



Araştırma Makalesi

Damla Döküm Yöntemi ile Üretilen Perovskit Filmlerin Yaşlanma Süreçlerinin Elektriksel Karakterizasyon Teknikleri ile Belirlenmesi

Ayşegül ÇOŞGUN¹, Gökhan YILMAZ^{2*}

¹Burdur Mehmet Akif Ersoy Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Enerji Sistemleri Mühendisliği
Anabilim Dalı, 15030, Burdur, Türkiye

²Burdur Mehmet Akif Ersoy Üniversitesi, Mühendislik-Mimarlık Fakültesi, Enerji Sistemleri Mühendisliği
Bölümü, 15030, Burdur, Türkiye

*yazışılan yazar e-posta: gyilmaz@mehmetakif.edu.tr

(Alınış / Received: 08.09.2021, Kabul / Accepted: 28.12.2021, Yayımlanma / Published: 27.05.2022)

Öz: Organik-hibrit güneş hücreleri arasında en popüler olan metil amonyum kurşun iyodür (MAPbI₃) fazlı perovskit güneş hücreleridir. Bunun nedeni perovskit güneş hücrelerinin sahip oldukları eşsiz özellikler ve yüksek verimlilikleridir. Ancak perovskite güneş hücreleri üretimlerinden hemen sonra verimlilik kaybı yaşamaktadır. Üretim yöntemleri bu verimlilik kaybının nedenlerinden biri olarak gösterilmektedir. Perovskite üretim yöntemleri incelendiğinde spin kaplama, termal buharlaştırma ve termal kimyasal buhar biriktirme (Thermal CVD) en çok kullanılan yöntemler olarak görülmektedir. Damla döküm yöntemi ise bölgesel olarak kristal üretiminde etkili bir yöntem olarak görülmektedir.

Bu çalışmada kimyasal buhar biriktirme ve damla döküm yöntemleri birlikte kullanılarak MAPbI₃ filmler üretilmiştir. Elde edilen filmlerin morfolojik ve yapısal özellikleri SEM ve XRD yöntemleri kullanılarak belirlenmiştir. Üretilen perovskit filmler su buharına maruz bırakılmıştır. Su buharına bağlı olarak malzemelerde oluşan yaşlanma süreçleri elektriksel iletkenlik yöntemleri ile karakterize edilmiştir.

Anahtar kelimeler: Damla döküm yöntemi, Kimyasal buhar biriktirme, Perovskit, İnce film, Yaşlandırma

Determination of Aging Processes of Perovskite Films Produced by Drop Casting Method by Electrical Characterization Techniques

Abstract: The most popular organic-hybrid solar cells are known to be perovskite solar cells with methyl ammonium lead iodide (MAPbI₃) phase. This is due to the unique properties and high efficiency of perovskite solar cells. However, perovskite solar cells show a loss of efficiency shortly after their production. Production methods are cited as one of the reasons for this loss of efficiency. When perovskite production methods are examined, spin coating, thermal evaporation and thermal chemical vapor deposition (Thermal CVD) are seen as the most used methods. The drop casting method is seen as an effective method in the production of crystals locally.

In this study, MAPbI₃ films were produced by using chemical vapor deposition and drop casting methods together. The morphological and structural properties of the films obtained were determined by using SEM and XRD methods. The produced perovskite films were exposed to water vapor. Aging processes in materials due to water vapor have been characterized by electrical conductivity methods.

Key words: Drop casting, Chemical vapour deposition, Perovskite, Thin film, Ageing

1. Giriş

Güneş hücresi ailesinde en yeni olan malzeme grubu 3. nesil organik–hibrit ince film güneş hücreleridir. Organik-hibrit güneş hücreleri grubunda ise yine en popüler olanı perovskit yapıya sahip güneş hücreleridir. Kendine özel kristal formülüne sahip olan perovskitler ABX_3 formülü ile tanımlanmaktadır. Perovskitler güneş hücreleri çalışmalarında ilk kez 2009 yılında Miyasaka ve çalışma arkadaşları tarafından kullanılmıştır [1]. Perovskit formları incelendiğinde bilim insanlarının en çok ilgisini çeken yapı ise metil amonyum iyodür ($MAPbI_3$) ($CH_3NH_3PbI_3$) formu olduğu görülmektedir. $MAPbI_3$ 'ün bilim insanlarının bu kadar çok ilgisini çekmesinin nedeni ise $MAPbI_3$ sahip olduğu difüzyon uzunluğu (L_d), yük taşıyıcı yaşam süresi, yük taşıyıcı mobilite değerleri ve güneş hücresi uygulamalarında elde edilen yüksek verimlilikler gösterilebilir [2–14]. $MAPbI_3$ üretim yöntemleri incelendiğinde literatürde en çok karşılaşılan üretim yöntemleri spin kaplama, termal buharlaştırma ve termal CVD olduğu görülmektedir. $MAPbI_3$ güneş hücrelerinde üretim sonrasında atmosferik koşullardan kaynaklı olarak verimlilik değerlerinde belirgin düşüşler olduğu literatürde belirtilmiştir [15,16]. Verimlilik değerlerindeki bu düşüşe kararsızlık ya da yarı kararlılık (metastability) etkisi denmektedir. Literatür incelendiğinde kararsızlığın sebebi olarak üretim yöntemi ve bazı stres faktörleri (su buharı, O_2 gazı, UV ışık, sıcaklık) gösterilmiştir [17–22]. $MAPbI_3$ filmlerde oluşan bu değişimlerin anlaşılması kararsızlık ya da yarı kararlılığın anlaşılmasını buna bağlı olarak da $MAPbI_3$ güneş hücrelerinin ticari potansiyelinin artmasını sağlayabilir.

Bu çalışmada termal CVD ve damla döküm yöntemleri kullanılarak iki adımda $MAPbI_3$ filmler üretilmiştir. Üretim yönteminde ilk adımda PbI_2 filmler termal CVD ile üretilmiştir. İkinci adımda MAI solüsyon PbI_2 filmlerin üzerine damlatma yöntemi ile uygulanarak $MAPbI_3$ filmler üretilmiştir. İki adımlı olarak üretilen $MAPbI_3$ filmler literatürde belirtilen stres faktörlerine maruz bırakılarak kararsızlık ya da yarı kararlılık durumları anlaşılmaya çalışılmıştır. Üretilmiş olan $MAPbI_3$ filmler yapısal ve morfolojik karakterizasyonları için sırası ile XRD ve SEM ölçümleri gerçekleştirilmiştir. Elektriksel karakterizasyonlar üç farklı atmosferik koşulda (laboratuvar atmosferinde, vakum atmosferinde ve su buharı atmosferinde) ve sırası ile zamana bağlı karanlık iletkenlik, sıcaklığa bağlı karanlık iletkenlik ve fotoiletkenlik ölçümleri şeklinde gerçekleştirilmiştir.

2. Materyal ve Metot

Metil amonyum kurşun iyodür filmler pürüzsüz mikroskop camı üzerine büyütülmüştür. Mikroskop camları mekanik temizliklerinin tamamlanmasının ardından ultrasonik banyoda kimyasal temizlik sürecine tabi tutulmuştur. Temizlik ile ilgili daha fazla bilgi için yazarların yayınladığı önceki makale incelenebilir [23]. Metil amonyum kurşun iyodür filmler iki adımlı bir üretim sistemi ile büyütülmüştür. İlk adım olarak kurşun iyodür (PbI_2) (Sigma Aldrich %98) 0,6 gr krozenin içerisine yerleştirildikten sonra termal CVD yöntemi ile mikroskop camlarının üzerine büyütülerek PbI_2 matrisi elde edilmiştir. Ardından 0,2 gr MAI (Sigma Aldrich %98) 20 ml 2-propanol ile çözdürülmüş, 0,5 ml olacak şekilde PbI_2 matrislerinin üzerine damlatılmış ve $80\text{ }^\circ\text{C}$ 'de ısıtılmış yüzey üzerinde 1 dakika bekletilerek $MAPbI_3$ filmler elde edilmiştir. Üretilen $MAPbI_3$ filmlerin üretim detayları Tablo 1'de sunulmuştur. $MAPbI_3$ malzemelerin morfolojik yapısı SEM sistemi ile ölçülmüştür. Malzemelerin kristalografik formlarının belirlenebilmesi için XRD ölçümleri alınmıştır. Ardından $MAPbI_3$ filmler üzerine 500 nm kalınlığında gümüş kontaklar atılmıştır. Gümüş kontaklar eş yüzey kontak geometrisinde olup kontaklar arası mesafe 0,05 mm ve kontak boyları 0,5 mm dir.

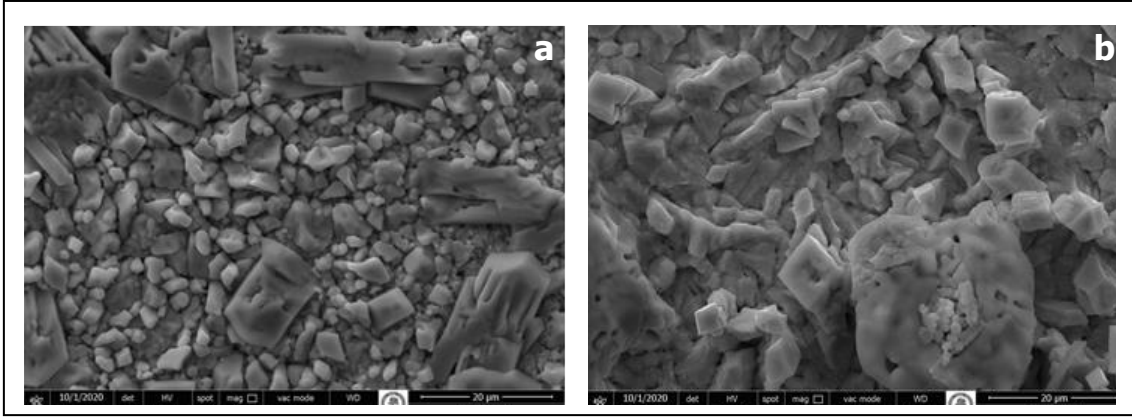
Tablo 1. MAPbI₃ Filmlerin Üretim Detayları

Malzeme Kodu	PbI ₂ Büyütme Yöntemi	MAI Büyütme Yöntemi	PbI ₂ Bileşik ağırlığı (gr)	MAI Bileşik ağırlığı (gr)	PbI ₂ Büyütme Sıcaklığı (°C)	MAI Büyütme Sıcaklığı (°C)
T-DP-1	Termal CVD	Damla Döküm	0,6	0,2	340	80
T-DP-2	Termal CVD	Damla Döküm	0,6	0,2	400	80

3. Bulgular

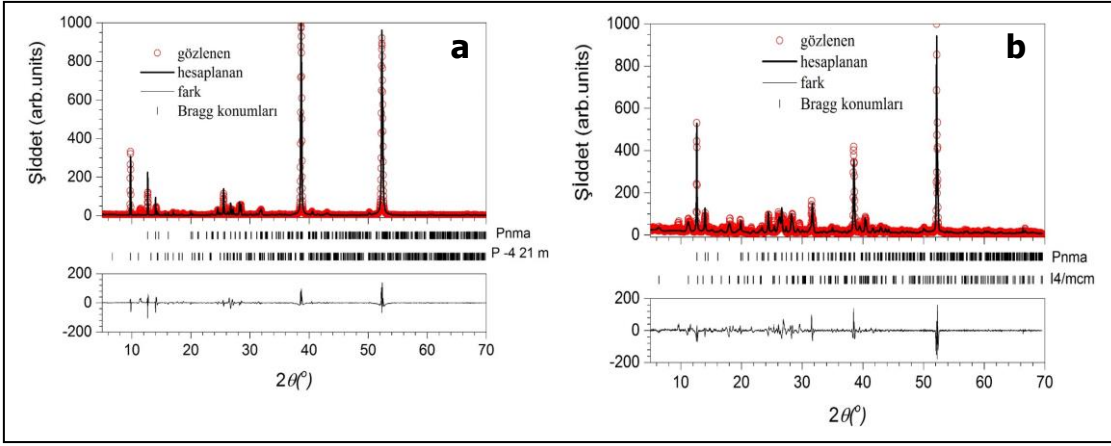
3.1. Yapısal Analiz Bulguları

Şekil 1’de üretilen MAPbI₃ filmlerin 10.000 kat büyütülmüş olan SEM görüntüleri sunulmuştur. Her iki filmde de kübik kristal yapıların oluştuğu görülmektedir. Ancak 400 °C’de üretilen filmde daha büyük kristal öbekleri ve daha kompakt bir yapı gözlenirken 340 °C’de üretilen film daha küçük kristal öbekleri ve daha gözenekli bir form oluştuğu net olarak görülmektedir. Bu durum 340 °C ile üretilen MAPbI₃ filmde daha fazla yüzey alanı oluşmasına neden olmaktadır. Sonuç olarak 340 °C ile üretilen MAPbI₃ filmin sahip olduğu morfoloji su buharı ve diğer gazların yüzeyde tutunma ve kimyasal bağ yapma ihtimalini arttırmaktadır.



Şekil 1. MAPbI₃ filmlerin 10.000 kat büyütülmüş SEM yüzey morfoloji görüntüleri a) T-DP-1 kodlu filmin, b) T-DP-2 kodlu filmin

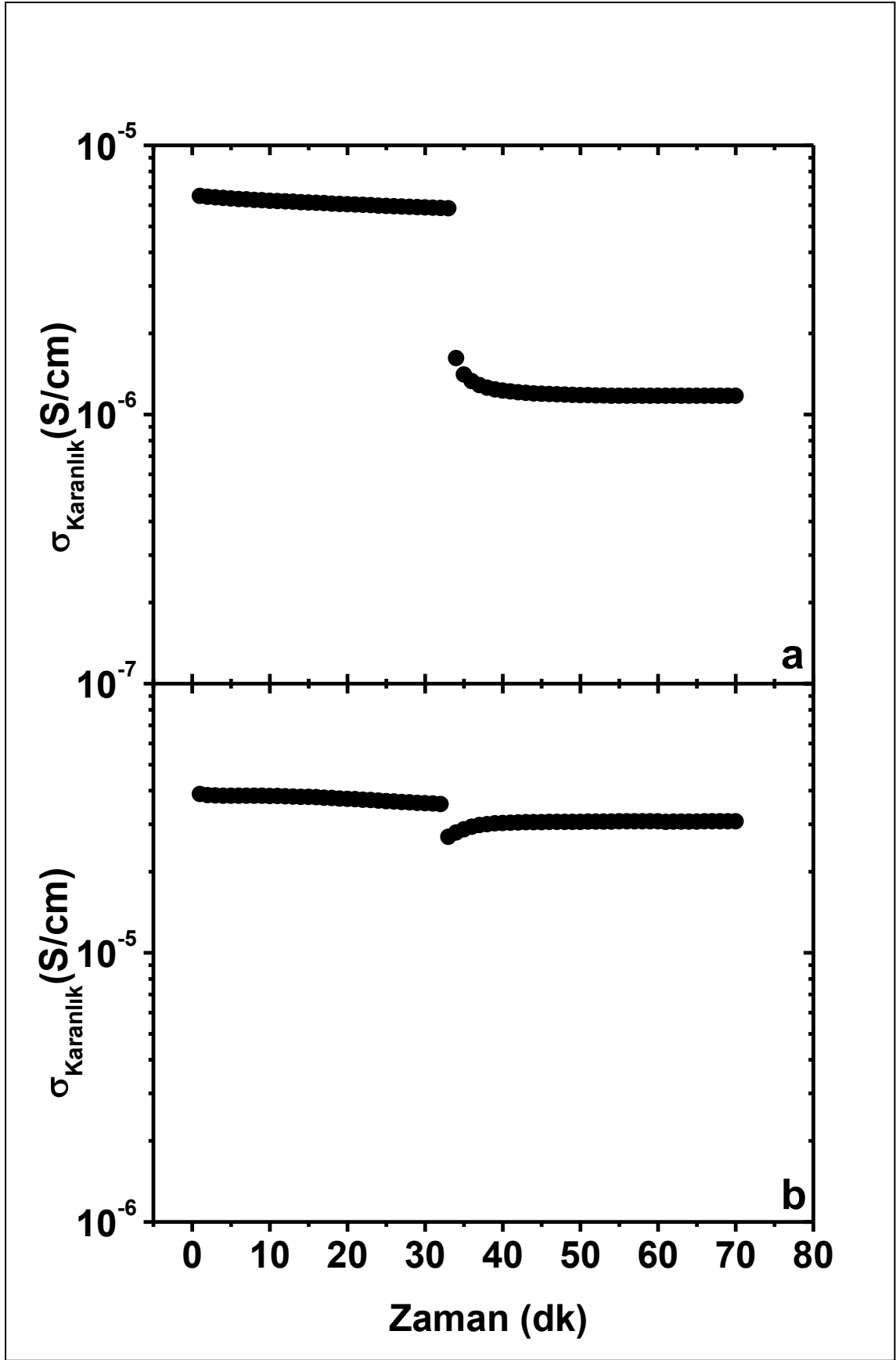
Şekil 2’de üretilmiş olan MAPbI₃ filmlerin XRD analizleri sunulmaktadır. T-DP-1 kodlu malzemede kristal yapı Pnma yapısına ait (330) ve (352) düzlemleri yönünde baskınlaşmıştır. T-DP-2 kodlu malzemede kristal yapı (521) düzlemi (52 derecedeki pik) yönünde baskın bir tercihi yönelime sahiptir. XRD analizlerine incelendiğinde filmlerin kristal örgü parametreleri Ortorombik ve Tetragonal olacak şekilde iki fazda oluştuğu görülmektedir. Elde edilen XRD sonuçları literatürde tanımlı MAPbI₃ Ortorombik ve Tetragonal sonuçları ile örtüşmektedir[24].



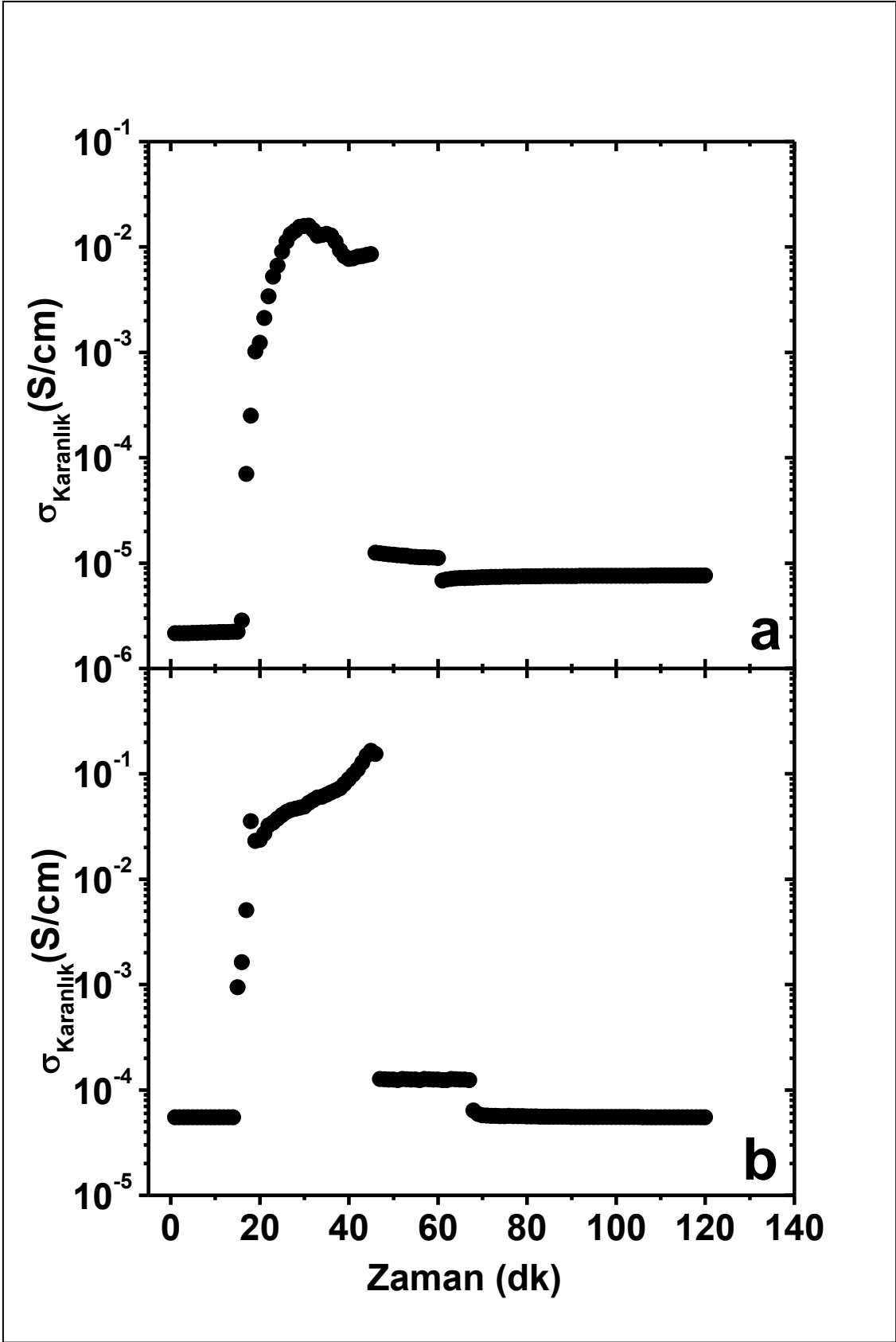
Şekil 2. MAPbI₃ filmlerin XRD analizleri a) T-DP-1 kodlu malzemenin, b) T-DP-2 kodlu malzemenin

3.2. Elektriksel İletkenlik Bulguları

Her iki malzeme de üretimlerinden sonra ister istemez laboratuvar atmosferine maruz kalmıştır. Bu neden ile malzemelerin ölçümleri laboratuvar atmosferinden başlamaktadır. Laboratuvar atmosferinde ve 300 K sıcaklıktaki malzemeler kriyostat'a koyulduktan sonra Ohmik gerilim altında zamana bağlı karanlık iletkenlik değerleri kayıt altına alınmıştır. Karanlık iletkenlik değerlerindeki değişimin minimum olduğu durum, yani kararlı olduğu durum, zamana bağlı olarak alınan grafikten belirlenmektedir. Laboratuvar atmosferinde karanlık iletkenlik değerlerinin kararlı olması ile vakum pompası çalıştırılarak sistem vakum ortamına alınmaktadır. Vakum ilk 15'dk içerisinde 1×10^{-5} mBar seviyesine ulaşmaktadır. Şekil 3'de MAPbI₃ filmin laboratuvar atmosferinden vakum atmosferine geçerken Ohmik gerilim altında zamana bağlı karanlık iletkenlik değerlerindeki değişimler gösterilmektedir. Şekil 3 a'da görüleceği gibi T-DP-1 kodlu malzeme laboratuvar atmosferinden vakum atmosferine geçişi sırasında karanlık iletkenlik değerlerinde yaklaşık olarak 6 katlık bir azalma belirlenmiştir. Vakum atmosferine geçerken gerçekleşen bu azalmanın temel nedeni malzeme yüzeyine fiziksel olarak tutunan laboratuvar atmosferindeki moleküllerin vakum ortamı ile yüzeyden uzaklaşması ve malzemenin kendi iletkenlik değerlerinin okunmaya başlamasından kaynaklıdır. Şekil 3 b'de T-DP-2 kodlu MAPbI₃ filmin laboratuvar atmosferinden vakum atmosferinde geçişi sırasında karanlık iletkenlik değerlerinde önce 2 katlık bir azalma ardından kararlı hale geldiğinde ise laboratuvar atmosferine göre yaklaşık 1 katlık bir azalma gösterdiği belirlenmiştir. Bu durum temel olarak T-DP-2 kodlu malzemenin yüzeyine çok az miktarda laboratuvar atmosferinde bulunan gazların tutunabildiğini göstermektedir.



Şekil 3. a) T-DP-1 kodlu malzemenin laboratuvar atmosferinden vakum atmosferine geçişi sırasındaki karanlık iletkenlik bulguları, b) T-DP-2 kodlu malzemenin laboratuvar atmosferinden vakum atmosferine geçişi sırasındaki karanlık iletkenlik bulguları



Şekil 4. a) T-DP-1 kodlu malzemenin saf su buharı yaşlandırma uygulaması sırasındaki karanlık iletkenlik bulguları, b) T-DP-2 kodlu malzemenin saf su buharı yaşlandırma uygulaması sırasındaki karanlık iletkenlik bulguları

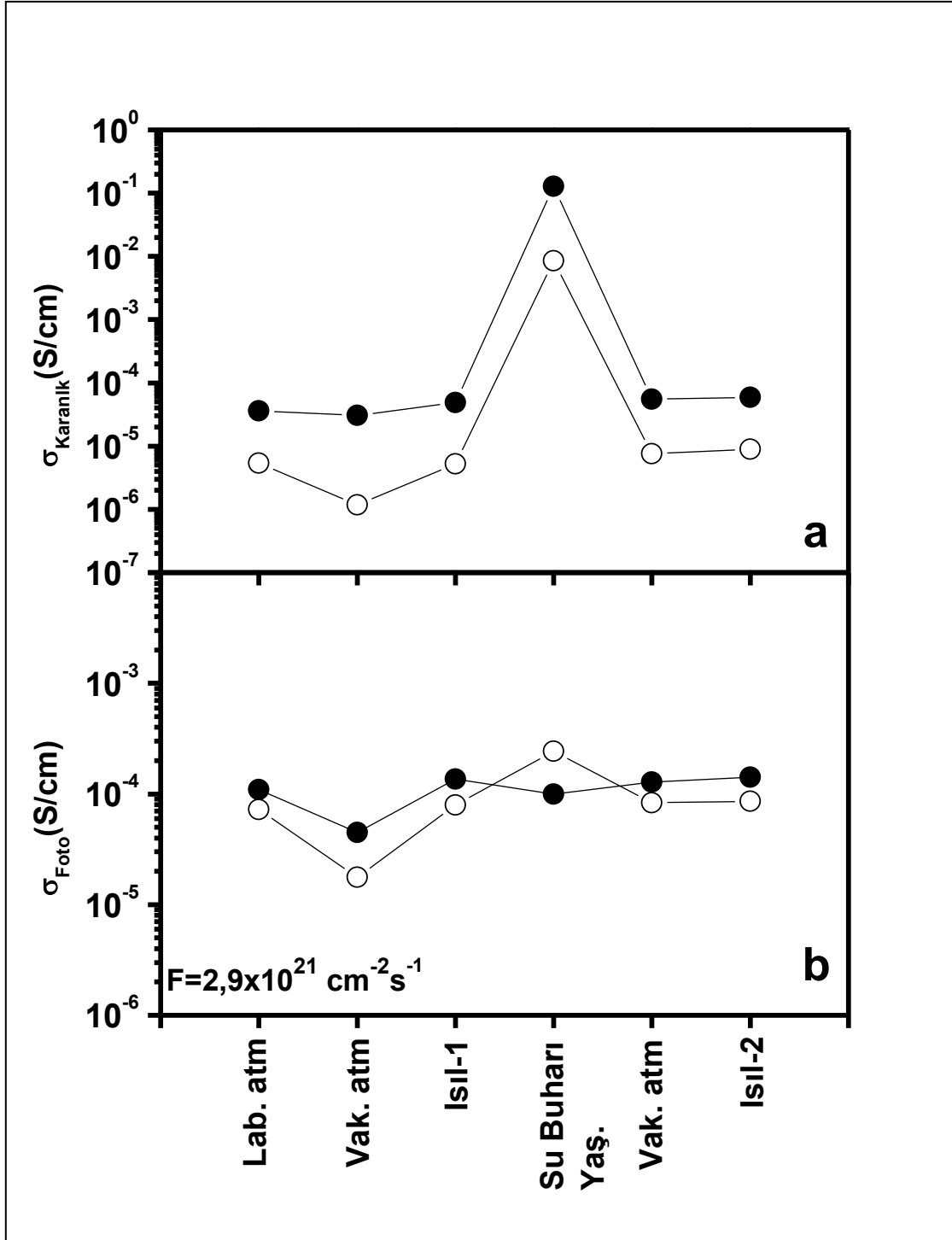
Malzemeler vakum atmosferinde kararlı hale geldikten sonra 400 K'de 30 dakika ısıtılma işlemi tabii tutulmuştur. Malzemelerin vakum atmosferi bozulmadan 300 K'e kadar soğumalarının ardından yine vakum atmosferinde zamana bağlı karanlık iletkenlik değerleri kayıt altına alınmıştır. Her iki malzeme de vakum atmosferinde zamana bağlı karanlık iletkenlik değerleri kayıt altına alınırken sisteme saf su buharı gönderilmiştir. Saf su buharı uygulaması ile malzemelerde oluşan karanlık iletkenlik değişimleri Şekil 4'de sunulmuştur.

Her iki malzemeye de 300 K'de karanlık ortamda 30 dakika boyunca saf su buharı uygulaması gerçekleştirilmiştir. Her iki malzemede de su buharı uygulamasında karanlık iletkenlik değerleri yaklaşık 10.000 kat artış sergilemiştir. Yine her iki malzemenin de su buharı uygulaması kapatılmasının ardından karanlık iletkenlik değerleri yaklaşık 10.000 kat düşmüştür. Şekil 4 a'da gösterildiği gibi T-DP-1 kodlu MAPbI3 film su buharı uygulaması sonrası vakuma alınması ile karanlık iletkenlik değerlerinde bir miktar daha azalma gerçekleşmiştir. Ancak malzemenin karanlık iletkenlik değerlerinin kararlı hale gelmesi ile su buharı uygulaması öncesi ve su buharı uygulaması sonrası karanlık iletkenlik değerleri karşılaştırıldığında karanlık iletkenlik değerlerinde yaklaşık olarak 5 katlık bir artış olduğu belirlenmiştir. Şekil 4 b'de ise T-DP-2 kodlu MAPbI3 filmin su buharı uygulaması sonrası vakumda karanlık iletkenlik değerleri kararlı hale geldiğinde elde edilen değer su buharı uygulaması öncesindeki değerle karşılaştırıldığında hata sınırları içerisinde bir değişim olmadığı söylenebilir.

3.3. Karanlık İletkenlik ve Fotoiletkenlik Özet Bulguları

Şekil 5 'de her iki malzemeye de uygulanan bütün adımlar sonrasında kararlı durumlarda elde edilen karanlık ve fotoiletkenlik değerleri özet grafik olarak sunulmuştur. Şekil 5 a incelendiğinde T-DP-1 kodlu malzemenin karanlık iletkenlik değeri vakum ortamına alınması ile azalmakta, ısıtılma işlemi-1 ile artış göstermekte, su buharı uygulaması sonrası gerçekleştirilen ikinci ısıtılma işlemi ile ısıtılma işlemi-1 değerine göre artış sergilediği görülmektedir. Buna karşın T-DP-2 kodlu malzemede su buharı uygulaması dışında karanlık iletkenlik değerlerinde kayda değer belirgin bir değişim olmadığı görülmektedir.

Şekil 5 b incelendiğinde ise T-DP-1 kodlu malzemenin fotoiletkenlik değerlerinin karanlık iletkenlik ile benzer bir davranış modeline sahip olduğu görülmektedir. Ancak T-DP-2 kodlu malzemenin fotoiletkenlik değerleri incelendiğinde karanlık iletkenlik değerlerinden farklı olarak sistemin vakuma alınması ile fotoiletkenlik değerlerinde önce azalma ardından ısıtılma işlemi-1 uygulaması ile yeniden artış, su buharı uygulaması ile yeniden bir miktar azalma ve ikinci ısıtılma işlemi uygulaması ile birinci ısıtılma işlemi uygulamasında elde edilen fotoiletkenlik değerlerine geri geldiği görülmektedir. Bu durum T-DP-2 kodlu malzemenin yasak enerji aralığında iletkenlik bandına yakın bölgelerde farklı atmosferik koşulların uygulanmasından kaynaklı olarak elektronik kusur yoğunluklarında değişimlerin oluştuğunu ancak bu değişimlerin ısıtılma işlemi uygulamaları ile ortadan kalkarak atmosferik koşulların bu malzeme özelinde tamamen geri dönüşümlü etkilere sebep olduğunu göstermektedir.



Şekil 5. a) MAPbI₃ filmlerin farklı atmosferik koşullarda kararlı durum karanlık iletkenlik değişimleri, b) MAPbI₃ filmlerin farklı atmosferik koşullarda kararlı durum fotoiletkenlik değişimleri. F: Işık akısı, Boş semboller T-DP-1, dolu semboller T-DP-2 kodlu malzemeyi göstermektedir.

4. Sonuç ve Yorum

MAPbI₃ filmlerin üretimi sırasında termal CVD ve damla döküm yöntemleri kullanılmıştır. Termal CVD yöntemi ile büyütme sıcaklığına bağlı olarak farklı morfolojik yapıda PbI₂ matrisleri büyütülmüştür. MAI'ün damla döküm yöntemi kullanılarak PbI₂ matrisi üzerine uygulanması ile ince filmlerde kristallenmeler gözlemlenmiştir. Ancak ince filmlerdeki temel gözenekli yapının kaynağı ilk olarak büyütülen PbI₂ matrisinden kaynaklanmaktadır [23]. İnce filmlerin yüzeyinde oluşan gözenekli ya da kompakt morfoloji özellikle atmosferik yaşlandırmalarda gaz

moleküllerinin fiziksel tutunmasına ya da kimyasal bağ yapmasına imkan sağlamaktadır. Üretilen filmlerde laboratuvar atmosferinden vakum atmosferine geçişleri sırasında karanlık iletkenlik değerlerindeki değişimlerin temel nedeni laboratuvar atmosferinde iken malzeme yüzeyine ve ara yüzeylerine fiziksel olarak tutunan atmosferik gazlardır. Fiziksel olarak tutunan bu moleküller malzeme yüzeyinde paralel bir direnç etkisi oluşturarak malzemenin iletkenlik değerlerini etkilemektedir. Yine fiziksel olarak tutunan bu moleküller sistemin vakuma alınması ile malzemeden uzaklaşarak yüzeydeki paralel direnç etkisini ortadan kalkmasına neden olurlar. Bu durum malzemenin kendi iletkenlik değerlerinin okunmasına imkan sağlar. Bu neden ile yaşlandırma işlemleri tek gaz atmosferinde, kararsızlık çalışmalarının karşılaştırılmaları ise vakum altında alınan ölçümler arasında yapılmalıdır.

Malzemelere uygulanan su buharı da laboratuvar atmosferindeki etkiye benzer bir şekilde malzemelerin kontakları arasında bir paralel direnç oluşmasına neden olur. Ancak bu sefer su moleküllerinden kaynaklı olarak paralel direnç düşer ve karanlık iletkenlik değerlerinde yaklaşık 10.000 katlık artış gözlemlenir. Bu etkinin bir kısmı sistemin vakuma alınması ile ortadan kalkar. Ancak yüzey yapısı gözenekli ve ara yüzey alanı daha büyük olan malzemelerde su buharı kimyasal bağ yaparak malzemenin iletkenlik değerlerini geri dönüşümsüz olarak değiştirebilir.

Fermi seviyesi ile iletkenlik bandı arasında çoğunluğa sahip elektronik kusurlar karanlık iletkenlik değerlerinin şekillenmesini sağlar. Ancak malzemelere ışık uygulanması ile Fermi seviyesi yarı kararlı Fermi seviyelerine (E_{fn} , E_{fp}) ayrılır ve yarı kararlı Fermi seviyelerin iletkenlik/değerlik bandına yaklaşır. İletkenlik bandına yaklaşan E_{fn} Fermi seviyesi yasak enerji aralığındaki sadece dar bir alandaki elektronik kusur durumları ile fotoiletkenliğin belirlenmesini sağlar. Böylece bu dar alanda atmosferik koşullardan kaynaklı olarak farklı elektronik kusurların yoğunluğu değişebilir ve bu değişime bağlı olarak fotoiletkenlik değerleri değişebilir. Böylece karanlık iletkenlik değerlerinde belirlenemeyen etkiler fotoiletkenlik ölçümleri ile algılanabilir.

Araştırmacıların Katkı Oranı Beyanı

Ayşegül ÇOŞĞUN: Araştırma, Kaynak/Materyal/Malzeme Temini, Görselleştirme.
Gökhan YILMAZ: Araştırma, Doğrulama, İnceleme ve Düzenleme, Biçimsel Analiz, Denetim/Gözlem/Tavsiye, Orijinal Taslak Yazımı, Proje Yönetimi.

Destek ve Teşekkür Beyanı

Bu çalışma 119F033 proje numarası ile TÜBİTAK tarafından desteklenmiştir. Çalışmada kullanılan bazı ekipmanlar Cumhurbaşkanlığına bağlı olarak Cumhurbaşkanlığı Strateji ve Bütçe Başkanlığı tarafından 2017K12 ve 41003-12 proje numarası ile desteklenen ve yürütücülüğünü Burdur Mehmet Akif Ersoy Üniversitesinin yapmış olduğu “Bölgesel Kalkınma Odağı, Misyon Farklılaştırma ve Uzmanlaşma Programı: Burdur İlinde Sektörel Rekabet Gücünün Artırılması / Enerji Bölümü” tarafından desteklenmiştir. Çalışma kapsamında kullanılan bazı sarf malzemeler Burdur Mehmet Akif Ersoy Üniversitesi, Bilimsel Araştırma Projeleri Koordinatörlüğü (MAKÜ-BAP) tarafından 0695-YL-21 proje numarası ile desteklenmiştir. Araştırmacılar olarak Forschungszentrum Jülich /Almanya ve Dr. Friedhelm FINGER’a bağışlarından dolayı teşekkür ederiz. Buna ek olarak akademik destekleri için Prof.Dr. Fatih Mehmet EMEN, Doçent Dr. Murat KALELİ, Uzman Dr.Salih AKYÜREKLİ, Doktora öğrencisi Ayşegül TAŞÇIOĞLU, Y.Lisans öğrencileri Asuman KOÇU ve Fatma Nur SARIKAYA’ya teşekkür ederiz.

Çatışma Beyanı

Bu çalışmanın yazarları olarak herhangi bir çatışma beyanımız bulunmadığını bildiririz.

Etik Kurul Onayı ve/veya Aydınlatılmış Onam Bilgileri

Bu çalışmanın yazarları olarak herhangi bir etik kurul onayı ve/veya aydınlatılmış onam bilgileri beyanımız bulunmadığını bildiririz.

Kaynakça

- [1] A. Kojima, K. Teshima, Y. Shirai, and T. Miyasaka, "Organometal halide perovskites as visible-light sensitizers for photovoltaic cells," *J. Am. Chem. Soc.*, 131, 6050–6051, 2009.
- [2] X. Y. Chin, D. Cortecchia, J. Yin, A. Bruno, and C. Soci, "Lead iodide perovskite light-emitting field-effect transistor," *Nat. Commun.*, 6 7383, 2015.
- [3] Y. Deng, E. Peng, Y. Shao, Z. Xiao, Q. Dong, and J. Huang, "Scalable fabrication of efficient organolead trihalide perovskite solar cells with doctor-bladed active layers," *Energy Environ. Sci.*, 8 1544–1550, 2015.
- [4] Z. Guo, J. S. Manser, Y. Wan, P. V. Kamat, and L. Huang, "Spatial and temporal imaging of long-range charge transport in perovskite thin films by ultrafast microscopy," *Nat. Commun.*, 6, 7471, 2015.
- [5] E. M. Hutter, G. E. Eperon, S. D. Stranks, and T. J. Savenije, "Charge carriers in planar and meso-structured organic–inorganic perovskites: Mobilities, lifetimes, and concentrations of trap states," *J. Phys. Chem. Lett.*, 6, 3082–3090, 2015.
- [6] D.-D. Li, W.-L. Chen, X.-L. Xu, F. Jiang, L. Wang, Y.-Y. Xie, X.-J. Zhang, X.-K. Guo, Q.-D. You, and H.-P. Sun, "Structure-based design and synthesis of small molecular inhibitors disturbing the interaction of MLL1-WDR5," *Eur. J. Med. Chem.*, 118, 1–8, 2016.
- [7] F. Li, C. Ma, H. Wang, W. Hu, W. Yu, A.D. Sheikh, and T. Wu, "Ambipolar solution-processed hybrid perovskite phototransistors," *Nat. Commun.*, 6, 8238, 2015.
- [8] Z. Lian, Q. Yan, T. Gao, J. Ding, Q. Lv, C. Ning, Q. Li, and J. Sun, "Perovskite CH₃NH₃PbI₃ (Cl) single crystals: Rapid solution growth, unparalleled crystalline quality, and low trap density toward 10⁸ cm⁻³," *J. Am. Chem. Soc.*, 138, 9409–9412, 2016.
- [9] Y. Lin, Y. Bai, Y. Fang, Q. Wang, Y. Deng, and J. Huang, "Suppressed ion migration in low-dimensional perovskites," *ACS Energy Lett.*, 2, 1571–1572, 2017.
- [10] Y. Mei, C. Zhang, Z. V. Vardeny, and O. D. Jurchescu, "Electrostatic gating of hybrid halide perovskite field-effect transistors: balanced ambipolar transport at room-temperature," *MRS Commun.*, 5, 297–301, 2015.
- [11] C. Motta, F. El-Mellouhi, and S. Sanvito, "Charge carrier mobility in hybrid halide perovskites," *Sci. Rep.*, 5, 12746, 2015.
- [12] H. Oga, A. Saeki, Y. Ogomi, S. Hayase, and S. Seki, "Improved understanding of the electronic and energetic landscapes of perovskite solar cells: high local charge carrier mobility, reduced recombination, and extremely shallow traps," *J. Am. Chem. Soc.*, 136, 13818–13825, 2014.
- [13] S. D. Stranks, G. E. Eperon, G. Grancini, C. Menelaou, M. J. P. Alcocer, T. Leijtens, L. M. Herz, A. Petrozza, and H. J. Snaith, "Electron-hole diffusion lengths exceeding 1 micrometer in an organometal trihalide perovskite absorber," *Science*, 342, 341–344, 2013.
- [14] Y.-C. Zhao, W.-K. Zhou, X. Zhou, K.-H. Liu, D.-P. Yu, and Q. Zhao, "Quantification of light-enhanced ionic transport in lead iodide perovskite thin films and its solar cell applications," *Light Sci. Appl.*, 6, e16243–e16243, 2017.
- [15] K. Domanski, E.A. Alharbi, A. Hagfeldt, M. Grätzel, and W. Tress, "Systematic investigation of the impact of operation conditions on the degradation behaviour of perovskite solar cells," *Nat. Energy*, 3, 61–67, 2018.
- [16] M. Alsari, A. J. Pearson, J. T. W. Wang, Z. Wang, A. Montisci, N. C. Greenham, H. J. Snaith, S. Lilliu, and R. H. Friend, "Degradation kinetics of inverted perovskite solar cells," *Sci. Rep.*, 8, 6–11, 2018.
- [17] H. S. Jung and N. G. Park, "Perovskite solar cells: From materials to devices," *Small*, 11, 10–25, 2015.
- [18] J. A. Christians, P.A. Miranda Herrera, and P. V. Kamat, "Transformation of the excited state and photovoltaic efficiency of CH₃NH₃PbI₃ perovskite upon controlled exposure to humidified air," *J. Am. Chem. Soc.*, 137, 1530–1538, 2015.
- [19] T. Leijtens, G. E. Eperon, S. Pathak, A. Abate, M. M. Lee, and H. J. Snaith, "Overcoming ultraviolet light instability of sensitized TiO₂ with meso-superstructured organometal tri-halide perovskite solar cells," *Nat. Commun.*, 4, 1–8, 2013.
- [20] W. Li, W. Zhang, S. Van Reenen, R. J. Sutton, J. Fan, A. A. Haghighirad, M.B. Johnston, L. Wang, and H. J. Snaith, "Enhanced UV-light stability of planar heterojunction perovskite solar cells with

- caesium bromide interface modification,” *Energy Environ. Sci.*, 9, 490–498, 2016.
- [21] F. Bella, G. Griffini, J. P. Correa-Baena, G. Saracco, M. Grätzel, A. Hagfeldt, S. Turri, and C. Gerbaldi, “Improving efficiency and stability of perovskite solar cells with photocurable fluoropolymers,” *Science*, 354, 203–206, 2016.
- [22] J. M. Frost, K. T. Butler, F. Brivio, C. H. Hendon, M. van Schilfgaarde, and A. Walsh, “Atomistic origins of high-performance in hybrid halide perovskite solar cells,” *Nano Lett.*, 14, 2584–2590, 2014.
- [23] G. Yilmaz, A. Cosgun, and A. Tascioglu, “Lead iodide thin-film morphological-dependent metastability investigation by electrical conductivity,” *J. Mater. Sci. Mater. Electron.*, 32, 3222–3231, 2021.
- [24] D. Wang, M. Wright, N.K. Elumalai, and A. Uddin, “Stability of perovskite solar cells,” *Sol. Energy Mater. Sol. Cells.*, 147, 255–275, 2016.