, P. Lianos, Solar Energy Materials & Solar Cells 134 (2015), 60-63.
9. D. H. Cao, C. C. Stoumpos, C. D. Malliakas, M. J. Katz, O. K. Farha, J. T. Hupp, M. G. Kanatzidis, APL Materials 2 (2014), 091101.
10. E. Zheng, X.-F. Wang, J. Song, L. Yan, W. Tian, T. Miyasaka, ACS Applied Materials & Interfaces 7 (2015), 18156-18162.