



(12) BẢN MÔ TẢ SÁNG CHẾ THUỘC BẰNG ĐỘC QUYỀN SÁNG CHẾ

(19) Cộng hòa xã hội chủ nghĩa Việt Nam (VN)
CỤC SỞ HỮU TRÍ TUỆ

(11)



1-0052115

(51)^{2021.01} H01L 51/00; H01L 51/42

(13) B

(21) 1-2022-03837

(22) 23/11/2020

(86) PCT/US2020/061820 23/11/2020

(87) WO 2021/108316 03/06/2021

(30) 62/941,320 27/11/2019 US

(45) 27/10/2025 451

(43) 25/11/2022 416A

(73) CubicPV Inc. (US)

1807 Ross Avenue, Suite 333, Dallas, Texas 75201, United States of America

(72) IRWIN, Michael David (US); MIELCZAREK, Kamil (CA); ANDERSON, Nicholas Charles (US).

(74) Công ty TNHH Tầm nhìn và Liên danh (VISION & ASSOCIATES CO.LTD.)

(54) CHẾ PHẨM LỚP PHÂN CÁCH LIÊN KẾT NGANG, THIẾT BỊ QUANG ĐIỆN
VÀ PHƯƠNG PHÁP SẢN XUẤT THIẾT BỊ QUANG ĐIỆN NÀY

(21) 1-2022-03837

(57) Sáng chế đề cập đến chế phẩm lớp phân cách liên kết ngang, thiết bị quang điện và phương pháp sản xuất thiết bị quang điện này. Thiết bị quang điện bao gồm vật liệu quang hoạt bao gồm vật liệu perovskit và lớp phân cách bao gồm polyme liên kết ngang mà gồm có fullerene hoặc dẫn xuất fullerene, chất liên kết ngang, và một hoặc nhiều polyme được chọn từ nhóm bao gồm polystyren, metyl este của axit [6,6]-phenyl-C61-butyric, poly(4-vinylphenol), axit [6,6]-phenyl-C61-butyric, và dạng kết hợp bất kỳ của chúng.

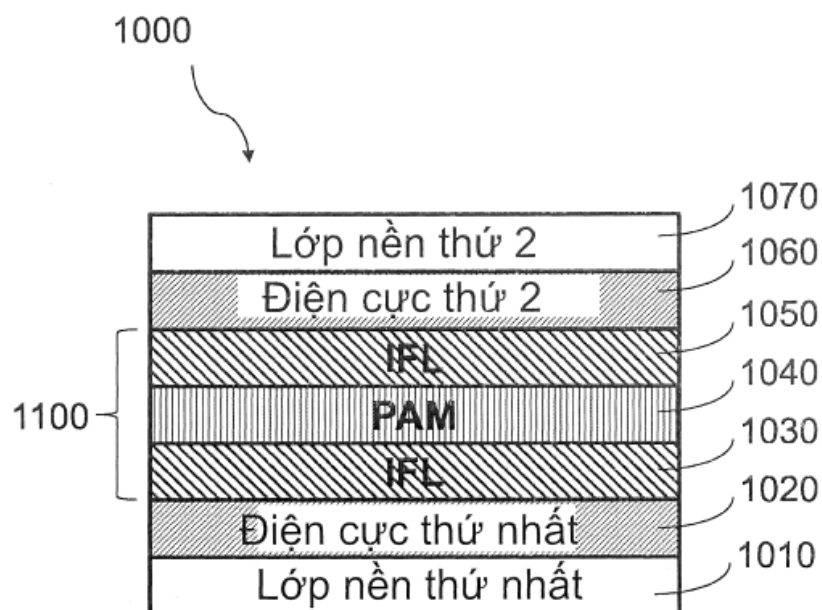


FIG. 1

Lĩnh vực kỹ thuật được đề cập

Sáng chế đề cập đến chế phẩm lớp phân cách liên kết ngang, thiết bị quang điện và phương pháp sản xuất thiết bị quang điện này.

Tình trạng kỹ thuật của sáng chế

Việc sử dụng thiết bị quang điện (photovoltaic, PV) để tạo ra điện năng từ bức xạ hoặc năng lượng mặt trời có thể mang lại nhiều lợi ích, bao gồm, ví dụ, nguồn điện, lượng phát thải thấp hoặc bằng không, sản xuất điện không phụ thuộc vào lưới điện, cấu trúc vật lý bền (không có bộ phận chuyển động), hệ thống ổn định và đáng tin cậy, cấu tạo dạng môđun, lắp đặt tương đối nhanh, sản xuất và sử dụng an toàn, và sự chấp thuận sử dụng và dư luận tốt.

PV có thể tích hợp các lớp vật liệu perovskit làm lớp quang hoạt để tạo ra điện năng khi tiếp xúc với ánh sáng. Các lớp bổ sung trong các thiết bị PV có thể hỗ trợ vận chuyển điện tích từ lớp quang hoạt. Việc lựa chọn lớp vận chuyển điện tích có thể ảnh hưởng đến hiệu suất và độ bền của thiết bị PV.

Các đặc điểm và ưu điểm của sáng chế sẽ dễ dàng được nhận thấy bởi người có hiểu biết trung bình về lĩnh vực kỹ thuật liên quan. Mặc dù nhiều thay đổi có thể được thực hiện bởi người có hiểu biết trung bình về lĩnh vực kỹ thuật liên quan, nhưng các thay đổi như vậy sẽ thuộc phạm vi của sáng chế.

Bản chất kỹ thuật của sáng chế

Theo một số phương án, phương pháp chế tạo thiết bị quang điện chứa vật liệu perovskit bao gồm bước lắng đọng vật liệu perovskit, lắng đọng lớp các fulleren, lắng đọng halosilylalkan, và gia nhiệt alkyl hydroxit để khiến cho halosilylalkan liên kết với các fulleren.

Theo một số phương án, polyme liên kết ngang bao gồm halosilylalkan và một hoặc nhiều monome được chọn từ nhóm bao gồm polystyren, metyl este của axit [6,6]-phenyl-C61-butyric, poly(4-vinylphenol), axit [6,6]-phenyl-C61-butyric, và dạng kết hợp của chúng.

Theo một số phương án, thiết bị quang điện bao gồm vật liệu quang hoạt bao gồm vật liệu perovskit. Thiết bị quang điện còn bao gồm lớp phân cách bao gồm polyme liên kết ngang mà gồm có halosilylalkan và một hoặc nhiều monome được chọn từ nhóm bao gồm polystyren, metyl este của axit [6,6]-phenyl-C61-butyric, poly(4-vinylphenol), axit [6,6]-phenyl-C61-butyric, và dạng kết hợp của chúng.

Mô tả vắn tắt các hình vẽ

Fig.1 là sơ đồ của tế bào quang điện (photovoltaic, PV) điển hình bao gồm lớp hoạt động theo một số phương án của sáng chế.

Fig.2 là sơ đồ cách điệu thể hiện các thành phần của thiết bị PV làm ví dụ theo một số phương án của sáng chế.

Fig.3 là sơ đồ cách điệu thể hiện các thành phần của thiết bị làm ví dụ theo một số phương án của sáng chế.

Fig.4 là sơ đồ cách điệu thể hiện các thành phần của thiết bị làm ví dụ theo một số phương án của sáng chế.

Fig.5 là sơ đồ cách điệu thể hiện hình minh họa của perovskit Ruddlesden-Popper.

Fig.6 là sơ đồ cách điệu thể hiện hình minh họa của vật liệu perovskit, có thêm cation alkyl amoni theo một số phương án của sáng chế.

Fig.7 là sơ đồ cách điệu thể hiện hình minh họa của vật liệu perovskit có lớp bề mặt 1-butylamoni theo một số phương án của sáng chế.

Fig.8 là sơ đồ cách điệu thể hiện hình minh họa của vật liệu perovskit có lớp bề mặt bao gồm nhiều cation hữu cơ cỡ lớn theo một số phương án của sáng chế.

Fig.8A là sơ đồ cách điệu thể hiện hình minh họa của vật liệu perovskit có lớp bề mặt bao gồm nhiều cation hữu cơ cỡ lớn theo một số phương án của sáng chế.

Fig.9 là hình minh họa sự so sánh các hình ảnh đã được chụp của vật liệu perovskit có và không có lớp phủ bề mặt 1-butylamoni (“BAI”) theo một số phương án của sáng chế.

Fig.10 là hình minh họa sự so sánh các hình ảnh đã được chụp của vật liệu perovskit có và không có lớp phủ bề mặt 1-butylamoni (“BAI”) theo một số phương án của sáng chế.

Các hình vẽ từ Fig.11A đến Fig.11D minh họa các perylen monoimit và diimit khác nhau mà có thể được cấp lên bề mặt của vật liệu perovskit theo một số phương án của sáng chế.

Fig.12 là sơ đồ cách điệu thể hiện hình minh họa của vật liệu perovskit có thêm cation perylen monoimit amoni theo một số phương án của sáng chế.

Fig.13 là sơ đồ cách điệu thể hiện hình minh họa của 1,4-diamoni butan được kết hợp vào mạng tinh thể của vật liệu perovskit formamidini chì iodua theo một số phương án của sáng chế.

Fig.14 là hình minh họa các đỉnh nhiễu xạ tia X (x-ray diffraction, XRD) đối với perovskit có các nồng độ khác nhau của 1,4-diamoni butan theo một số phương án của sáng chế.

Fig.15 thể hiện hình ảnh của các mẫu vật liệu perovskit có các nồng độ khác nhau của 1,4-diamoni butan theo thời gian theo một số phương án của sáng chế.

Fig.16 thể hiện các hình minh họa của các cation poly-amoni alkyl theo một số phương án của sáng chế.

Fig.16A là sơ đồ cách điệu thể hiện hình minh họa của 1,8 diamoni octan được kết hợp vào mạng tinh thể của vật liệu perovskit formamidini chì iodua theo một số phương án của sáng chế.

Fig.16B là sơ đồ cách điệu thể hiện hình minh họa của bis(4-aminobutyl)-amoni được kết hợp vào mạng tinh thể của vật liệu perovskit formamidini chì iodua theo một số phương án của sáng chế.

Fig.16C là sơ đồ cách điệu thể hiện hình minh họa của tris(4-aminobutyl)-amoni được kết hợp vào mạng tinh thể của vật liệu perovskit formamidini chì iodua theo một số phương án của sáng chế.

Các hình vẽ từ Fig.17 đến Fig.28 thể hiện các hình minh họa cấu trúc của một số phân tử hữu cơ theo một số phương án của sáng chế.

Fig.29 minh họa các đồ thị nhiễu xạ tia X của các vật liệu perovskit theo một số phương án của sáng chế.

Fig.30 thể hiện minh họa cách điều độ dày của các mạng con halogenua kim loại vô cơ của các vật liệu perovskit theo một số phương án của sáng chế.

Fig.31 thể hiện hình ảnh quang học và phát quang quang học (phát quang do bức xạ) của các thiết bị quang điện chứa vật liệu perovskit theo một số phương án của sáng chế.

Fig.32 minh họa biểu đồ đầu ra công suất của các thiết bị quang điện chứa vật liệu perovskit theo một số phương án của sáng chế.

Fig.33 minh họa đường quét dòng điện-điện áp (current-voltage, I-V) của các thiết bị quang điện chứa vật liệu perovskit theo một số phương án của sáng chế.

Fig.34 minh họa đồ thị dạng hộp đối với điện áp hở mạch (open-circuit voltage, Voc), mật độ dòng ngắn mạch (Jsc), hệ số lấp đầy (Fill Factor, FF) và hiệu suất chuyển đổi năng lượng (power conversion efficiency, PCE) của các thiết bị quang điện chứa vật liệu perovskit theo một số phương án của sáng chế.

Fig.35 minh họa đường cong hiệu suất lượng tử ngoài (external quantum efficiency, EQE) của các thiết bị quang điện chứa vật liệu perovskit theo một số phương án của sáng chế.

Fig.36 thể hiện đồ thị đo phổ dẫn nạp của các thiết bị quang điện chứa vật liệu perovskit theo một số phương án của sáng chế.

Fig.37 minh họa cấu trúc của lớp phân cách liên kết ngang, theo các phương án cụ thể.

Fig.38 minh họa cấu trúc của lớp phân cách liên kết ngang, theo các phương án cụ thể.

Fig.39 minh họa cấu trúc của lớp phân cách liên kết ngang, theo các phương án cụ thể.

Fig.40 minh họa cấu trúc của lớp phân cách liên kết ngang, theo các phương án cụ thể.

Fig.41 minh họa cấu trúc của lớp phân cách liên kết ngang, theo các phương án cụ thể.

Fig.42 minh họa cấu trúc của lớp phân cách liên kết ngang, theo các phương án cụ thể.

Fig.43 minh họa cấu trúc của lớp phân cách liên kết ngang, theo các phương án cụ thể.

Fig.44 minh họa cấu trúc của lớp phân cách liên kết ngang, theo các phương án cụ thể.

Fig.45 minh họa cấu trúc của lớp phân cách liên kết ngang, theo các phương án cụ thể.

Mô tả chi tiết sáng chế

Các cải tiến về các khía cạnh khác nhau của các công nghệ PV tương thích với PV hữu cơ, phi hữu cơ và/hoặc lai hứa hẹn làm giảm hơn nữa chi phí của cả PV hữu cơ và các PV khác. Ví dụ, một số pin mặt trời (solar cell), như pin mặt trời PV perovskit, có thể tận dụng các thành phần thay thế mới có hiệu quả về chi phí và độ ổn định cao, như lớp phân cách niken oxit. Ngoài ra, các loại pin mặt trời khác nhau có thể có lợi thế bao gồm các chất phụ gia hóa học và các vật liệu khác mà có thể, ngoài các ưu điểm khác, có hiệu quả về chi phí và bền hơn so với các lựa chọn thông thường hiện có.

Nói chung, sáng chế đề cập đến thành phần vật chất, thiết bị và phương pháp sử dụng vật liệu trong tế bào quang điện để tạo ra điện năng từ bức xạ mặt trời. Cụ thể hơn, sáng chế đề cập đến thành phần vật chất quang hoạt và các thành phần vật chất khác, cũng như thiết bị, phương pháp sử dụng và phương pháp tạo ra thành phần vật chất này.

Một số hoặc tất cả các vật liệu theo một số phương án của sáng chế cũng có thể được sử dụng một cách thuận lợi trong thiết bị điện hữu cơ hoặc thiết bị điện khác bất kỳ, với một số ví dụ bao gồm, nhưng không giới hạn ở: ắc quy, tranzito hiệu ứng

trường (FET), điốt phát quang (LED), thiết bị quang học phi tuyến, điện trở nhớ (memristor), tụ điện, bộ chỉnh lưu và/hoặc ăngten chỉnh lưu.

Theo một số phương án, sáng chế có thể đề xuất PV và các thiết bị tương tự (ví dụ, ắc quy, ắc quy PV lai, PV đa điểm nối, FET, LED, bộ dò tia X, bộ dò tia gamma, điốt quang, CCD, v.v.). Theo một số phương án, các thiết bị này có thể bao gồm vật liệu hoạt động cải tiến, lớp phân cách (IFL) và/hoặc một hoặc nhiều vật liệu perovskit. Vật liệu perovskit có thể được kết hợp vào các khía cạnh khác nhau trong số một hoặc nhiều khía cạnh của PV hoặc thiết bị khác. Theo một số phương án, vật liệu perovskit có thể có công thức tổng quát là CMX_3 , trong đó: C bao gồm một hoặc nhiều cation (ví dụ, amin, amoni, phosphoni, kim loại nhóm 1, kim loại nhóm 2 và/hoặc các cation khác hoặc các hợp chất giống cation); M bao gồm một hoặc nhiều kim loại (các ví dụ bao gồm Be, Mg, Ca, Sr, Ba, Fe, Cd, Co, Ni, Cu, Ag, Au, Hg, Sn, Ge, Ga, Pb, In, Tl, Sb, Bi, Ti, Zn, Cd, Hg và Zr); và X bao gồm một hoặc nhiều anion. Vật liệu perovskit theo các phương án khác nhau được mô tả chi tiết hơn dưới đây.

Tế bào quang điện và các thiết bị điện tử khác

Một số phương án của PV có thể được mô tả bằng cách tham chiếu đến các mô tả minh họa về pin mặt trời như được thể hiện trên Fig.1. Kết cấu PV làm ví dụ theo một số phương án về cơ bản có thể là dạng lớp nền-anôt-IFL-lớp hoạt động-IFL-catôt. Lớp hoạt động theo một số phương án có thể là quang hoạt và/hoặc nó có thể bao gồm vật liệu quang hoạt. Các lớp và các vật liệu khác có thể được sử dụng trong tế bào này như đã biết trong lĩnh vực này. Ngoài ra, cần lưu ý rằng việc sử dụng thuật ngữ “lớp hoạt động” không có nghĩa là để giới hạn hoặc theo cách khác là để xác định, một cách rõ ràng hay ngầm định, các tính chất của lớp khác bất kỳ - ví dụ, theo một số phương án, một trong hai hoặc cả hai IFL đều có thể có tính hoạt động trong chừng mực mà chúng có thể có tính bán dẫn. Cụ thể, tham chiếu đến Fig.1, tế bào PV 1000 tổng quát dạng cách điệu được thể hiện, minh họa tính chất phân cách ở mức cao của một số lớp trong PV. PV 1000 đại diện cho kết cấu tổng quát mà có thể áp dụng cho một số thiết bị PV, như các phương án PV chứa vật liệu perovskit. Tế bào PV 1000 bao gồm lớp nền 1010 trong suốt, có thể là thủy tinh (hoặc vật liệu trong suốt tương tự đối với bức xạ mặt trời) mà cho phép bức xạ mặt trời truyền qua lớp

này. Lớp trong suốt theo một số phương án có thể còn được gọi là lớp mặt hoặc lớp nền (ví dụ, như với lớp nền 3901 trên Fig.2), và nó có thể bao gồm một hoặc nhiều vật liệu bất kỳ trong số các loại vật liệu cứng hoặc mềm dẻo như: thủy tinh, polyetylen, polypropylen, polycacbonat, polyimit, PMMA, PET, PEN, Kapton hoặc thạch anh. Nói chung, thuật ngữ lớp nền dùng để chỉ vật liệu mà thiết bị được lắng đọng lên đó trong quá trình sản xuất. Lớp quang hoạt 1040 có thể bao gồm vật liệu cho điện tử hay vật liệu loại p và/hoặc vật liệu nhận điện tử hay vật liệu loại n và/hoặc vật liệu bán dẫn lưỡng cực mà có các đặc tính của cả vật liệu loại p và vật liệu loại n và/hoặc vật liệu bán dẫn thuần mà không có các đặc tính của cả loại n và loại p. Lớp quang hoạt 1040 có thể là vật liệu perovskit như được nêu trong bản mô tả này, theo một số phương án. Lớp hoạt động hoặc, như được thể hiện trên Fig.1, lớp quang hoạt 1040, được kẹp giữa hai lớp điện cực dẫn điện 1020 và 1060. Trên Fig.1, lớp điện cực 1020 có thể là vật liệu dẫn điện trong suốt như indi oxit pha thiếc (vật liệu ITO) hoặc vật liệu khác như được nêu trong bản mô tả này. Theo các phương án khác, lớp nền thứ hai 1070 và điện cực thứ hai 1060 có thể là trong suốt. Như đã lưu ý ở trên, lớp hoạt động theo một số phương án không nhất thiết phải là quang hoạt, mặc dù ở thiết bị được thể hiện trên Fig.1, lớp này là quang hoạt. Lớp điện cực 1060 có thể là vật liệu nhôm hoặc kim loại khác, hoặc các vật liệu dẫn điện khác như cacbon. Các vật liệu khác có thể được sử dụng như đã biết trong lĩnh vực này. Tế bào 1010 cũng bao gồm lớp phân cách (IFL) 1030, được thể hiện trong ví dụ trên Fig.1. IFL có thể hỗ trợ trong việc ngăn cách điện tích. Theo các phương án khác, IFL 1030 có thể là IFL nhiều lớp, được mô tả chi tiết hơn dưới đây. Cũng có thể có IFL 1050 liền kề với điện cực 1060. Theo một số phương án, IFL 1050 liền kề với điện cực 1060 cũng có thể hoặc thay vào đó là IFL nhiều lớp (một lần nữa, được mô tả chi tiết hơn dưới đây). IFL theo một số phương án có thể có tính chất bán dẫn và có thể là loại thuần, loại lưỡng cực, loại p hoặc loại n, hoặc nó có thể có tính chất điện môi. Theo một số phương án, IFL ở phía catốt của thiết bị (ví dụ, IFL 1050 như được thể hiện trên Fig.1) có thể là loại p, và IFL ở phía anốt của thiết bị (ví dụ, IFL 1030 như được thể hiện trên Fig.1) có thể là loại n. Tuy nhiên, theo các phương án khác, IFL ở phía catốt có thể bao gồm loại n và IFL ở phía anốt có thể bao gồm loại p. Tế bào 1010 có thể

được gắn vào dây dẫn điện bằng các điện cực 1060 và 1020 và bộ phóng điện, như ắc quy, động cơ, tụ điện, lưới điện hoặc tải điện khác bất kỳ.

Các phương án khác nhau của sáng chế đề xuất vật liệu và/hoặc thiết kế cải tiến về các khía cạnh khác nhau của pin mặt trời và các thiết bị khác, bao gồm, ngoài các khía cạnh khác, vật liệu hoạt động (bao gồm các lớp vận chuyển lỗ trống và/hoặc vận chuyển điện tử), lớp phân cách và thiết kế tổng thể của thiết bị.

Lớp phân cách

Theo một số phương án, sáng chế đề xuất vật liệu và thiết kế có lợi của một hoặc nhiều lớp phân cách trong PV, bao gồm IFL phủ mỏng. IFL phủ mỏng có thể được sử dụng trong một hoặc nhiều IFL của PV theo các phương án khác nhau nêu trong bản mô tả này.

Theo các phương án khác nhau, thiết bị có thể tùy ý bao gồm lớp phân cách giữa hai lớp và/hoặc vật liệu khác bất kỳ, mặc dù thiết bị không cần phải bao gồm bất kỳ lớp phân cách nào. Ví dụ, thiết bị chứa vật liệu perovskit có thể bao gồm không, một, hai, ba, bốn, năm hoặc nhiều lớp phân cách (như thiết bị làm ví dụ trên Fig.2, thiết bị này bao gồm năm lớp phân cách 3903, 3905, 3907, 3909 và 3911). Lớp phân cách có thể bao gồm vật liệu thích hợp bất kỳ để tăng cường sự vận chuyển và/hoặc tập hợp điện tích giữa hai lớp hoặc vật liệu; nó cũng có thể giúp ngăn chặn hoặc làm giảm khả năng tái kết hợp điện tích khi điện tích đã được vận chuyển ra khỏi một trong số các vật liệu liền kề với lớp phân cách. Ngoài ra, lớp phân cách có thể làm đồng nhất các lớp nền của nó về mặt vật lý và điện học để tạo ra các thay đổi về độ nhám của lớp nền, hằng số điện môi, độ bám dính, sự tạo ra và triệt tiêu khiếm khuyết (ví dụ, bẫy điện tích, trạng thái bề mặt). Vật liệu phân cách thích hợp có thể bao gồm một hoặc nhiều vật liệu bất kỳ trong số: Ag; Al; Au; B; Bi; Ca; Cd; Ce; Co; Cu; Fe; Ga; Ge; H; In; Mg; Mn; Mo; Nb; Ni; Pt; Sb; Sc; Si; Sn; Ta; Ti; V; W; Y; Zn; Zr; cacbua của kim loại bất kỳ trong số kim loại nêu trên (ví dụ, SiC, Fe₃C, WC, VC, MoC, NbC); silicua của kim loại bất kỳ trong số kim loại nêu trên (ví dụ, Mg₂Si, SrSi₂, Sn₂Si); oxit của kim loại bất kỳ trong số kim loại nêu trên (ví dụ, nhôm oxit, silic oxit, titan oxit, SnO₂, ZnO, NiO, ZrO₂, HfO₂), bao gồm oxit dẫn điện trong suốt (“TCO”: transparent conducting oxit) như indi thiếc oxit, kẽm oxit pha nhôm (AZO),

cadimi oxit (CdO) và thiếc oxit pha flo (FTO); sulfua của kim loại bất kỳ trong số kim loại nêu trên (ví dụ, CdS, MoS₂, SnS₂); nitrua của kim loại bất kỳ trong số kim loại nêu trên (ví dụ, GaN, Mg₃N₂, TiN, BN, Si₃N₄); selenua của kim loại bất kỳ trong số kim loại nêu trên (ví dụ, CdSe, FeSe₂, ZnSe); telurua của kim loại bất kỳ trong số kim loại nêu trên (ví dụ, CdTe, TiTe₂, ZnTe); phosphua của kim loại bất kỳ trong số kim loại nêu trên (ví dụ, InP, GaP, GaInP); arsenua của kim loại bất kỳ trong số kim loại nêu trên (ví dụ, CoAs₃, GaAs, InGaAs, NiAs); antimonua của kim loại bất kỳ trong số kim loại nêu trên (ví dụ, AlSb, GaSb, InSb); halogenua của kim loại bất kỳ trong số kim loại nêu trên (ví dụ, CuCl, CuI, BiI₃); halogenua giả của kim loại bất kỳ trong số kim loại nêu trên (ví dụ, CuSCN, AuCN, Fe(SCN)₂); cacbonat của kim loại bất kỳ trong số kim loại nêu trên (ví dụ, CaCO₃, Ce₂(CO₃)₃); nhóm alkyl silyl được tạo chức hoặc không được tạo chức; graphit; graphen; fulleren; ống nano cacbon; vật liệu mao quản trung bình và/hoặc vật liệu phân cách bất kỳ được nêu trong bản mô tả này; và dạng kết hợp của chúng (bao gồm, theo một số phương án, hai lớp, ba lớp hoặc nhiều lớp vật liệu kết hợp). Theo một số phương án, lớp phân cách có thể bao gồm vật liệu perovskit. Ngoài ra, lớp phân cách có thể bao gồm các phương án pha lẫn của vật liệu phân cách bất kỳ nêu trong bản mô tả này (ví dụ, ZnO pha Y, ống nano cacbon đơn thành pha N). Lớp phân cách có thể còn bao gồm hợp chất chứa ba trong số các vật liệu nêu trên (ví dụ, CuTiO₃, Zn₂SnO₄) hoặc hợp chất chứa bốn trong số các vật liệu nêu trên (ví dụ, CoNiZnO). Vật liệu được liệt kê ở trên có thể có mặt ở dạng phẳng, mao quản trung bình hoặc theo cách khác là có cấu trúc nano (ví dụ, hình que, hình cầu, hình hoa, hình tháp) hoặc cấu trúc gel khí (aerogel).

Trước tiên, như đã lưu ý ở trên, một hoặc nhiều IFL (ví dụ, một trong hai hoặc cả hai IFL 2626 và 2627 như được thể hiện trên Fig.1) có thể bao gồm hợp chất hữu cơ quang hoạt theo sáng chế ở dạng lớp đơn tự lắp ráp (SAM) hoặc ở dạng màng mỏng. Khi hợp chất hữu cơ quang hoạt theo sáng chế được cấp ở dạng SAM, nó có thể chứa nhóm liên kết mà nhờ đó nó có thể được liên kết theo cách cộng hóa trị hoặc theo cách khác vào bề mặt của một trong hai hoặc cả anốt và catốt. Nhóm liên kết theo một số phương án có thể bao gồm một hoặc nhiều nhóm bất kỳ trong số COOH, SiX₃ (trong đó X có thể bao gồm gốc bất kỳ thích hợp để tạo thành hợp chất silic bậc ba, như Si(OR)₃ và SiCl₃), SO₃, PO₄H, OH, CH₂X (trong đó X có thể bao gồm

halogenua nhóm 17) và O. Nhóm liên kết có thể được liên kết theo cách cộng hóa trị hoặc theo cách khác với gốc lấy điện tử, gốc cho điện tử và/hoặc gốc lõi. Nhóm liên kết có thể gắn vào bề mặt điện cực theo cách sao cho tạo ra lớp có tổ chức và định hướng của một phân tử đơn lẻ (hoặc, theo một số phương án, nhiều phân tử) theo độ dày (ví dụ, khi nhiều hợp chất hữu cơ quang hoạt được liên kết với anốt và/hoặc catốt). Như đã lưu ý, SAM có thể gắn thông qua tương tác cộng hóa trị, nhưng theo một số phương án, nó có thể gắn thông qua tương tác ion, tương tác lực liên kết hydro và/hoặc tương tác lực phân tán (tức là, Van Der Waals). Ngoài ra, theo các phương án nhất định, khi tiếp xúc với ánh sáng, SAM có thể đi vào trạng thái kích thích dạng ion lưỡng tính, từ đó tạo ra IFL phân cực cao, mà có thể hướng các hạt mang điện tích từ lớp hoạt động vào điện cực (ví dụ, anốt hoặc catốt). Quá trình bơm hạt mang điện tích được tăng cường này có thể, theo một số phương án, được thực hiện bằng cách phân cực mặt cắt của lớp hoạt động theo cách điện tử và do đó làm tăng tốc độ dịch chuyển hạt mang điện tích về phía điện cực tương ứng của chúng (ví dụ, lỗ trống đến anốt; điện tử đến catốt). Phân tử dùng cho ứng dụng anốt theo một số phương án có thể bao gồm hợp chất có thể điều chỉnh chứa gốc cho điện tử sơ cấp được liên kết với gốc lõi, gốc này lại được liên kết với gốc lấy điện tử, gốc này lại được liên kết với nhóm liên kết. Trong ứng dụng catốt theo một số phương án, phân tử IFL có thể bao gồm hợp chất có thể điều chỉnh chứa gốc nghèo điện tử được liên kết với gốc lõi, gốc này lại được liên kết với gốc cho điện tử, gốc này lại được liên kết với nhóm liên kết. Khi hợp chất hữu cơ quang hoạt được sử dụng làm IFL theo các phương án như vậy, nó có thể giữ lại tính quang hoạt, mặc dù theo một số phương án, nó không cần phải có tính quang hoạt.

Oxit kim loại có thể được sử dụng trong IFL màng mỏng theo một số phương án và có thể bao gồm oxit kim loại bán dẫn, như NiO , SnO_2 , WO_3 , V_2O_5 hoặc MoO_3 . Phương án trong đó vật liệu hoạt động thứ hai (ví dụ, loại n) bao gồm TiO_2 được phủ bằng IFL phủ mỏng chứa Al_2O_3 có thể được tạo ra, ví dụ, với vật liệu tiền chất như $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot x\text{H}_2\text{O}$, hoặc vật liệu khác bất kỳ thích hợp để lắng đọng Al_2O_3 lên TiO_2 , sau đó tôi ủ bằng nhiệt và phủ chất màu. Trong các phương án ví dụ trong đó lớp phủ MoO_3 được sử dụng thay vào đó, thì lớp phủ này có thể được tạo ra bằng vật liệu tiền chất như $\text{Na}_2\text{MoO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$; trong khi lớp phủ V_2O_5 theo một số phương án có thể được

tạo ra bằng vật liệu tiền chất như NaVO_3 ; và lớp phủ WO_3 theo một số phương án có thể được tạo ra bằng vật liệu tiền chất như $\text{NaWO}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$. Nồng độ của vật liệu tiền chất (ví dụ, $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot x\text{H}_2\text{O}$) có thể ảnh hưởng đến độ dày màng cuối cùng (ở đây là của Al_2O_3) được lắng đọng lên TiO_2 hoặc vật liệu hoạt động khác. Do đó, việc thay đổi nồng độ của vật liệu tiền chất có thể là một phương pháp có thể kiểm soát độ dày màng cuối cùng. Ví dụ, độ dày màng lớn hơn có thể là do nồng độ vật liệu tiền chất lớn hơn. Độ dày màng lớn hơn có thể không nhất thiết phải tạo ra PCE lớn hơn trong thiết bị PV chứa lớp phủ oxit kim loại. Do đó, phương pháp theo một số phương án có thể bao gồm bước phủ lớp TiO_2 (hoặc lớp mao quản trung bình khác) bằng cách sử dụng vật liệu tiền chất có nồng độ nằm trong khoảng từ khoảng 0,5 đến 10,0 mM; các phương án khác có thể bao gồm bước phủ lớp này bằng vật liệu tiền chất có nồng độ nằm trong khoảng từ khoảng 2,0 đến 6,0 mM; hoặc theo các phương án khác, từ khoảng 2,5 đến 5,5 mM.

Ngoài ra, mặc dù được đề cập đến trong bản mô tả này là Al_2O_3 và/hoặc nhôm oxit, nhưng cần lưu ý rằng các tỷ lệ khác nhau giữa nhôm và oxy có thể được sử dụng để tạo ra nhôm oxit. Do đó, mặc dù một số phương án nêu trong bản mô tả này được mô tả với tham chiếu đến Al_2O_3 , nhưng việc mô tả như vậy không nhằm xác định tỷ lệ được yêu cầu của nhôm trong oxy. Thay vào đó, các phương án có thể bao gồm một hoặc nhiều hợp chất nhôm-oxit bất kỳ, mỗi hợp chất này có tỷ lệ nhôm oxit theo Al_xO_y , trong đó x có thể là giá trị bất kỳ, nguyên hoặc không nguyên, nằm trong khoảng từ khoảng 1 đến 100. Theo một số phương án, x có thể nằm trong khoảng từ khoảng 1 đến 3 (và, một lần nữa, không cần phải là số nguyên). Tương tự, y có thể là giá trị bất kỳ, nguyên hoặc không nguyên, nằm trong khoảng từ 0,1 đến 100. Theo một số phương án, y có thể nằm trong khoảng từ 2 đến 4 (và, một lần nữa, không cần phải là số nguyên). Ngoài ra, các dạng kết tinh khác của Al_xO_y có thể tồn tại theo các phương án khác nhau, như dạng alpha, dạng gamma và/hoặc dạng vô định hình của nhôm oxit.

Tương tự, mặc dù được đề cập đến trong bản mô tả này là NiO , MoO_3 , WO_3 và V_2O_5 , nhưng thay vào đó hoặc ngoài ra, các hợp chất này có thể được thể hiện dưới dạng Ni_xO_y , Mo_xO_y , W_xO_y và V_xO_y , một cách tương ứng. Đối với mỗi trong số Mo_xO_y và W_xO_y , x có thể là giá trị bất kỳ, nguyên hoặc không nguyên, nằm trong khoảng từ

khoảng 0,5 đến 100; theo một số phương án, nó có thể nằm trong khoảng từ khoảng 0,5 đến 1,5. Tương tự, y có thể là giá trị bất kỳ, nguyên hoặc không nguyên, nằm trong khoảng từ khoảng 1 đến 100. Theo một số phương án, y có thể là giá trị bất kỳ nằm trong khoảng từ khoảng 1 đến 4. Đối với V_xO_y , x có thể là giá trị bất kỳ, nguyên hoặc không nguyên, nằm trong khoảng từ khoảng 0,5 đến 100; theo một số phương án, nó có thể nằm trong khoảng từ khoảng 0,5 đến 1,5. Tương tự, y có thể là giá trị bất kỳ, nguyên hoặc không nguyên, nằm trong khoảng từ khoảng 1 đến 100; theo các phương án nhất định, nó có thể là giá trị nguyên hoặc không nguyên nằm trong khoảng từ khoảng 1 đến 10. Theo một số phương án, x và y có thể có giá trị sao cho nằm trong tỷ lệ không phải hệ số tỷ lệ. Lưu ý rằng các vật liệu IFL bất kỳ được viết dưới dạng công thức theo hệ số tỷ lệ trong sáng chế cũng có thể tồn tại trong công thức không theo hệ số tỷ lệ như các ví dụ được mô tả ở trên.

Theo một số phương án, IFL có thể bao gồm titanat. Titanat theo một số phương án có thể có công thức tổng quát là $M'TiO_3$, trong đó M' là cation $2+$ bất kỳ. Theo một số phương án, M' có thể là dạng cation của Be, Mg, Ca, Sr, Ba, Ni, Zn, Cd, Hg, Cu, Pd, Pt, Sn hoặc Pb. Theo một số phương án, IFL có thể bao gồm một loại titanat, trong khi theo các phương án khác, IFL có thể bao gồm hai hoặc nhiều loại titanat khác nhau. Theo một phương án, titanat có công thức $SrTiO_3$. Theo phương án khác, titanat có thể có công thức $BaTiO_3$. Theo phương án khác nữa, titanat có thể có công thức $CaTiO_3$.

Để minh họa và không bao hàm bất kỳ giới hạn nào, titanat có cấu trúc tinh thể perovskit và tạo mầm mạnh mẽ cho quá trình chuyển hóa phát triển vật liệu perovskit (ví dụ, metylamoni chì iodua ($MAPbI_3$) và formamidini chì iodua ($FAPbI_3$)). Titanat thường cũng đáp ứng các yêu cầu IFL khác, như tính sắt điện, tính di động đủ của hạt mang điện tích, độ trong suốt quang học, mức năng lượng tương hợp và hằng số điện môi cao.

Theo các phương án khác, IFL có thể bao gồm ziriconat. Ziriconat theo một số phương án có thể có công thức tổng quát là $M'ZrO_3$, trong đó M' là cation $2+$ bất kỳ. Theo một số phương án, M' có thể là dạng cation của Be, Mg, Ca, Sr, Ba, Ni, Zn, Cd, Hg, Cu, Pd, Pt, Sn hoặc Pb. Theo một số phương án, IFL có thể bao gồm một loại

ziriconat, trong khi theo các phương án khác, IFL có thể bao gồm hai hoặc nhiều loại ziriconat khác nhau. Theo một phương án, ziriconat có công thức SrZrO_3 . Theo phương án khác, ziriconat có thể có công thức BaZrO_3 . Theo phương án khác nữa, ziriconat có thể có công thức CaZrO_3 .

Để minh họa và không bao hàm bất kỳ giới hạn nào, ziriconat có cấu trúc tinh thể perovskit và tạo mầm mạnh mẽ cho quá trình chuyển hóa phát triển vật liệu perovskit (ví dụ, MAPbI_3 , FAPbI_3). Ziriconat thường cũng đáp ứng các yêu cầu IFL khác, như tính sắt điện, tính di động đủ của hạt mang điện tích, độ trong suốt quang học, mức năng lượng tương hợp và hằng số điện môi cao.

Theo các phương án khác, IFL có thể bao gồm stanat. Stanat theo một số phương án có thể có công thức tổng quát là $\text{M}'\text{SnO}_3$ hoặc $\text{M}'_2\text{SnO}_4$, trong đó M' là cation 2+ bất kỳ. Theo một số phương án, M' có thể là dạng cation của Be, Mg, Ca, Sr, Ba, Ni, Zn, Cd, Hg, Cu, Pd, Pt, Sn hoặc Pb. Theo một số phương án, IFL có thể bao gồm một loại stanat, trong khi theo các phương án khác, IFL có thể bao gồm hai hoặc nhiều loại stanat khác nhau. Theo một phương án, stanat có công thức SrSnO_3 . Theo phương án khác, stanat có thể có công thức BaSnO_3 . Theo phương án khác nữa, stanat có thể có công thức CaSnO_3 .

Để minh họa và không bao hàm bất kỳ giới hạn nào, stanat có cấu trúc tinh thể perovskit và tạo mầm mạnh mẽ cho quá trình chuyển hóa phát triển vật liệu perovskit (ví dụ, MAPbI_3 , FAPbI_3). Stanat thường cũng đáp ứng các yêu cầu IFL khác, như tính sắt điện, tính di động đủ của hạt mang điện tích, độ trong suốt quang học, mức năng lượng tương hợp và hằng số điện môi cao.

Theo các phương án khác, IFL có thể bao gồm plumbat. Plumbat theo một số phương án có thể có công thức tổng quát là $\text{M}'\text{PbO}_3$, trong đó M' là cation 2+ bất kỳ. Theo một số phương án, M' có thể là dạng cation của Be, Mg, Ca, Sr, Ba, Ni, Zn, Cd, Hg, Cu, Pd, Pt, Sn hoặc Pb. Theo một số phương án, IFL có thể bao gồm một loại plumbat, trong khi theo các phương án khác, IFL có thể bao gồm hai hoặc nhiều loại plumbat khác nhau. Theo một phương án, plumbat có công thức SrPbO_3 . Theo phương án khác, plumbat có thể có công thức BaPbO_3 . Theo phương án khác nữa,

plumbat có thể có công thức CaPbO_3 . Theo phương án khác nữa, plumbat có thể có công thức $\text{Pb}^{\text{II}}\text{Pb}^{\text{IV}}\text{O}_3$.

Để giải thích và không bao hàm bất kỳ giới hạn nào, các plumbat có cấu trúc tinh thể perovskit và tạo mầm mạnh mẽ cho quá trình chuyển hóa phát triển vật liệu perovskit (ví dụ, MAPbI_3 , FAPbI_3). Plumbat thường cũng đáp ứng các yêu cầu IFL khác, như tính sắt điện, tính di động đủ của hạt mang điện tích, độ trong suốt quang học, mức năng lượng tương hợp và hằng số điện môi cao.

Ngoài ra, theo các phương án khác, IFL có thể bao gồm dạng kết hợp của ziriconat và titanat theo công thức tổng quát $\text{M}'[\text{Zr}_x\text{Ti}_{1-x}]\text{O}_3$, trong đó x lớn hơn 0 nhưng nhỏ hơn 1, và M' gồm có cation 2+ bất kỳ. Theo một số phương án, M' có thể là dạng cation của Be, Mg, Ca, Sr, Ba, Ni, Zn, Cd, Hg, Cu, Pd, Pt, Sn hoặc Pb. Theo một số phương án, IFL có thể bao gồm một loại ziriconat, trong khi theo các phương án khác, IFL có thể bao gồm hai hoặc nhiều loại ziriconat khác nhau. Theo một phương án, dạng kết hợp ziriconat/titanat có công thức $\text{Pb}[\text{Zr}_x\text{Ti}_{1-x}]\text{O}_3$. Theo phương án khác, dạng kết hợp ziriconat/titanat có công thức $\text{Pb}[\text{Zr}_{0,52}\text{Ti}_{0,48}]\text{O}_3$.

Để minh họa và không bao hàm bất kỳ giới hạn nào, dạng kết hợp ziriconat/titanat có cấu trúc tinh thể perovskit và tạo mầm mạnh mẽ cho quá trình chuyển hóa phát triển vật liệu perovskit (ví dụ, MAPbI_3 , FAPbI_3). Dạng kết hợp ziriconat/titanat thường cũng đáp ứng các yêu cầu IFL khác, như tính sắt điện, tính di động đủ của hạt mang điện tích, độ trong suốt quang học, mức năng lượng tương hợp và hằng số điện môi cao.

Theo các phương án khác, IFL có thể bao gồm niobat. Niobat theo một số phương án có thể có công thức tổng quát là $\text{M}'\text{NbO}_3$, trong đó: M' là cation 1+ bất kỳ. Theo một số phương án, M' có thể là dạng cation của Li, Na, K, Rb, Cs, Cu, Ag, Au, Tl, amoni hoặc H. Theo một số phương án, IFL có thể bao gồm một loại niobat, trong khi theo các phương án khác, IFL có thể bao gồm hai hoặc nhiều loại niobat khác nhau. Theo một phương án, niobat có công thức LiNbO_3 . Theo phương án khác, niobat có thể có công thức NaNbO_3 . Theo phương án khác nữa, niobat có thể có công thức AgNbO_3 .

Để minh họa và không bao hàm bất kỳ giới hạn nào, niobat thường đáp ứng các yêu cầu IFL, như tính áp điện, tính phân cực quang học phi tuyến, tính quang đàn hồi, tính sắt điện, hiệu ứng Pockels, tính di động đủ của hạt mang điện tích, độ trong suốt quang học, mức năng lượng tương hợp và hằng số điện môi cao.

Theo một phương án, thiết bị chứa vật liệu perovskit có thể được chế tạo bằng cách đúc PbI_2 lên lớp nền ITO được phủ SrTiO_3 . PbI_2 có thể được chuyển hóa thành MAPbI_3 bằng quy trình nhúng. Quy trình này được mô tả chi tiết hơn dưới đây. Sự chuyển hóa PbI_2 thành MAPbI_3 thu được này hoàn thiện hơn (theo quan sát bằng kỹ thuật đo quang phổ) so với việc tạo ra lớp nền mà không có SrTiO_3 .

Vật liệu phân cách bất kỳ nêu trong bản mô tả này có thể còn chứa thành phần pha lẫn. Để làm thay đổi đặc tính (ví dụ, điện, quang, cơ) của vật liệu phân cách, vật liệu có hệ số tỷ lệ hoặc không tỷ lệ có thể được pha lẫn với một hoặc nhiều nguyên tố (ví dụ, Na, Y, Mg, N, P) với lượng nằm trong khoảng từ 1 ppb đến 50% mol. Một số ví dụ về vật liệu phân cách bao gồm: NiO , TiO_2 , SrTiO_3 , Al_2O_3 , ZrO_2 , WO_3 , V_2O_5 , MO_3 , ZnO , graphen và muội than. Ví dụ về chất pha lẫn có thể dùng cho vật liệu phân cách này bao gồm: Li, Na, Be, Mg, Ca, Sr, Ba, Sc, Y, Nb, Ti, Fe, Co, Ni, Cu, Ga, Sn, In, B, N, P, C, S, As, halogenua, halogenua giả (ví dụ, xyanua, xyanat, isoxyanat, fulminat, thioxyanat, isothioxyanat, azit, tetracacbonylcobaltat, carbamoyldixyanometanit, dixyanonitrosometanit, dixyanamit và trixyanometanit) và Al ở trạng thái oxy hóa bất kỳ của nó. Việc đề cập đến vật liệu phân cách pha lẫn trong bản mô tả này không nhằm giới hạn tỷ lệ của các nguyên tố thành phần trong hợp chất vật liệu phân cách.

Theo một số phương án, các IFL được làm từ các vật liệu khác nhau có thể được bố trí liền kề nhau để tạo ra IFL hợp thể. Kết cấu này có thể bao gồm hai IFL khác nhau, ba IFL khác nhau, hoặc thậm chí nhiều IFL khác nhau hơn. IFL nhiều lớp hoặc IFL hợp thể tạo thành có thể được sử dụng thay cho IFL một vật liệu. Ví dụ, IFL hợp thể có thể được sử dụng làm IFL bất kỳ được thể hiện trong ví dụ trên Fig.2, như IFL 3903, IFL 3905, IFL 3907, IFL 3909 hoặc IFL 3911. Mặc dù IFL hợp thể khác với IFL một vật liệu, nhưng việc lắp ráp tế bào PV chứa vật liệu perovskit có IFL nhiều

lớp về cơ bản không khác so với việc lắp ráp tế bào PV chứa vật liệu perovskit chỉ có IFL một vật liệu.

Thông thường, IFL hợp thể có thể được tạo ra bằng cách sử dụng vật liệu bất kỳ trong số các vật liệu được mô tả trong bản mô tả này là thích hợp đối với IFL. Theo một phương án, IFL bao gồm lớp Al_2O_3 và lớp ZnO hoặc M:ZnO (ZnO pha lẫn, ví dụ, Be:ZnO, Mg:ZnO, Ca:ZnO, Sr:ZnO, Ba:ZnO, Sc:ZnO, Y:ZnO, Nb:ZnO). Theo một phương án, IFL bao gồm lớp ZrO_2 và lớp ZnO hoặc M:ZnO. Theo các phương án nhất định, IFL bao gồm nhiều lớp. Theo một số phương án, IFL nhiều lớp thường có lớp dẫn điện, lớp điện môi và lớp bán dẫn. Theo các phương án cụ thể, các lớp có thể lặp lại, ví dụ, lớp dẫn điện, lớp điện môi, lớp bán dẫn, lớp điện môi và lớp bán dẫn. Ví dụ về IFL nhiều lớp bao gồm IFL có lớp ITO, lớp Al_2O_3 , lớp ZnO và lớp Al_2O_3 thứ hai; IFL có lớp ITO, lớp Al_2O_3 , lớp ZnO, lớp Al_2O_3 thứ hai và lớp ZnO thứ hai; IFL có lớp ITO, lớp Al_2O_3 , lớp ZnO, lớp Al_2O_3 thứ hai, lớp ZnO thứ hai và lớp Al_2O_3 thứ ba; và IFL có số lượng lớp cần thiết để đạt được đặc tính hiệu quả mong muốn. Như đã mô tả ở trên, việc đề cập đến các hệ số tỷ lệ nhất định không nhằm giới hạn tỷ lệ của các nguyên tố thành phần trong lớp IFL theo các phương án khác nhau.

Việc bố trí hai hoặc nhiều IFL liên kề dưới dạng IFL hợp thể có thể hoạt động tốt hơn một IFL đơn lẻ trong tế bào PV chứa vật liệu perovskit, trong đó các thuộc tính từ mỗi vật liệu IFL có thể được tận dụng trong một IFL đơn lẻ. Ví dụ, ở kết cấu có lớp ITO, lớp Al_2O_3 và lớp ZnO, trong đó ITO là điện cực dẫn điện, Al_2O_3 là vật liệu điện môi và ZnO là vật liệu bán dẫn loại n, thì ZnO hoạt động như vật liệu nhận điện tử với các đặc tính vận chuyển điện tử hoạt động tốt (ví dụ, tính di động). Ngoài ra, Al_2O_3 là vật liệu bền về mặt vật lý, bám dính tốt vào ITO, làm đồng nhất bề mặt bằng cách che khuyết bề mặt (ví dụ, bẫy điện tích), và cải thiện các đặc tính điốt của thiết bị thông qua việc làm ngưng dòng điện tối.

Ngoài ra, một số tế bào PV chứa vật liệu perovskit có thể bao gồm tế bào PV được gọi là "nối tiếp" mà có nhiều hơn một lớp quang hoạt perovskit. Ví dụ, cả hai vật liệu quang hoạt 3908 và 3906 trên Fig.2 đều có thể là vật liệu perovskit. Trong các tế bào PV nối tiếp như vậy lớp phân cách giữa hai lớp quang hoạt, như IFL 3907

(tức là, lớp tái kết hợp) theo Fig.2 có thể là IFL nhiều lớp hoặc hợp thể. Theo một số phương án, lớp được kẹp giữa hai lớp quang hoạt của thiết bị PV nối tiếp có thể bao gồm lớp điện cực.

Thiết bị PV nối tiếp có thể bao gồm các lớp sau đây, được liệt kê theo thứ tự từ trên xuống dưới hoặc từ dưới lên trên: lớp nền thứ nhất, điện cực thứ nhất, lớp phân cách thứ nhất, vật liệu perovskit thứ nhất, lớp phân cách thứ hai, điện cực thứ hai, lớp phân cách thứ ba, vật liệu perovskit thứ hai, lớp phân cách thứ tư và điện cực thứ ba. Theo một số phương án, các lớp phân cách thứ nhất và thứ ba có thể là các lớp phân cách vận chuyển lỗ trống và các lớp phân cách thứ hai và thứ tư có thể là các lớp phân cách vận chuyển điện tử. Theo các phương án khác, các lớp phân cách thứ nhất và thứ ba có thể là các lớp phân cách vận chuyển điện tử và các lớp phân cách thứ hai và thứ tư có thể là các lớp phân cách vận chuyển lỗ trống. Theo các phương án khác nữa, các lớp phân cách thứ nhất và thứ tư có thể là các lớp phân cách vận chuyển lỗ trống và các lớp phân cách thứ hai và thứ ba có thể là các lớp phân cách vận chuyển điện tử. Theo các phương án khác, các lớp phân cách thứ nhất và thứ tư có thể là các lớp phân cách vận chuyển điện tử và các lớp phân cách thứ hai và thứ ba có thể là các lớp phân cách vận chuyển lỗ trống. Ở thiết bị PV nối tiếp, các vật liệu perovskit thứ nhất và thứ hai có thể có khoảng cách dải khác nhau. Theo một số phương án, vật liệu perovskit thứ nhất có thể là formamidini chì bromua (FAPbBr_3) và vật liệu perovskit thứ hai có thể là formamidini chì iodua (FAPbI_3). Theo các phương án khác, vật liệu perovskit thứ nhất có thể là metylamoni chì bromua (MAPbBr_3) và vật liệu perovskit thứ hai có thể là formamidini chì iodua (FAPbI_3). Theo các phương án khác, vật liệu perovskit thứ nhất có thể là metylamoni chì bromua (MAPbBr_3) và vật liệu perovskit thứ hai có thể là metylamoni chì iodua (MAPbI_3).

Vật liệu perovskit

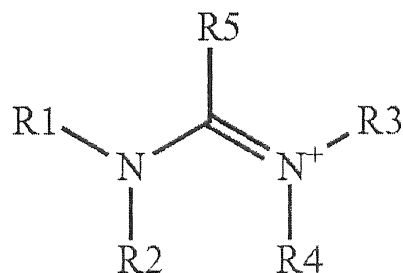
Vật liệu perovskit có thể được kết hợp vào một hoặc nhiều khía cạnh của PV hoặc thiết bị khác. Vật liệu perovskit theo một số phương án có thể có công thức tổng quát là $\text{C}_w\text{M}_y\text{X}_z$, trong đó: C bao gồm một hoặc nhiều cation (ví dụ, amin, amoni, phosphoni, kim loại nhóm 1, kim loại nhóm 2 và/hoặc các cation khác hoặc các hợp chất giống cation); M bao gồm một hoặc nhiều kim loại (các ví dụ bao gồm Be, Mg,

Ca, Sr, Ba, Fe, Cd, Co, Ni, Cu, Ag, Au, Hg, Sn, Ge, Ga, Pb, In, Tl, Sb, Bi, Ti, Zn, Cd, Hg và Zr); X bao gồm một hoặc nhiều anion; và w, y và z là các số thực nằm trong khoảng từ 1 đến 20. Theo một số phương án, C có thể bao gồm một hoặc nhiều cation hữu cơ. Theo một số phương án, mỗi cation hữu cơ C có thể là lớn hơn so với mỗi kim loại M, và mỗi anion X có thể có khả năng gắn kết với cả cation C và kim loại M. Theo các phương án cụ thể, vật liệu perovskit có thể có công thức là CMX_3 .

Theo các phương án nhất định, C có thể bao gồm amoni, cation hữu cơ có công thức tổng quát là $[NR_4]^+$ trong đó các nhóm R có thể là các nhóm giống nhau hoặc khác nhau. Nhóm R thích hợp bao gồm, nhưng không giới hạn ở: hydro, nhóm metyl, etyl, propyl, butyl, pentyl hoặc đồng phân của chúng; alkan, alken hoặc alkyn C_xH_y bất kỳ, trong đó $x = 1-20$, $y = 1-42$, mạch vòng, mạch nhánh hoặc mạch thẳng; alkyl halogenua, $C_xH_yX_z$, $x = 1-20$, $y = 0-42$, $z = 1-42$, $X = F, Cl, Br$ hoặc I ; nhóm thơm bất kỳ (ví dụ, phenyl, alkylphenyl, alkoxyphenyl, pyridin, naphtalen); phức chất dạng vòng trong đó ít nhất một nitơ được chứa trong vòng (ví dụ, pyridin, pyrol, pyrrolidin, piperidin, tetrahydroquinolin); nhóm chứa lưu huỳnh bất kỳ (ví dụ, sulfoxit, thiol, alkyl sulfua); nhóm chứa nitơ bất kỳ (nitroxit, amin); nhóm chứa phospho bất kỳ (phosphat); nhóm chứa bo bất kỳ (ví dụ, axit boronic); axit hữu cơ bất kỳ (ví dụ, axit axetic, axit propanoic); và dẫn xuất este hoặc amit của chúng; axit amin bất kỳ (ví dụ, glyxin, xystein, prolin, axit glutamic, arginin, serin, histidin, axit 5-amonivaleric) bao gồm dẫn xuất alpha, beta, gamma và dẫn xuất lớn hơn; nhóm chứa silic bất kỳ (ví dụ, siloxan); và alkoxy hoặc nhóm bất kỳ, $-OC_xH_y$, trong đó $x = 0-20$, $y = 1-42$.

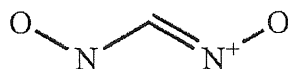
Theo các phương án nhất định, C có thể bao gồm formamidini, cation hữu cơ có công thức tổng quát là $[R_2NCRNR_2]^+$ trong đó các nhóm R có thể là các nhóm giống nhau hoặc khác nhau. Nhóm R thích hợp bao gồm, nhưng không giới hạn ở: hydro, nhóm metyl, etyl, propyl, butyl, pentyl hoặc đồng phân của chúng; alkan, alken hoặc alkyn C_xH_y bất kỳ, trong đó $x = 1-20$, $y = 1-42$, mạch vòng, mạch nhánh hoặc mạch thẳng; alkyl halogenua, $C_xH_yX_z$, $x = 1-20$, $y = 0-42$, $z = 1-42$, $X = F, Cl, Br$ hoặc I ; nhóm thơm bất kỳ (ví dụ, phenyl, alkylphenyl, alkoxyphenyl, pyridin, naphtalen); phức chất dạng vòng trong đó ít nhất một nitơ được chứa trong vòng (ví dụ, imidazol, benzimidazol, pyrimidin, (azolidinylidenmetyl)pyrrolidin, triazol); nhóm chứa lưu huỳnh bất kỳ (ví dụ, sulfoxit, thiol, alkyl sulfua); nhóm chứa nitơ bất

kỳ (nitroxit, amin); nhóm chứa phospho bất kỳ (phosphat); nhóm chứa bo bất kỳ (ví dụ, axit boronic); axit hữu cơ bất kỳ (axit axetic, axit propanoic) và dẫn xuất este hoặc amit của chúng; axit amin bất kỳ (ví dụ, glyxin, xystein, prolin, axit glutamic, arginin, serin, histidin, axit 5-amonivaleric) bao gồm dẫn xuất alpha, beta, gamma và dẫn xuất lớn hơn; nhóm chứa silic bất kỳ (ví dụ, siloxan); và alkoxy hoặc nhóm bất kỳ, -OCxHy, trong đó $x = 0-20$, $y = 1-42$.

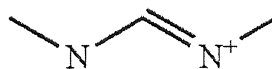


Công thức 1

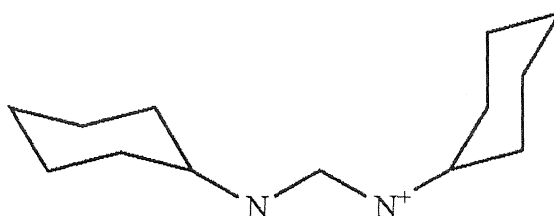
Công thức 1 minh họa cấu trúc của cation formamidini có công thức tổng quát là $[R_2NCRNR_2]^+$ như được mô tả ở trên. Công thức 2 minh họa ví dụ về cấu trúc của một số cation formamidini mà có thể đóng vai trò làm cation “C” trong vật liệu perovskit.



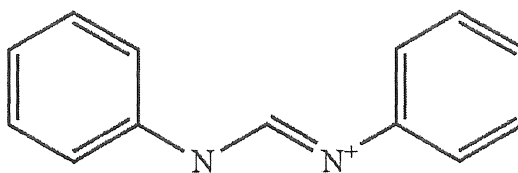
Hydroxy-[(hydroxyamino)metylen]amoni



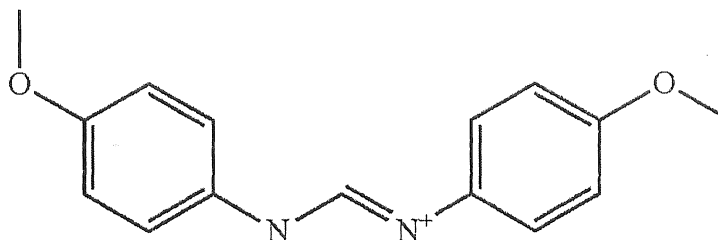
Metyl(metylaminometylen)amoni



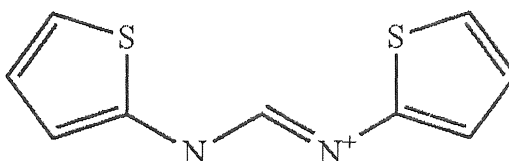
Xyclohexyl-[(xyclohexylamino)metylen]amoni



Anilinometylen(phenyl)amoni



(Metoxyanilino)metylen-(4-metoxyphenyl)amoni

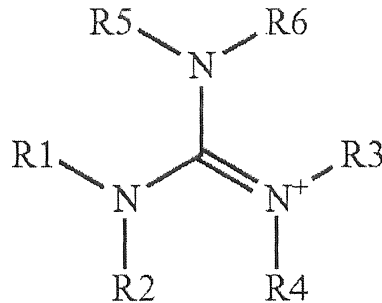


Thienyl-[(2-thienylamino)metylen]amoni

Công thức 2

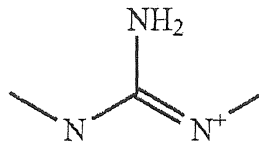
Theo các phương án nhất định, C có thể bao gồm guanidini, cation hữu cơ có công thức tổng quát là $[(R_2N)_2C=NR_2]^+$ trong đó các nhóm R có thể là các nhóm giống nhau hoặc khác nhau. Nhóm R thích hợp bao gồm, nhưng không giới hạn ở: hydro, nhóm metyl, etyl, propyl, butyl, pentyl hoặc đồng phân của chúng; alkan, alken hoặc alkyn C_xH_y bất kỳ, trong đó $x = 1-20$, $y = 1-42$, mạch vòng, mạch nhánh hoặc mạch thẳng; alkyl halogenua, $C_xH_yX_z$, $x = 1-20$, $y = 0-42$, $z = 1-42$, $X = F, Cl, Br$ hoặc I ; nhóm thơm bất kỳ (ví dụ, phenyl, alkylphenyl, alkoxyphenyl, pyridin, naphtalen); phức chất dạng vòng trong đó ít nhất một nitơ được chứa trong vòng (ví dụ, octahydropyrimido[1,2-a]pyrimidin, pyrimido[1,2-a]pyrimidin, hexahydroimidazo[1,2-a]imidazol, hexahydropyrimidin-2-imin); nhóm chứa lưu huỳnh bất kỳ (ví dụ, sulfoxit, thiol, alkyl sulfua); nhóm chứa nitơ bất kỳ (nitroxit, amin); nhóm chứa phospho bất kỳ (phosphat); nhóm chứa bo bất kỳ (ví dụ, axit boronic); axit hữu cơ bất kỳ (axit axetic, axit propanoic) và dẫn xuất este hoặc amit của chúng; axit amin bất kỳ (ví dụ, glyxin, xystein, prolin, axit glutamic, arginin,

serin, histidin, axit 5-amonivaleric) bao gồm dẫn xuất alpha, beta, gamma và dẫn xuất lớn hơn; nhóm chứa silic bất kỳ (ví dụ, siloxan); và alkoxy hoặc nhóm bất kỳ, -OCxHy, trong đó x = 0-20, y = 1-42.

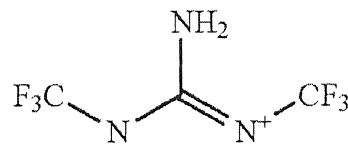


Công thức 3

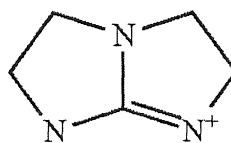
Công thức 3 minh họa cấu trúc của cation guanidini có công thức tổng quát là $[(R_2N)_2C=NR_2]^+$ như được mô tả ở trên. Công thức 4 minh họa ví dụ về cấu trúc của một số cation guanidini mà có thể đóng vai trò làm cation “C” trong vật liệu perovskit.



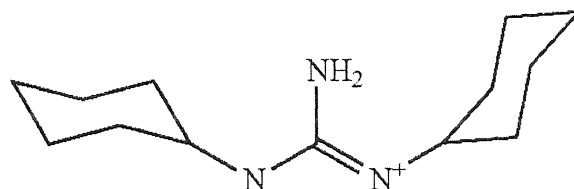
[Amino(methylamino)metylen]-metyl-amoni



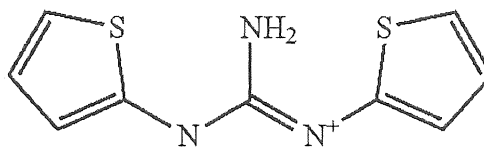
[Amino(trifluoromethylamino)metylen]-(trifluorometyl)amoni



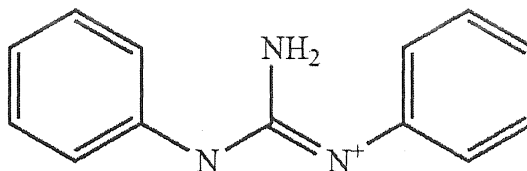
2,3,5,6-Tetrahydro-1H-imidazo[1,2-a]imidazol-7-ium



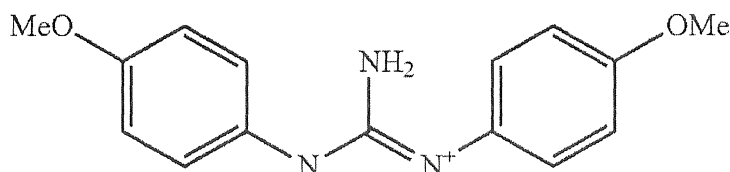
[Amino-(cyclohexylamino)metylen]-cyclohexyl-amoni



[Amino-(2-thienylamino)metylen]-2-thienyl)amoni



[Amino(anilino)metylen]-phenyl-amoni

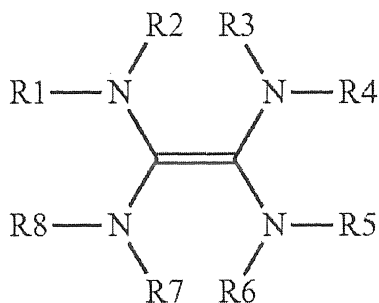


[Amino-(4-metoxyanilino)metylen]-4-metoxyphenyl)amoni

Công thức 4

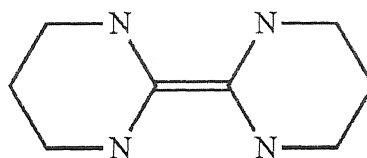
Theo các phương án nhất định, C có thể bao gồm cation eten tetramin, cation hữu cơ có công thức tổng quát là $[(R_2N)_2C=C(NR_2)_2]^+$ trong đó các nhóm R có thể là các nhóm giống nhau hoặc khác nhau. Nhóm R thích hợp bao gồm, nhưng không giới hạn ở: hydro, nhóm metyl, etyl, propyl, butyl, pentyl hoặc đồng phân của chúng; alkan, alken hoặc alkyn C_xH_y bất kỳ, trong đó $x = 1-20$, $y = 1-42$, mạch vòng, mạch nhánh hoặc mạch thẳng; alkyl halogenua, $C_xH_yX_z$, $x = 1-20$, $y = 0-42$, $z = 1-42$, $X = F, Cl, Br$ hoặc I ; nhóm thơm bất kỳ (ví dụ, phenyl, alkylphenyl, alkoxyphenyl, pyridin, naphtalen); phức chất dạng vòng trong đó ít nhất một nitơ được chứa trong vòng (ví dụ, 2-hexahydropyrimidin-2-ylidenhexahydropyrimidin, octahydropyrazino[2,3-b]pyrazin, pyrazino[2,3-b]pyrazin, quinoxalino[2,3-b]quinoxalin); nhóm chứa lưu huỳnh bất kỳ (ví dụ, sulfoxit, thiol, alkyl sulfua); nhóm chứa nitơ bất kỳ (nitroxit, amin); nhóm chứa phospho bất kỳ (phosphat); nhóm chứa bo bất kỳ (ví dụ, axit boronic); axit hữu cơ bất kỳ (axit axetic, axit propanoic) và dẫn xuất este hoặc amit của chúng; axit amin bất kỳ (ví dụ, glyxin, xystein, prolin, axit glutamic, arginin, serin, histidin, axit 5-amonivaleric) bao gồm dẫn xuất alpha, beta,

gamma và dẫn xuất lớn hơn; nhóm chứa silic bất kỳ (ví dụ, siloxan); và alkoxy hoặc nhóm bất kỳ, $-OC_xHy$, trong đó $x = 0-20$, $y = 1-42$.

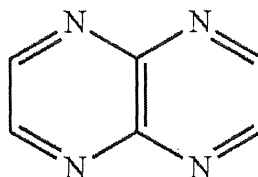


Công thức 5

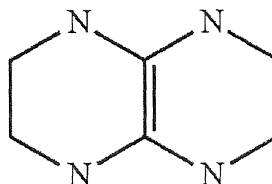
Công thức 5 minh họa cấu trúc của cation eten tetramin có công thức tổng quát là $[(R_2N)_2C=C(NR_2)_2]^+$ như được mô tả ở trên. Công thức 6 minh họa ví dụ về cấu trúc của một số ion eten tetramin mà có thể đóng vai trò làm cation “C” trong vật liệu perovskit.



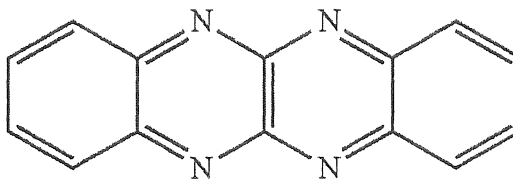
2-hexahydropyrimidin-2-ylidenehexahydropyrimidin



pyrazino[2,3-b]pyrazin



1,2,3,4,5,6,7,8-octahydropyrazino[2,3-b]pyrazin



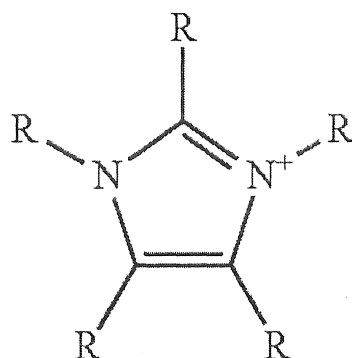
Quinoxalino[2,3-b]quinoxalin

Công thức 6

Theo các phương án nhất định, C có thể bao gồm cation imidazoli, cation hữu cơ dạng vòng thơm có công thức tổng quát là $[CRNRCRNRCR]^+$ trong đó các nhóm R có thể là các nhóm giống nhau hoặc khác nhau. Nhóm R thích hợp bao gồm, nhưng không giới hạn ở: hydro, nhóm metyl, etyl, propyl, butyl, pentyl hoặc đồng phân của chúng; alkan, alken hoặc alkyn C_xH_y bất kỳ, trong đó $x = 1-20$, $y = 1-42$, mạch vòng, mạch nhánh hoặc mạch thẳng; alkyl halogenua, $C_xH_yX_z$, $x = 1-20$, $y = 0-42$, $z = 1-42$, $X = F, Cl, Br$ hoặc I ; nhóm thơm bất kỳ (ví dụ, phenyl, alkylphenyl, alkoxyphenyl, pyridin, naphthalen); phức chất dạng vòng trong đó ít nhất một nitơ được chứa trong vòng (ví dụ, 2-hexahydropyrimidin-2-ylidenhexahydropyrimidin, octahydropyrazino[2,3-b]pyrazin, pyrazino[2,3-b]pyrazin, quinoxalino[2,3-b]quinoxalin); nhóm chứa lưu huỳnh bất kỳ (ví dụ, sulfoxit, thiol, alkyl sulfua); nhóm chứa nitơ bất kỳ (nitroxit, amin); nhóm chứa phospho bất kỳ (phosphat); nhóm chứa bo bất kỳ (ví dụ, axit boronic); axit hữu cơ bất kỳ (axit axetic, axit propanoic) và dẫn xuất este hoặc amit của chúng; axit amin bất kỳ (ví dụ, glyxin, xystein, prolin, axit glutamic, arginin, serin, histidin, axit 5-amonivaleric) bao gồm dẫn xuất alpha, beta, gamma và dẫn xuất lớn hơn; nhóm chứa silic bất kỳ (ví dụ, siloxan); và alkoxy hoặc nhóm bất kỳ, $-OC_xH_y$, trong đó $x = 0-20$, $y = 1-42$.

Theo các phương án cụ thể, C có thể bao gồm cation pyridium, cation hữu cơ dạng vòng, thơm có công thức tổng quát $[CRCRCRCRCRNR]^+$ trong đó các nhóm R có thể là các nhóm giống nhau hoặc khác nhau. Nhóm R thích hợp bao gồm, nhưng không giới hạn ở: hydro, nhóm metyl, etyl, propyl, butyl, pentyl hoặc đồng phân của chúng; alkan, alken hoặc alkyn C_xH_y bất kỳ, trong đó $x = 1-20$, $y = 1-42$, mạch vòng, mạch nhánh hoặc mạch thẳng; alkyl halogenua, $C_xH_yX_z$, $x = 1-20$, $y = 0-42$, $z = 1-42$, $X = F, Cl, Br$ hoặc I ; nhóm thơm bất kỳ (ví dụ, phenyl, alkylphenyl, alkoxyphenyl, pyridin, naphthalen); phức chất dạng vòng trong đó ít nhất một nitơ được chứa trong

vòng (ví dụ, 2-hexahydropyrimidin-2-ylidenhexahydropyrimidin, octahydropyrazino[2,3-b]pyrazin, pyrazino[2,3-b]pyrazin, quinoxalino[2,3-b]quinoxalin); nhóm chứa lưu huỳnh bất kỳ (ví dụ, sulfoxit, thiol, alkyl sulfua); nhóm chứa nitơ bất kỳ (nitroxit, amin); nhóm chứa phospho bất kỳ (phosphat); nhóm chứa bo bất kỳ (ví dụ, axit boronic); axit hữu cơ bất kỳ (axit axetic, axit propanoic) và dẫn xuất este hoặc amit của chúng; axit amin bất kỳ (ví dụ, glyxin, xystein, prolin, axit glutamic, arginin, serin, histidin, axit 5-amonivaleric) bao gồm dẫn xuất alpha, beta, gamma và dẫn xuất lớn hơn; nhóm chứa silic bất kỳ (ví dụ, siloxan); và alkoxy hoặc nhóm bất kỳ, $-OC_xHy$, trong đó $x = 0-20$, $y = 1-42$.



Công thức 7

Theo một số phương án, X có thể bao gồm một hoặc nhiều halogenua. Theo các phương án nhất định, X có thể thay vào đó hoặc ngoài ra bao gồm anion nhóm 16. Theo các phương án nhất định, anion nhóm 16 có thể là oxit, sulfua, selenua hoặc telurua. Theo các phương án nhất định, X có thể thay vào đó hoặc ngoài ra bao gồm một hoặc nhiều halogenua giả (ví dụ, xyanua, xyanat, isoxyanat, fulminat, thioxyanat, isothioxyanat, azit, tetracacbonylcobaltat, carbamoyldixyanometanit, dixyanonitrosometanit, dixyanamit và trixyanometanit).

Theo một phương án, vật liệu perovskit có thể có công thức thực nghiệm là CMX_3 trong đó: C bao gồm một hoặc nhiều cation trong số các cation nêu trên, kim loại nhóm 1, kim loại nhóm 2 và/hoặc các cation khác hoặc các hợp chất giống cation; M bao gồm một hoặc nhiều kim loại (các ví dụ bao gồm Be, Mg, Ca, Sr, Ba, Fe, Cd, Co, Ni, Cu, Ag, Au, Hg, Sn, Ge, Ga, Pb, In, Tl, Sb, Bi, Ti, Zn, Cd, Hg và Zr); và X bao gồm một hoặc nhiều anion trong số các anion nêu trên.

Theo phương án khác, vật liệu perovskit có thể có công thức thực nghiệm là $C'M_2X_6$ trong đó: C' là cation có điện tích $2+$ bao gồm một hoặc nhiều cation trong số các cation nêu trên, diamoni butan, kim loại nhóm 1, kim loại nhóm 2 và/hoặc các cation khác hoặc các hợp chất giống cation; M bao gồm một hoặc nhiều kim loại (các ví dụ bao gồm Be, Mg, Ca, Sr, Ba, Fe, Cd, Co, Ni, Cu, Ag, Au, Hg, Sn, Ge, Ga, Pb, In, Tl, Sb, Bi, Ti, Zn, Cd, Hg và Zr); và X bao gồm một hoặc nhiều anion trong số các anion nêu trên.

Theo phương án khác, vật liệu perovskit có thể có công thức thực nghiệm là $C'MX_4$ trong đó: C' là cation có điện tích $2+$ bao gồm một hoặc nhiều cation trong số các cation nêu trên, diamoni butan, kim loại nhóm 1, kim loại nhóm 2 và/hoặc các cation khác hoặc các hợp chất giống cation; M bao gồm một hoặc nhiều kim loại (các ví dụ bao gồm Be, Mg, Ca, Sr, Ba, Fe, Cd, Co, Ni, Cu, Ag, Au, Hg, Sn, Ge, Ga, Pb, In, Tl, Sb, Bi, Ti, Zn, Cd, Hg và Zr); và X bao gồm một hoặc nhiều anion trong số các anion nêu trên. Theo phương án này, vật liệu perovskit có thể có cấu trúc 2D.

Theo một phương án, vật liệu perovskit có thể có công thức thực nghiệm là $C_3M_2X_9$ trong đó: C bao gồm một hoặc nhiều cation trong số các cation nêu trên, kim loại nhóm 1, kim loại nhóm 2 và/hoặc các cation khác hoặc các hợp chất giống cation; M bao gồm một hoặc nhiều kim loại (các ví dụ bao gồm Be, Mg, Ca, Sr, Ba, Fe, Cd, Co, Ni, Cu, Ag, Au, Hg, Sn, Ge, Ga, Pb, In, Tl, Sb, Bi, Ti, Zn, Cd, Hg và Zr); và X bao gồm một hoặc nhiều anion trong số các anion nêu trên.

Theo một phương án, vật liệu perovskit có thể có công thức thực nghiệm là CM_2X_7 trong đó: C bao gồm một hoặc nhiều cation trong số các cation nêu trên, kim loại nhóm 1, kim loại nhóm 2 và/hoặc các cation khác hoặc các hợp chất giống cation; M bao gồm một hoặc nhiều kim loại (các ví dụ bao gồm Be, Mg, Ca, Sr, Ba, Fe, Cd, Co, Ni, Cu, Ag, Au, Hg, Sn, Ge, Ga, Pb, In, Tl, Sb, Bi, Ti, Zn, Cd, Hg và Zr); và X bao gồm một hoặc nhiều anion trong số các anion nêu trên.

Theo một phương án, vật liệu perovskit có thể có công thức thực nghiệm là C_2MX_4 trong đó: C bao gồm một hoặc nhiều cation trong số các cation nêu trên, kim loại nhóm 1, kim loại nhóm 2 và/hoặc các cation khác hoặc các hợp chất giống cation; M bao gồm một hoặc nhiều kim loại (các ví dụ bao gồm Be, Mg, Ca, Sr, Ba, Fe, Cd,

Co, Ni, Cu, Ag, Au, Hg, Sn, Ge, Ga, Pb, In, Tl, Sb, Bi, Ti, Zn, Cd, Hg và Zr); và X bao gồm một hoặc nhiều anion trong số các anion nêu trên.

Vật liệu perovskit có thể còn có công thức ion hỗn hợp trong đó C, M hoặc X bao gồm hai hoặc nhiều loại, ví dụ, $\text{Cs}_{0,1}\text{FA}_{0,9}\text{Pb}(\text{I}_{0,9}\text{Cl}_{0,1})_3$; $\text{Rb}_{0,1}\text{FA}_{0,9}\text{Pb}(\text{I}_{0,9}\text{Cl}_{0,1})_3$; $\text{Cs}_{0,1}\text{FA}_{0,9}\text{PbI}_3$; $\text{FAPb}_{0,5}\text{Sn}_{0,5}\text{I}_3$; $\text{FA}_{0,83}\text{Cs}_{0,17}\text{Pb}(\text{I}_{0,6}\text{Br}_{0,4})_3$; $\text{FA}_{0,83}\text{Cs}_{0,12}\text{Rb}_{0,05}\text{Pb}(\text{I}_{0,6}\text{Br}_{0,4})_3$ và $\text{FA}_{0,85}\text{MA}_{0,15}\text{Pb}(\text{I}_{0,85}\text{Br}_{0,15})_3$.

Thiết kế hợp thể của thiết bị chứa vật liệu perovskit

Theo một số phương án, sáng chế có thể đề xuất thiết kế hợp thể của PV và các thiết bị tương tự (ví dụ, ắc quy, ắc quy PV lai, FET, LED, thiết bị quang học phi tuyến (NLO), cấu trúc dẫn sóng, v.v.) chứa một hoặc nhiều vật liệu perovskit. Ví dụ, một hoặc nhiều vật liệu perovskit có thể đóng vai trò là một trong hai hoặc cả hai vật liệu hoạt động thứ nhất và thứ hai theo một số phương án (ví dụ, các vật liệu hoạt động 3906a và 3908a trên Fig.3). Tổng quát hơn, một số phương án của sáng chế đề xuất PV hoặc các thiết bị khác có lớp hoạt động chứa một hoặc nhiều vật liệu perovskit. Theo các phương án này, vật liệu perovskit (tức là, vật liệu bao gồm một hoặc nhiều vật liệu perovskit bất kỳ) có thể được sử dụng trong các lớp hoạt động thuộc các kết cấu khác nhau. Ngoài ra, vật liệu perovskit có thể thực hiện (các) chức năng của một hoặc nhiều thành phần bất kỳ của lớp hoạt động (ví dụ, vật liệu vận chuyển điện tích, vật liệu mao quản trung bình, vật liệu quang hoạt và/hoặc vật liệu phân cách, mỗi thành phần này được mô tả chi tiết hơn dưới đây). Theo một số phương án, cùng một vật liệu perovskit có thể thực hiện nhiều chức năng như vậy, mặc dù theo các phương án khác, nhiều vật liệu perovskit có thể được bao gồm trong thiết bị, mỗi vật liệu perovskit này thực hiện một hoặc nhiều chức năng như vậy. Theo các phương án nhất định, bất kể vật liệu perovskit có thể thực hiện vai trò gì, thì nó vẫn có thể được tạo ra và/hoặc có mặt trong thiết bị ở các trạng thái khác nhau. Ví dụ, về cơ bản nó có thể ở trạng thái rắn theo một số phương án. Dung dịch hoặc huyền phù có thể được phủ hoặc theo cách khác được lắng đọng trong thiết bị (ví dụ, lên thành phần khác của thiết bị như lớp mao quản trung bình, lớp phân cách, lớp vận chuyển điện tích, lớp quang hoạt hoặc lớp khác và/hoặc lên điện cực). Vật liệu perovskit theo một số phương án có thể được tạo ra tại chỗ trên bề mặt của thành phần khác của thiết bị (ví

dụ, bằng cách lắng đọng hơi dưới dạng màng mỏng rắn). Cách thích hợp khác bất kỳ để tạo ra lớp chứa vật liệu perovskit có thể được sử dụng.

Nói chung, thiết bị chứa vật liệu perovskit có thể bao gồm điện cực thứ nhất, điện cực thứ hai và lớp hoạt động chứa vật liệu perovskit, lớp hoạt động này được đặt ít nhất một phần ở giữa các điện cực thứ nhất và thứ hai. Theo một số phương án, điện cực thứ nhất có thể là một trong số anốt và catốt, và điện cực thứ hai có thể là điện cực còn lại trong số anốt và catốt. Lớp hoạt động theo các phương án nhất định có thể bao gồm một hoặc nhiều thành phần lớp hoạt động bất kỳ, bao gồm một hoặc nhiều vật liệu bất kỳ trong số: vật liệu vận chuyển điện tích; chất điện phân lỏng; vật liệu mao quản trung bình; vật liệu quang hoạt (ví dụ, chất màu, silic, cadimi telurua, cadimi sulfua, cadimi selenua, đồng indi gali selenua, gali arsenua, germani indi phosphua, polyme bán dẫn, các vật liệu quang hoạt khác); và vật liệu phân cách. Một hoặc nhiều thành phần bất kỳ trong số các thành phần lớp hoạt động này có thể bao gồm một hoặc nhiều vật liệu perovskit. Theo một số phương án, một số hoặc tất cả các thành phần lớp hoạt động có thể được bố trí toàn bộ hoặc một phần trong các phân lớp. Ví dụ, lớp hoạt động có thể bao gồm một hoặc nhiều lớp bất kỳ trong số: lớp phân cách bao gồm vật liệu phân cách; lớp mao quản trung bình bao gồm vật liệu mao quản trung bình; và lớp vận chuyển điện tích bao gồm vật liệu vận chuyển điện tích. Ngoài ra, lớp phân cách có thể được bao gồm giữa hai hoặc nhiều lớp khác bất kỳ của lớp hoạt động theo một số phương án và/hoặc giữa thành phần lớp hoạt động và điện cực. Việc đề cập đến các lớp ở đây có thể bao gồm cách bố trí cuối cùng (ví dụ, các phần về cơ bản là riêng rẽ của mỗi vật liệu có thể xác định được riêng biệt trong thiết bị), và/hoặc việc đề cập đến các lớp có thể có nghĩa là cách bố trí trong quá trình thiết kế thiết bị, bất kể khả năng trộn lẫn (các) vật liệu sau đó trong mỗi lớp. Theo một số phương án, các lớp có thể là riêng rẽ và bao gồm vật liệu về cơ bản là tiếp giáp (ví dụ, các lớp có thể là như được minh họa cách điệu trên Fig.2).

Theo một số phương án, thiết bị chứa vật liệu perovskit có thể là tranzito hiệu ứng trường (FET). Thiết bị chứa vật liệu perovskit FET có thể bao gồm điện cực nguồn, điện cực máng, điện cực cửa, lớp điện môi và lớp bán dẫn. Theo một số phương án, lớp bán dẫn của thiết bị chứa vật liệu perovskit FET có thể là vật liệu perovskit.

Thiết bị chứa vật liệu perovskit theo một số phương án có thể tùy ý bao gồm một hoặc nhiều lớp nền. Theo một số phương án, một trong hai hoặc cả hai điện cực thứ nhất và thứ hai có thể được phủ hoặc được đặt theo cách khác lên lớp nền, sao cho điện cực này về cơ bản là được đặt giữa lớp nền và lớp hoạt động. Vật liệu tạo thành các thành phần của thiết bị (ví dụ, các thành phần lớp nền, điện cực, lớp hoạt động và/hoặc lớp hoạt động) có thể là cứng hoặc mềm dẻo toàn bộ hoặc một phần theo các phương án khác nhau. Theo một số phương án, điện cực có thể hoạt động như lớp nền, nhờ đó loại bỏ nhu cầu về lớp nền riêng biệt.

Ngoài ra, thiết bị chứa vật liệu perovskit theo các phương án nhất định có thể tùy ý bao gồm lớp chống phản xạ hoặc lớp phủ chống phản xạ (ARC). Ngoài ra, thiết bị chứa vật liệu perovskit có thể bao gồm một hoặc nhiều chất phụ gia bất kỳ, như một hoặc nhiều chất phụ gia bất kỳ trong số các chất phụ gia được nêu ở trên theo một số phương án của sáng chế.

Mô tả về một số vật liệu khác nhau mà có thể được bao gồm trong thiết bị chứa vật liệu perovskit sẽ được thực hiện một phần với tham chiếu đến Fig.2. Fig.2 là sơ đồ cách điệu của thiết bị chứa vật liệu perovskit 3900 theo một số phương án. Mặc dù các thành phần khác nhau của thiết bị 3900 được minh họa dưới dạng các lớp riêng rẽ chứa vật liệu tiếp giáp, nhưng cần hiểu rằng Fig.2 là sơ đồ cách điệu; do đó, các phương án phù hợp với nó có thể bao gồm các lớp riêng rẽ như vậy và/hoặc các lớp về cơ bản là trộn lẫn, không tiếp giáp, phù hợp với việc sử dụng “các lớp” nêu trên trong bản mô tả này. Thiết bị 3900 bao gồm các lớp nền thứ nhất và thứ hai 3901 và 3913. Điện cực thứ nhất 3902 được đặt lên bề mặt bên trong của lớp nền thứ nhất 3901, và điện cực thứ hai 3912 được đặt lên bề mặt bên trong của lớp nền thứ hai 3913. Lớp hoạt động 3950 được kẹp giữa hai điện cực 3902 và 3912. Lớp hoạt động 3950 bao gồm lớp mao quản trung bình 3904; các vật liệu quang hoạt thứ nhất và thứ hai 3906 và 3908; lớp vận chuyển điện tích 3910, và một số lớp phân cách. Fig.2 còn minh họa thiết bị 3900 làm ví dụ theo các phương án trong đó các phân lớp của lớp hoạt động 3950 được tách biệt bởi lớp phân cách, và ngoài ra trong đó lớp phân cách được đặt lên mỗi điện cực 3902 và 3912. Cụ thể, các lớp phân cách thứ hai, thứ ba và thứ tư 3905, 3907 và 3909 lần lượt được đặt giữa mỗi trong số lớp mao quản trung bình 3904, vật liệu quang hoạt thứ nhất 3906, vật liệu quang hoạt thứ hai 3908 và lớp

vận chuyển điện tích 3910. Các lớp phân cách thứ nhất và thứ năm 3903 và 3911 lần lượt được đặt giữa (i) điện cực thứ nhất 3902 và lớp mao quản trung bình 3904; và (ii) lớp vận chuyển điện tích 3910 và điện cực thứ hai 3912. Do đó, kết cấu của thiết bị làm ví dụ được thể hiện trên Fig.2 có thể được mô tả đặc điểm là: lớp nền-điện cực-lớp hoạt động-điện cực-lớp nền. Kết cấu của lớp hoạt động 3950 có thể được mô tả đặc điểm là: lớp phân cách-lớp mao quản trung bình-lớp phân cách-vật liệu quang hoạt-lớp phân cách-vật liệu quang hoạt-lớp phân cách-lớp vận chuyển điện tích-lớp phân cách. Như đã lưu ý ở trên, theo một số phương án, lớp phân cách không cần phải có mặt; hoặc một hoặc nhiều lớp phân cách có thể chỉ được bao gồm giữa một số, chứ không phải là tất cả, thành phần của lớp hoạt động và/hoặc thành phần của thiết bị.

Lớp nền, như một trong hai hoặc cả hai lớp nền thứ nhất và thứ hai 3901 và 3913, có thể là mềm dẻo hoặc cứng. Nếu có hai lớp nền, thì ít nhất là một lớp nền phải trong suốt hoặc trong mờ đối với bức xạ điện từ (EM) (như, ví dụ, bức xạ UV, bức xạ nhìn thấy hoặc bức xạ IR). Nếu có một lớp nền, thì nó có thể trong suốt hoặc trong mờ tương tự, mặc dù không cần phải như vậy, miễn là một phần của thiết bị cho phép bức xạ EM tiếp xúc với lớp hoạt động 3950. Vật liệu nền thích hợp bao gồm một hoặc nhiều vật liệu bất kỳ trong số: thủy tinh; saphia; magie oxit (MgO); mica; polyme (ví dụ, PEN, PET, PEG, polyolefin, polypropylen, polyetylen, polycacbonat, PMMA, polyamit, vinyl, Kapton); gốm; cacbon; composit (ví dụ, sợi thủy tinh, Kevlar; sợi cacbon); vải (ví dụ, bông, nylon, lụa, len); gỗ; tấm thạch cao; gạch (ví dụ, gốm, composit hoặc đất sét); kim loại; thép; bạc; vàng; nhôm; magie; bê tông; và dạng kết hợp của chúng.

Như đã lưu ý ở trên, điện cực (ví dụ, một trong số các điện cực 3902 và 3912 trên Fig.2) có thể là anốt hoặc catốt. Theo một số phương án, một điện cực có thể có chức năng làm catốt, và điện cực còn lại có thể có chức năng làm anốt. Một trong hai hoặc cả hai điện cực 3902 và 3912 có thể được nối vào dây dẫn chính, cáp, dây điện hoặc phương tiện khác cho phép vận chuyển điện tích đến và/hoặc từ thiết bị 3900. Điện cực có thể bao gồm vật liệu dẫn điện bất kỳ, và ít nhất một điện cực cần phải trong suốt hoặc trong mờ đối với bức xạ EM và/hoặc được bố trí theo cách cho phép bức xạ EM tiếp xúc với ít nhất một phần của lớp hoạt động 3950. Vật liệu điện cực

thích hợp có thể bao gồm một hoặc nhiều vật liệu bất kỳ trong số: indi thiếc oxit hoặc indi oxit pha thiếc (ITO); thiếc oxit pha flo (FTO); cadimi oxit (CdO); kẽm indi thiếc oxit (ZITO); nhôm kẽm oxit (AZO); nhôm (Al); vàng (Au); bạc (Ag); canxi (Ca); crom (Cr); đồng (Cu); magie (Mg); titan (Ti); thép; cacbon (và các dạng thù hình của nó); cacbon pha lẫn (ví dụ, pha nito); hạt nano có kết cấu lõi-vỏ (ví dụ, cấu trúc lõi-vỏ silic-cacbon); và dạng kết hợp của chúng.

Vật liệu mao quản trung bình (ví dụ, vật liệu được bao gồm trong lớp mao quản trung bình 3904 trên Fig.2) có thể bao gồm vật liệu có lỗ bất kỳ. Theo một số phương án, lỗ có thể có đường kính nằm trong khoảng từ khoảng 1 đến khoảng 100 nm; theo các phương án khác, đường kính lỗ có thể nằm trong khoảng từ khoảng 2 đến khoảng 50 nm. Vật liệu mao quản trung bình thích hợp bao gồm một hoặc nhiều vật liệu bất kỳ trong số: vật liệu phân cách và/hoặc vật liệu mao quản trung bình bất kỳ nêu trong bản mô tả này; nhôm (Al); bismut (Bi); xeri (Ce); hafni (Hf); indi (In); molybden (Mo); niobi (Nb); niken (Ni); silic (Si); titan (Ti); vanadi (V); kẽm (Zn); ziricon (Zr); oxit của một hoặc nhiều kim loại bất kỳ trong số các kim loại nêu trên (ví dụ, nhôm oxit, xeri oxit, titan oxit, kẽm oxit, ziricon oxit, v.v.); sulfua của một hoặc nhiều kim loại bất kỳ trong số các kim loại nêu trên; nitrua của một hoặc nhiều kim loại bất kỳ trong số các kim loại nêu trên; và dạng kết hợp của chúng. Theo một số phương án, vật liệu bất kỳ được mô tả trong bản mô tả này là IFL có thể là vật liệu mao quản trung bình. Theo các phương án khác, thiết bị được minh họa bởi Fig.2 có thể không bao gồm lớp vật liệu mao quản trung bình và chỉ bao gồm IFL màng mỏng, hoặc “nén”, mà không phải là mao quản trung bình.

Vật liệu quang hoạt (ví dụ, vật liệu quang hoạt thứ nhất hoặc thứ hai 3906 hoặc 3908 trên Fig.2) có thể là hợp chất quang hoạt bất kỳ, như một hoặc nhiều chất bất kỳ trong số silic (ví dụ, silic đa tinh thể, silic đơn tinh thể hoặc silic vô định hình), cadimi telurua, cadimi sulfua, cadimi selenua, đồng indi gali selenua, đồng indi selenua, đồng kẽm thiếc sulfua, gali arsenua, germani, germani indi phosphua, indi phosphua, một hoặc nhiều polyme bán dẫn (ví dụ, polythiophen (ví dụ, poly(3-hexylthiophen) và dẫn xuất của chúng, hoặc P3HT); copolyme gốc carbazol như polyheptadecanylcarbazol dithienylbenzothiadiazol và dẫn xuất của chúng (ví dụ, PCDTBT); copolyme khác như polyxyclopentadithiophen-benzothiadiazol và dẫn

xuất của chúng (ví dụ, PCPDTBT), polybenzodithiophenyl-thienothiophendiyl và dẫn xuất của chúng (ví dụ, PTB6, PTB7, PTB7-th, PCE-10); hợp chất poly(triaryl amin) và dẫn xuất của chúng (ví dụ, PTAA); polyphenylen vinylen và dẫn xuất của chúng (ví dụ, MDMO-PPV, MEH-PPV), và dạng kết hợp của chúng.

Theo các phương án nhất định, vật liệu quang hoạt có thể thay vào đó hoặc ngoài ra bao gồm chất màu (ví dụ, N719, N3, các chất màu gốc ruteni khác). Theo một số phương án, chất màu (có thành phần bất kỳ) có thể được phủ lên lớp khác (ví dụ, lớp mao quản trung bình và/hoặc lớp phân cách). Theo một số phương án, vật liệu quang hoạt có thể bao gồm một hoặc nhiều vật liệu perovskit. Chất quang hoạt chứa vật liệu perovskit có thể là ở dạng rắn, hoặc theo một số phương án, nó có thể ở dạng chất màu mà bao gồm huyền phù hoặc dung dịch chứa vật liệu perovskit. Dung dịch hoặc huyền phù này có thể được phủ lên các thành phần khác của thiết bị theo cách tương tự với các chất màu khác. Theo một số phương án, vật liệu chứa perovskit rắn có thể được lắng đọng bằng cách thích hợp bất kỳ (ví dụ, lắng đọng hơi, lắng đọng dung dịch, đặt trực tiếp vật liệu rắn.). Thiết bị theo các phương án khác nhau có thể bao gồm một, hai, ba hoặc nhiều hợp chất quang hoạt (ví dụ, một, hai, ba hoặc nhiều vật liệu perovskit, chất màu, hoặc dạng kết hợp của chúng). Theo các phương án nhất định bao gồm nhiều chất màu hoặc các vật liệu quang hoạt khác, mỗi trong số hai hoặc nhiều chất màu hoặc các vật liệu quang hoạt khác này có thể được ngăn cách bởi một hoặc nhiều lớp phân cách. Theo một số phương án, các chất màu và/hoặc hợp chất quang hoạt có thể được trộn lẫn ít nhất một phần.

Vật liệu vận chuyển điện tích (ví dụ, vật liệu vận chuyển điện tích của lớp vận chuyển điện tích 3910 trên Fig.2) có thể bao gồm vật liệu vận chuyển điện tích ở trạng thái rắn (tức là, chất điện phân ở trạng thái rắn theo cách ghi nhãn thông thường), hoặc nó có thể bao gồm chất điện phân lỏng và/hoặc chất lỏng ion. Vật liệu bất kỳ trong số chất điện phân lỏng, chất lỏng ion và vật liệu vận chuyển điện tích ở trạng thái rắn có thể được gọi là vật liệu vận chuyển điện tích. Trong bản mô tả này, “vật liệu vận chuyển điện tích” chỉ vật liệu bất kỳ, rắn, lỏng hoặc trạng thái khác, có khả năng tập hợp hạt mang điện tích và/hoặc vận chuyển hạt mang điện tích. Ví dụ, ở thiết bị PV theo một số phương án, vật liệu vận chuyển điện tích có thể có khả năng vận chuyển hạt mang điện tích đến điện cực. Hạt mang điện tích có thể bao gồm lỗ

trống (việc vận chuyển nó có thể làm cho vật liệu vận chuyển điện tích giống như được ghi nhãn đúng là “vật liệu vận chuyển lỗ trống”) và điện tử. Lỗ trống có thể được vận chuyển về phía anốt, và điện tử về phía catốt, tùy thuộc vào việc đặt vật liệu vận chuyển điện tích so với catốt hoặc anốt trong PV hoặc thiết bị khác. Ví dụ thích hợp về vật liệu vận chuyển điện tích theo một số phương án có thể bao gồm một hoặc nhiều chất bất kỳ trong số: vật liệu perovskit; I^-/I_3^- ; phức chất Co; polythiophen (ví dụ, poly(3-hexylthiophen) và dẫn xuất của chúng, hoặc P3HT); copolyme gốc carbazol như polyheptadecanylcarbazol dithienylbenzothiadiazol và dẫn xuất của chúng (ví dụ, PCDTBT); copolyme khác như polyxyclopentadithiophen-benzothiadiazol và dẫn xuất của chúng (ví dụ, PCPDTBT), polybenzodithiophenyl-thienothiophendiyl và dẫn xuất của chúng (ví dụ, PTB6, PTB7, PTB7-th, PCE-10); hợp chất poly(triaryl amin) và dẫn xuất của chúng (ví dụ, PTAA); Spiro-OMeTAD; polyphenylen vinylen và dẫn xuất của chúng (ví dụ, MDMO-PPV, MEH-PPV); fulleren và/hoặc dẫn xuất fulleren (ví dụ, C60, PCBM); ống nano cacbon; graphit; graphen; muội than; cacbon vô định hình; cacbon thủy tinh; sợi cacbon; và dạng kết hợp của chúng. Theo các phương án nhất định, vật liệu vận chuyển điện tích có thể bao gồm vật liệu bất kỳ, rắn hoặc lỏng, có khả năng tập hợp hạt mang điện tích (điện tử hoặc lỗ trống) và/hoặc có khả năng vận chuyển hạt mang điện tích. Do đó, vật liệu vận chuyển điện tích theo một số phương án có thể là vật liệu bán dẫn hoạt động loại n hoặc loại p, lưỡng cực và/hoặc thuần. Vật liệu vận chuyển điện tích có thể được đặt gần một trong số các điện cực của thiết bị. Theo một số phương án, nó có thể được đặt liền kề với điện cực, mặc dù theo các phương án khác, lớp phân cách có thể được đặt giữa vật liệu vận chuyển điện tích và điện cực (như được thể hiện, ví dụ, trên Fig.2 với lớp phân cách thứ năm 3911). Theo các phương án nhất định, loại của vật liệu vận chuyển điện tích có thể được chọn dựa vào điện cực mà nó ở gần. Ví dụ, nếu vật liệu vận chuyển điện tích tập hợp và/hoặc vận chuyển lỗ trống, thì nó có thể ở gần anốt để vận chuyển lỗ trống đến anốt. Tuy nhiên, vật liệu vận chuyển điện tích có thể theo cách khác được đặt gần catốt và được chọn hoặc được thiết kế để vận chuyển điện tử đến catốt.

Như đã lưu ý ở trên, thiết bị theo các phương án khác nhau có thể tùy ý bao gồm lớp phân cách giữa hai lớp và/hoặc vật liệu khác bất kỳ, mặc dù thiết bị theo một số

phương án không cần phải bao gồm bất kỳ lớp phân cách nào. Do đó, ví dụ, thiết bị chứa vật liệu perovskit có thể bao gồm không, một, hai, ba, bốn, năm hoặc nhiều lớp phân cách (như thiết bị làm ví dụ trên Fig.2, thiết bị này bao gồm năm lớp phân cách 3903, 3905, 3907, 3909 và 3911). Lớp phân cách có thể bao gồm lớp phân cách phủ mỏng theo các phương án nêu trên trong bản mô tả này (ví dụ, chứa nhôm oxit và/hoặc các hạt oxit kim loại khác và/hoặc lớp kép oxit titan/oxit kim loại và/hoặc các hợp chất khác phù hợp với lớp phân cách phủ mỏng như được nêu trong bản mô tả này). Lớp phân cách theo một số phương án có thể bao gồm vật liệu thích hợp bất kỳ để tăng cường sự vận chuyển và/hoặc tập hợp điện tích giữa hai lớp hoặc vật liệu; nó cũng có thể giúp ngăn chặn hoặc làm giảm khả năng tái kết hợp điện tích khi điện tích đã được vận chuyển ra khỏi một trong số các vật liệu liền kề với lớp phân cách. Vật liệu phân cách thích hợp có thể bao gồm một hoặc nhiều vật liệu bất kỳ trong số: vật liệu mao quản trung bình và/hoặc vật liệu phân cách bất kỳ được nêu trong bản mô tả này; Ag; Al; Au; B; Bi; Ca; Cd; Ce; Co; Cu; Fe; Ga; Ge; H; In; Mg; Mn; Mo; Nb; Ni; Pt; Sb; Sc; Si; Sn; Ta; Ti; V; W; Y; Zn; Zr; cacbua của kim loại bất kỳ trong số kim loại nêu trên (ví dụ, SiC, Fe₃C; WC); silicua của kim loại bất kỳ trong số kim loại nêu trên (ví dụ, Mg₂Si, SrSi₂, Sn₂Si); oxit của kim loại bất kỳ trong số kim loại nêu trên (ví dụ, nhôm oxit, silic oxit, titan oxit, SnO₂, ZnO); sulfua của kim loại bất kỳ trong số kim loại nêu trên (ví dụ, CdS, MoS₂, SnS₂); nitrua của kim loại bất kỳ trong số kim loại nêu trên (ví dụ, Mg₃N₂, TiN, BN, Si₃N₄); selenua của kim loại bất kỳ trong số kim loại nêu trên (ví dụ, CdSe, FeSe₂, ZnSe); telurua của kim loại bất kỳ trong số kim loại nêu trên (ví dụ, CdTe, TiTe₂, ZnTe); phosphua của kim loại bất kỳ trong số kim loại nêu trên (ví dụ, InP, GaP); arsenua của kim loại bất kỳ trong số kim loại nêu trên (ví dụ, CoAs₃, GaAs, InGaAs, NiAs); antimonua của kim loại bất kỳ trong số kim loại nêu trên (ví dụ, AlSb, GaSb, InSb); halogenua của kim loại bất kỳ trong số kim loại nêu trên (ví dụ, CuCl, CuI, BiI₃); halogenua giả của kim loại bất kỳ trong số kim loại nêu trên (ví dụ, CuSCN, AuCN₂); cacbonat của kim loại bất kỳ trong số kim loại nêu trên (ví dụ, CaCO₃, Ce₂(CO₃)₃); nhóm alkyl silyl được tạo chức hoặc không được tạo chức; graphit; graphen; fulleren; ống nano cacbon; vật liệu mao quản trung bình và/hoặc vật liệu phân cách bất kỳ được nêu trong bản mô tả này; và dạng kết hợp của chúng (bao gồm, theo một số phương án, hai lớp, ba lớp hoặc nhiều

lớp vật liệu kết hợp). Theo một số phương án, lớp phân cách có thể bao gồm vật liệu perovskit. Ngoài ra, lớp phân cách có thể bao gồm các phương án pha lẫn của vật liệu phân cách bất kỳ nêu trong bản mô tả này (ví dụ, ZnO pha Y, ống nano cacbon đơn thành pha N). Lớp phân cách có thể còn bao gồm hợp chất chứa ba trong số các vật liệu nêu trên (ví dụ, CuTiO_3 , Zn_2SnO_4) hoặc hợp chất chứa bốn trong số các vật liệu nêu trên (ví dụ, CoNiZnO).

Để làm ví dụ, Fig.3 minh họa một phương án của thiết bị chứa vật liệu perovskit 3900a có cấu trúc tương tự với thiết bị chứa vật liệu perovskit 3900 được minh họa bởi Fig.2. Fig.3 là sơ đồ cách điệu của thiết bị chứa vật liệu perovskit 3900a theo một số phương án. Mặc dù các thành phần khác nhau của thiết bị 3900a được minh họa dưới dạng các lớp riêng rẽ chứa vật liệu tiếp giáp, nhưng cần hiểu rằng Fig.3 là sơ đồ cách điệu; do đó, các phương án phù hợp với nó có thể bao gồm các lớp riêng rẽ như vậy và/hoặc các lớp về cơ bản là trộn lẫn, không tiếp giáp, phù hợp với việc sử dụng “các lớp” nêu trên trong bản mô tả này. Fig.3 bao gồm các lớp hoạt động 3906a và 3908a. Một hoặc cả hai lớp hoạt động 3906a và 3908a có thể, theo một số phương án, bao gồm vật liệu quang hoạt perovskit bất kỳ được mô tả ở trên với tham chiếu đến Fig.2. Theo các phương án khác, một hoặc cả hai lớp hoạt động 3906a và 3908a có thể bao gồm vật liệu quang hoạt bất kỳ được nêu trong bản mô tả này, như, chất bán dẫn màng mỏng (ví dụ, CdTe , CZTS , CIGS), polyme quang hoạt, vật liệu quang hoạt nhạy chất màu, fulleren, vật liệu quang hoạt phân tử nhỏ, và vật liệu bán dẫn tinh thể và đa tinh thể (ví dụ, silic, GaAs , InP , Ge). Theo các phương án khác nữa, một hoặc cả hai lớp hoạt động 3906a và 3908a có thể bao gồm điốt phát quang (LED), tranzito hiệu ứng trường (FET), lớp ắc quy màng mỏng, hoặc dạng kết hợp của chúng. Theo các phương án, một trong số các lớp hoạt động 3906a và 3908a có thể bao gồm vật liệu quang hoạt và các lớp còn lại có thể bao gồm điốt phát quang (LED), tranzito hiệu ứng trường (FET), lớp ắc quy màng mỏng, hoặc dạng kết hợp của chúng. Ví dụ, lớp hoạt động 3908a có thể là lớp vật liệu perovskit quang hoạt và lớp hoạt động 3906b có thể là lớp tranzito hiệu ứng trường. Các lớp khác được minh họa trên Fig.3, như các lớp 3901a, 3902a, 3903a, 3904a, 3905a, 3907a (ví dụ, lớp tái kết hợp), 3909a, 3910a, 3911a, 3912a, và 3913a, có thể tương tự với các lớp tương đương như vậy như được mô tả ở đây với tham chiếu đến Fig.2.

Ngoài ra, theo một số phương án, vật liệu perovskit có thể có ba hoặc nhiều lớp hoạt động. Để làm ví dụ, Fig.4 minh họa một phương án của thiết bị chứa vật liệu perovskit 3900b có cấu trúc tương tự với thiết bị chứa vật liệu perovskit 3900 được minh họa bởi Fig.2. Fig.3 là sơ đồ cách điệu của thiết bị chứa vật liệu perovskit 3900b theo một số phương án. Mặc dù các thành phần khác nhau của thiết bị 3900b được minh họa dưới dạng các lớp riêng rẽ chứa vật liệu tiếp giáp, nhưng cần hiểu rằng Fig.4 là sơ đồ cách điệu; do đó, các phương án phù hợp với nó có thể bao gồm các lớp riêng rẽ như vậy và/hoặc các lớp về cơ bản là trộn lẫn, không tiếp giáp, phù hợp với việc sử dụng “các lớp” nêu trên trong bản mô tả này. Fig.4 bao gồm các lớp hoạt động 3904b, 3906b và 3908b. Một hoặc nhiều lớp trong số các lớp hoạt động 3904b, 3906b và 3908b có thể, theo một số phương án, bao gồm vật liệu quang hoạt perovskit bất kỳ được mô tả ở trên với tham chiếu đến Fig.2. Theo các phương án khác, một hoặc nhiều lớp trong số các lớp hoạt động 3904b, 3906b và 3908b có thể bao gồm vật liệu quang hoạt bất kỳ được nêu trong bản mô tả này, như, chất bán dẫn màng mỏng (ví dụ, CdTe, CZTS, CIGS), polyme quang hoạt, vật liệu quang hoạt nhạy chất màu, fulleren, vật liệu quang hoạt phân tử nhỏ, và vật liệu bán dẫn tinh thể và đa tinh thể (ví dụ, silic, GaAs, InP, Ge). Theo các phương án khác nữa, một hoặc nhiều lớp trong số các lớp hoạt động 3904b, 3906b và 3908b có thể bao gồm điốt phát quang (LED), tranzito hiệu ứng trường (FET), lớp ắc quy màng mỏng, hoặc dạng kết hợp của chúng. Theo các phương án, một hoặc nhiều lớp trong số các lớp hoạt động 3904b, 3906b và 3908b có thể bao gồm vật liệu quang hoạt và các lớp còn lại có thể bao gồm điốt phát quang (LED), tranzito hiệu ứng trường (FET), lớp ắc quy màng mỏng, hoặc dạng kết hợp của chúng. Ví dụ, cả hai lớp hoạt động 3908a và 3906b có thể đều là lớp vật liệu perovskit quang hoạt và lớp hoạt động 3904b có thể là lớp tranzito hiệu ứng trường. Các lớp khác được minh họa trên Fig.3, như các lớp 3901b, 3902b, 3903b, 3904b, 3905b (tức là, lớp tái kết hợp), 3907b (tức là, lớp tái kết hợp), 3909b, 3910b, 3911b, 3912b, và 3913b, có thể tương tự với các lớp tương đương như vậy như được mô tả ở đây với tham chiếu đến Fig.2.

Các phương án ví dụ bổ sung, cụ thể hơn của thiết bị perovskit sẽ được thảo luận dựa vào các mô tả cách điệu bổ sung về thiết bị làm ví dụ. Tương tự, tính chất cách điệu của các mô tả này, các hình vẽ từ Fig.1 đến Fig.4, không nhằm giới hạn

loại thiết bị mà theo một số phương án có thể được thiết kế theo một hoặc nhiều hình vẽ bất kỳ trong số các hình vẽ từ Fig.1 đến Fig.4. Tức là, các kết cấu được thể hiện trên Fig 1-Fig.4 có thể được điều chỉnh để tạo ra BHJ, ắc quy, FET, ắc quy PV lai, PV nhiều tế bào nối tiếp, PV nhiều tế bào song song và các thiết bị tương tự khác theo các phương án khác của sáng chế, theo cách thích hợp bất kỳ (bao gồm cả các cách được nêu rõ ràng trong bản mô tả này và các cách thích hợp khác mà sẽ được hiểu bởi người có hiểu biết trung bình về lĩnh vực kỹ thuật liên quan với sự trợ giúp của bản mô tả này).

Công thức của lớp hoạt động chứa vật liệu perovskit

Như đã mô tả ở trên, theo một số phương án, vật liệu perovskit trong lớp hoạt động có thể có công thức $CMX_{3-y}X'_y$ ($0 \leq y \leq 3$), trong đó: C bao gồm một hoặc nhiều cation (ví dụ, amin, amoni, kim loại nhóm 1, kim loại nhóm 2, formamidini, guanidini, eten tetramin, phosphoni, imidazoli và/hoặc các cation khác hoặc các hợp chất giống cation); M bao gồm một hoặc nhiều kim loại (ví dụ, Be, Mg, Ca, Sr, Ba, Fe, Cd, Co, Ni, Cu, Ag, Au, Hg, Sn, Ge, Ga, Pb, In, Tl, Sb, Bi, Ti, Zn, Cd, Hg và Zr); và X và X' bao gồm một hoặc nhiều anion. Theo một phương án, vật liệu perovskit có thể bao gồm $CPbI_{3-y}Cl_y$. Theo các phương án nhất định, vật liệu perovskit có thể được lắng đọng dưới dạng lớp hoạt động trong thiết bị PV bằng cách, ví dụ, đúc nhỏ giọt, đúc quay, in với đầu tạo hình khe hẹp, in lưới hoặc in phun mực lên lớp nền bằng cách sử dụng các bước được mô tả dưới đây.

Trước tiên, mực tiền chất chì halogenua được tạo ra. Lượng chì halogenua có thể được cho vào bình khô sạch trong môi trường khí có kiểm soát (ví dụ, hộp môi trường khí có kiểm soát với các lỗ cửa có gắng tay cho phép thao tác vật liệu trong môi trường không có không khí). Chì halogenua thích hợp bao gồm, nhưng không giới hạn ở, chì (II) iodua, chì (II) bromua, chì (II) clorua và chì (II) florua. Chì halogenua có thể bao gồm một loại chì halogenua hoặc nó có thể bao gồm hỗn hợp chì halogenua với tỷ lệ chính xác. Theo các phương án nhất định, hỗn hợp chì halogenua có thể chứa iodua, bromua, clorua hoặc florua với tỷ lệ bộ đôi, bộ ba và bộ bốn bất kỳ nằm trong khoảng từ 0,001 đến 100% mol. Theo một phương án, hỗn hợp chì halogenua có thể bao gồm chì (II) clorua và chì (II) iodua với tỷ lệ bằng khoảng

10:90 mol:mol. Theo các phương án khác, hỗn hợp chì halogenua có thể bao gồm chì (II) clorua và chì (II) iodua với tỷ lệ bằng khoảng 5:95, khoảng 7,5:92,5, hoặc khoảng 15:85 mol:mol.

Theo cách khác, các tiền chất muối chì khác có thể được sử dụng cùng với hoặc thay cho muối chì halogenua để tạo ra mực tiền chất. Muối tiền chất thích hợp có thể là dạng kết hợp bất kỳ của chì (II) hoặc chì (IV) và anion sau đây: nitrat, nitrit, carboxylat, axetat, axetonyl axetonat, format, oxalat, sulfat, sulfat, thiosulfat, phosphat, tetrafloroborat, hexaflorophosphat, tetra(perflorophenyl) borat, hydrua, oxit, peroxit, hydroxit, nitrua, arsenat, arsenit, perchlorat, cacbonat, bicacbonat, cromat, dicromat, iodat, bromat, clorat, clorit, hypoclorit, hypobromit, xyanua, xyanat, isoxyanat, fulminat, thioxyanat, isothioxyanat, azit, tetracacbonylcobaltat, carbamoyldixyanometanit, dixyanonitrosometanit, dixyanamit, trixyanometanit, amit và permanganat.

Mực tiền chất có thể còn bao gồm muối chì (II) hoặc chì (IV) với tỷ lệ mol nằm trong khoảng từ 0 đến 100% đối với các ion kim loại sau Be, Mg, Ca, Sr, Ba, Fe, Cd, Co, Ni, Cu, Ag, Au, Hg, Sn, Ge, Ga, Pb, In, Tl, Sb, Bi, Ti, Zn, Cd, Hg và Zr dưới dạng muối của các anion nêu trên.

Sau đó, dung môi có thể được thêm vào bình để hòa tan chất rắn chứa chì để tạo ra mực tiền chất chì halogenua. Dung môi thích hợp bao gồm, nhưng không giới hạn ở, N-xyclohexyl-2-pyrrolidon, alkyl-2-pyrrolidon, dimetylformamit, dialkylformamit, dimethylsulfoxit (dimethylsulfoxide, DMSO), metanol, etanol, propanol, butanol, tetrahydrofuran, formamit, tert-butylpyridin, pyridin, alkylpyridin, pyrrolidin, clobenzen, diclobenzen, diclometan, clorofom, ở dạng khô, và dạng kết hợp của chúng. Theo một phương án, chất rắn chứa chì này được hòa tan trong dimetylformamit (dimethylformamide, DMF) khô. Các chất rắn chứa chì có thể được hòa tan ở nhiệt độ trong khoảng 20° C đến khoảng 150° C. Theo một phương án, các chất rắn chứa chì được hòa tan ở khoảng 85° C. Các chất rắn chứa chì có thể được hòa tan trong khoảng thời gian cần thiết để tạo thành dung dịch, có thể diễn ra trong khoảng thời gian lên đến 72 giờ. Dung dịch thu được tạo thành cơ sở của mực tiền chất chì halogenua. Theo một số phương án, mực tiền chất chì halogenua có thể có

nồng độ chì halogenua nằm trong khoảng từ khoảng 0,001 M và khoảng 10 M. Theo một phương án, mực tiền chất chì halogenua có nồng độ chì halogenua bằng khoảng 1 M.

Tùy ý, các chất phụ gia nhất định có thể được thêm vào mực tiền chất chì halogenua để tác động đến độ kết tinh và độ ổn định của perovskit cuối cùng. Theo một số phương án, mực tiền chất chì halogenua có thể còn chứa axit amin (ví dụ, axit 5-aminovaleric, histidin, glyxin, lysin), axit amin hydrohalogenua (ví dụ, axit 5-amino valeric hydroclorua), chất làm thay đổi bề mặt IFL (SAM) (như các chất đã được mô tả ở trên trong bản mô tả này), hoặc dạng kết hợp của chúng. Các axit amin phù hợp cho các mực in tiền chất halogenua chì có thể bao gồm, nhưng không bị giới hạn ở các axit amin α , axit amin β , axit amin γ , axit amin δ , và kết hợp bất kỳ của chúng. Theo một phương án, formamidini clorua có thể được thêm vào mực tiền chất chì halogenua. Theo các phương án khác, halogenua của cation bất kỳ đã được mô tả ở trên trong bản mô tả này có thể được sử dụng. Theo một số phương án, dạng kết hợp của các chất phụ gia có thể được thêm vào mực tiền chất chì halogenua bao gồm, ví dụ, dạng kết hợp của formamidini clorua và axit 5-amino valeric hydroclorua.

Để minh họa và không giới hạn sáng chế ở bất kỳ lý thuyết hay cơ chế cụ thể nào, đã phát hiện ra rằng formamidini clorua và axit 5-amino valeric cải thiện độ ổn định của thiết bị PV chứa perovskit khi chúng được sử dụng làm chất phụ gia hoặc đối cation trong quá trình chế tạo thiết bị perovskit một bước. Cũng phát hiện ra rằng clorua, ở dạng PbCl_2 , cải thiện hiệu quả của thiết bị PV chứa perovskit khi được thêm vào dung dịch tiền chất PbI_2 trong phương pháp hai bước. Đã phát hiện ra rằng quy trình lắng đọng màng mỏng perovskit hai bước có thể được cải thiện bằng cách thêm formamidini clorua và/hoặc axit 5-amino valeric hydroclorua trực tiếp vào dung dịch tiền chất chì halogenua (ví dụ, PbI_2) để tận dụng được cả hai ưu điểm với một vật liệu đơn lẻ. Các quy trình lắng đọng màng perovskit khác có thể cũng được cải thiện bằng cách thêm formamidini clorua, axit 5-amino valeric hydroclorua hoặc PbCl_2 vào dung dịch tiền chất chì halogenua.

Chất phụ gia, bao gồm formamidini clorua và/hoặc axit 5-amino valeric hydroclorua, có thể được thêm vào mực tiền chất chì halogenua với các nồng độ khác

nhau tùy thuộc vào đặc tính mong muốn của vật liệu perovskit tạo thành. Theo một phương án, chất phụ gia có thể được thêm vào với nồng độ nằm trong khoảng từ khoảng 1 nM đến khoảng 1 M. Theo phương án khác, chất phụ gia có thể được thêm vào với nồng độ nằm trong khoảng từ khoảng 1 μ M đến khoảng 1 M. Theo phương án khác, chất phụ gia có thể được thêm vào với nồng độ nằm trong khoảng từ khoảng 1 μ M đến khoảng 1 mM.

Tùy ý, theo các phương án nhất định, nước có thể được thêm vào mực tiền chất chì halogenua. Để minh họa và không giới hạn sáng chế ở bất kỳ lý thuyết hay cơ chế cụ thể nào, sự có mặt của nước tác động đến sự phát triển tinh thể của màng mỏng perovskit. Trong trường hợp bình thường, nước có thể được hấp thụ dưới dạng hơi từ không khí. Tuy nhiên, có thể kiểm soát độ kết tinh của PV perovskit thông qua việc thêm trực tiếp nước vào mực tiền chất chì halogenua với nồng độ cụ thể. Nước thích hợp bao gồm nước cất, nước khử ion, hoặc nguồn nước khác bất kỳ mà về cơ bản là không chứa tạp chất (bao gồm cả khoáng chất). Dựa vào các đường quét I-V ánh sáng, đã phát hiện ra rằng hiệu suất chuyển đổi ánh sáng thành điện năng của PV perovskit có thể tăng gần ba lần khi thêm nước so với thiết bị khô hoàn toàn.

Nước có thể được thêm vào mực tiền chất chì halogenua với các nồng độ khác nhau tùy thuộc vào đặc tính mong muốn của vật liệu perovskit tạo thành. Theo một phương án, nước có thể được thêm vào với nồng độ nằm trong khoảng từ khoảng 1 nL/mL đến khoảng 1 mL/mL. Theo phương án khác, nước có thể được thêm vào với nồng độ nằm trong khoảng từ khoảng 1 μ L/mL đến khoảng 0,1 mL/mL. Theo phương án khác, nước có thể được thêm vào với nồng độ nằm trong khoảng từ khoảng 1 μ L/mL đến khoảng 20 μ L/mL.

Sau đó, mực tiền chất chì halogenua có thể được lắng đọng lên lớp nền mong muốn. Lớp nền thích hợp có thể bao gồm lớp bất kỳ trong số các lớp nền đã được nêu ở trên trong bản mô tả này. Như đã lưu ý ở trên, mực tiền chất chì halogenua có thể được lắng đọng bằng nhiều cách khác nhau, bao gồm nhưng không giới hạn ở, đúc nhỏ giọt, đúc quay, in với đầu tạo hình khe hẹp, in lưới hoặc in phun mực. Theo các phương án nhất định, mực tiền chất chì halogenua có thể được phủ quay lên lớp nền với tốc độ nằm trong khoảng từ khoảng 500 vòng/phút đến khoảng 10000 vòng/phút

trong khoảng thời gian từ khoảng 5 giây đến khoảng 600 giây. Theo một phương án, mực tiền chất chì halogenua có thể được phủ quay lên lớp nền với tốc độ bằng khoảng 3000 vòng/phút trong khoảng 30 giây. Mực tiền chất chì halogenua có thể được lắng đọng lên lớp nền ở môi trường khí xung quanh trong khoảng độ ẩm tương đối từ khoảng 0% đến khoảng 50%. Sau đó, mực tiền chất chì halogenua có thể được để khô trong môi trường khí về cơ bản không chứa nước, tức là, độ ẩm tương đối nhỏ hơn 30%, để tạo ra màng mỏng.

Sau đó, màng mỏng có thể được tôi ủ bằng nhiệt trong khoảng thời gian lên tới khoảng 24 giờ ở nhiệt độ nằm trong khoảng từ khoảng 20°C đến khoảng 300°C. Theo một phương án, màng mỏng có thể được tôi ủ bằng nhiệt trong khoảng 10 phút ở nhiệt độ khoảng 50°C. Sau đó, lớp hoạt động chứa vật liệu perovskit có thể được hoàn thiện bằng quy trình chuyển hóa trong đó màng tiền chất được ngâm chìm hoặc được tráng rửa bằng dung dịch chứa dung môi hoặc hỗn hợp dung môi (ví dụ, DMF, isopropanol, metanol, etanol, butanol, clorofom, clobenzen, dimetylsulfoxit, nước) và muối (ví dụ, metylamoni iodua, formamidini iodua, guanidini iodua, 1,2,2-triaminovinylamoni iodua, axit 5-aminovaleric hydroiodua) với nồng độ nằm trong khoảng từ 0,001 M đến 10 M. Theo các phương án nhất định, màng mỏng có thể còn được tôi ủ sau đó bằng nhiệt theo cách giống như nêu trong dòng đầu tiên của đoạn này.

Theo một số phương án, tiền chất muối chì có thể được lắng đọng lên lớp nền để tạo ra màng mỏng muối chì. Lớp nền có thể có nhiệt độ khoảng bằng nhiệt độ xung quanh hoặc có nhiệt độ được kiểm soát nằm trong khoảng từ 0°C đến 500°C. Tiền chất muối chì có thể được lắng đọng bằng các phương pháp khác nhau đã biết trong lĩnh vực, bao gồm nhưng không giới hạn ở, phủ quay, in với đầu tạo hình khe hẹp, in phun mực, in lõm, in lưới, phún xạ, PE-CVD, làm bay hơi bằng nhiệt, phủ phun. Theo các phương án cụ thể, bước lắng đọng tiền chất muối chì có thể bao gồm các phương pháp sản xuất tấm đến tấm hoặc cuộn đến cuộn. Bước lắng đọng tiền chất muối chì có thể được thực hiện trong các môi trường khí khác nhau ở áp suất xung quanh (ví dụ, khoảng 0,1 MPa (1 atm), tùy thuộc vào điều kiện môi trường khí và độ nâng cao) hoặc ở áp suất nhỏ hơn áp suất môi trường khí hoặc áp suất xung quanh (ví dụ, từ khoảng 0,13 Pa đến khoảng 66,66 Pa (từ 1 mTorr đến 500 mTorr)). Môi trường khí

dùng để lắng đọng có thể là không khí xung quanh, môi trường có kiểm soát độ ẩm (ví dụ, 0-100 g H₂O/m³ khí), argon tinh khiết, nitơ tinh khiết, oxy tinh khiết, hydro tinh khiết, heli tinh khiết, neon tinh khiết, krypton tinh khiết, CO₂ tinh khiết, hoặc dạng kết hợp bất kỳ của các khí nêu trên. Môi trường có kiểm soát độ ẩm có thể bao gồm môi trường trong đó độ ẩm tuyệt đối hoặc % độ ẩm tương đối được giữ ở giá trị cố định, hoặc trong đó độ ẩm tuyệt đối hoặc % độ ẩm tương đối thay đổi theo các điểm thiết đặt định trước hoặc chức năng định trước. Theo các phương án cụ thể, bước lắng đọng có thể diễn ra trong môi trường có kiểm soát độ ẩm có % độ ẩm tương đối lớn hơn hoặc bằng 0% và nhỏ hơn hoặc bằng 50%. Theo các phương án khác, bước lắng đọng có thể diễn ra trong môi trường có kiểm soát độ ẩm chứa lớn hơn hoặc bằng 0 g H₂O/m³ khí và nhỏ hơn hoặc bằng 20 g H₂O/m³ khí.

Tiền chất muối chì có thể là chất lỏng, khí, rắn, hoặc dạng kết hợp của các trạng thái vật chất này như dung dịch, huyền phù, keo, bột, gel hoặc sol khí. Theo một số phương án, tiền chất muối chì có thể là dung dịch chứa một hoặc nhiều dung môi. Ví dụ, tiền chất muối chì có thể chứa một hoặc nhiều dung môi trong số N-xyclohexyl-2-pyrrolidon, alkyl-2-pyrrolidon, dimetylformamit, dialkylformamit, dimetylsulfoxit (dimethylsulfoxide, DMSO), axetonitril, metanol, etanol, propanol, butanol, tetrahydrofuran, formamit, tert-butylpyridin, pyridin, alkylpyridin, pyrrolidin, clobenzen, diclobenzen, diclometan, clorofom, và dạng kết hợp của chúng. Tiền chất muối chì có thể bao gồm một muối chì đơn lẻ (ví dụ, chì (II) iodua, chì (II) thioxyanat) hoặc dạng kết hợp bất kỳ của các muối chì nêu trong bản mô tả này (ví dụ, PbI₂ + PbCl₂; PbI₂ + Pb(SCN)₂). Tiền chất muối chì có thể còn chứa một hoặc nhiều chất phụ gia như axit amin (ví dụ, axit 5-aminovaleric hydroiodua), 1,8-diiodooctan, 1,8-dithiooctan, formamidini halogenua, axit axetic, axit trifloaxetic, metylamoni halogenua hoặc nước. Mục tiền chất chì halogenua có thể được để khô trong môi trường khí về cơ bản không chứa nước, tức là, độ ẩm tương đối nhỏ hơn 30%, để tạo ra màng mỏng. Sau đó, màng mỏng có thể được tôi ủ bằng nhiệt trong khoảng thời gian lên tới khoảng 24 giờ ở nhiệt độ nằm trong khoảng từ khoảng 20°C đến khoảng 300°C. Bước tôi ủ có thể được thực hiện trong các môi trường khí khác nhau ở áp suất xung quanh (ví dụ, khoảng 0,1 MPa (1 atm), tùy thuộc vào điều kiện môi trường khí và độ nâng cao) hoặc ở áp suất nhỏ hơn áp suất môi trường khí hoặc áp suất xung

quanh (ví dụ, từ khoảng 0,13 Pa đến khoảng 66,66 Pa (từ 1 mTorr đến 500 mTorr)). Môi trường khí dùng để tôi ủ có thể là không khí xung quanh, môi trường có kiểm soát độ ẩm (ví dụ, 0-100 g H₂O/m³ khí), argon tinh khiết, nitơ tinh khiết, oxy tinh khiết, hydro tinh khiết, heli tinh khiết, neon tinh khiết, krypton tinh khiết, CO₂ tinh khiết, hoặc dạng kết hợp bất kỳ của các khí nêu trên. Môi trường có kiểm soát độ ẩm có thể bao gồm môi trường trong đó độ ẩm tuyệt đối hoặc % độ ẩm tương đối được giữ ở giá trị cố định, hoặc trong đó độ ẩm tuyệt đối hoặc % độ ẩm tương đối thay đổi theo các điểm thiết đặt định trước hoặc chức năng định trước. Theo các phương án cụ thể, bước tôi ủ có thể diễn ra trong môi trường có kiểm soát độ ẩm có % độ ẩm tương đối lớn hơn hoặc bằng 0% và nhỏ hơn hoặc bằng 50%. Theo các phương án khác, bước tôi ủ có thể diễn ra trong môi trường có kiểm soát độ ẩm chứa lớn hơn hoặc bằng 0 g H₂O/m³ khí và nhỏ hơn hoặc bằng 20 g H₂O/m³ khí.

Sau khi tiền chất muối chì được lắng đọng, tiền chất muối thứ hai (ví dụ, formamidini iodua, formamidini thioxyanat, guanidini thioxyanat) có thể được lắng đọng lên màng mỏng muối chì, trong đó màng mỏng muối chì có thể có nhiệt độ khoảng bằng nhiệt độ xung quanh hoặc có nhiệt độ được kiểm soát nằm trong khoảng từ 0°C đến 500°C. Tiền chất muối thứ hai, theo một số phương án, có thể được lắng đọng ở nhiệt độ xung quanh hoặc ở nhiệt độ được nâng cao nằm trong khoảng từ khoảng 25°C đến 125°C. Tiền chất muối thứ hai có thể được lắng đọng bằng các phương pháp khác nhau đã biết trong lĩnh vực, bao gồm nhưng không giới hạn ở, phủ quay, in với đầu tạo hình khe hẹp, in phun mực, in lõm, in lưới, phún xạ, PE-CVD, làm bay hơi bằng nhiệt hoặc phủ phun. Bước lắng đọng tiền chất muối thứ hai có thể được thực hiện trong các môi trường khí khác nhau ở áp suất xung quanh (ví dụ, khoảng 0,1 MPa (1 atm), tùy thuộc vào điều kiện môi trường khí và độ nâng cao) hoặc ở áp suất nhỏ hơn áp suất môi trường khí hoặc áp suất xung quanh (ví dụ, từ khoảng 0,13 Pa đến khoảng 66,66 Pa (từ 1 mTorr đến 500 mTorr)). Môi trường khí dùng để lắng đọng có thể là không khí xung quanh, môi trường có kiểm soát độ ẩm (ví dụ, 0-100 g H₂O/m³ khí), argon tinh khiết, nitơ tinh khiết, oxy tinh khiết, hydro tinh khiết, heli tinh khiết, neon tinh khiết, krypton tinh khiết, CO₂ tinh khiết, hoặc dạng kết hợp bất kỳ của các khí nêu trên. Môi trường có kiểm soát độ ẩm có thể bao gồm môi trường trong đó độ ẩm tuyệt đối hoặc % độ ẩm tương đối được giữ ở giá trị

cố định, hoặc trong đó độ ẩm tuyệt đối hoặc % độ ẩm tương đối thay đổi theo các điểm thiết đặt định trước hoặc chức năng định trước. Theo các phương án cụ thể, bước lắng đọng có thể diễn ra trong môi trường có kiểm soát độ ẩm có % độ ẩm tương đối lớn hơn hoặc bằng 0% và nhỏ hơn hoặc bằng 50%. Theo các phương án khác, bước lắng đọng có thể diễn ra trong môi trường có kiểm soát độ ẩm chứa lớn hơn hoặc bằng 0 g H₂O/m³ khí và nhỏ hơn hoặc bằng 20 g H₂O/m³ khí.

Theo một số phương án, tiền chất muối thứ hai có thể là dung dịch chứa một hoặc nhiều dung môi. Ví dụ, tiền chất muối thứ hai có thể chứa một hoặc nhiều dung môi trong số N-xyclohexyl-2-pyrrolidon, alkyl-2-pyrrolidon, dimetylformamit, dialkylformamit, dimetylsulfoxit (dimethylsulfoxide, DMSO), axetonitril, metanol, etanol, propanol, butanol, tetrahydrofuran, formamit, tert-butylpyridin, pyridin, alkylpyridin, pyrrolidin, clobenzen, diclobenzen, diclometan, clorofom, ở dạng khô, và dạng kết hợp của chúng.

Sau khi lắng đọng tiền chất muối chì và tiền chất muối thứ hai, lớp nền có thể được tôi ủ. Việc tôi ủ lớp nền có thể chuyển hóa tiền chất muối chì và tiền chất muối thứ hai thành vật liệu perovskit (ví dụ, FAPbI₃, GAPb(SCN)₃, FASnI₃). Bước tôi ủ có thể được thực hiện trong các môi trường khí khác nhau ở áp suất xung quanh (ví dụ, khoảng 0,1 MPa (1 atm), tùy thuộc vào điều kiện môi trường khí và độ nâng cao) hoặc ở áp suất nhỏ hơn áp suất môi trường khí hoặc áp suất xung quanh (ví dụ, từ khoảng 0,13 Pa đến khoảng 66,66 Pa (từ 1 mTorr đến 500 mTorr)). Môi trường khí dùng để tôi ủ có thể là không khí xung quanh, môi trường có kiểm soát độ ẩm (ví dụ, 0-100 g H₂O/m³ khí), argon tinh khiết, nitơ tinh khiết, oxy tinh khiết, hydro tinh khiết, heli tinh khiết, neon tinh khiết, krypton tinh khiết, CO₂ tinh khiết, hoặc dạng kết hợp bất kỳ của các khí nêu trên. Môi trường có kiểm soát độ ẩm có thể bao gồm môi trường trong đó độ ẩm tuyệt đối hoặc % độ ẩm tương đối được giữ ở giá trị cố định, hoặc trong đó độ ẩm tuyệt đối hoặc % độ ẩm tương đối thay đổi theo các điểm thiết đặt định trước hoặc chức năng định trước. Theo các phương án cụ thể, bước tôi ủ có thể diễn ra trong môi trường có kiểm soát độ ẩm có % độ ẩm tương đối lớn hơn hoặc bằng 0% và nhỏ hơn hoặc bằng 50%. Theo các phương án khác, bước tôi ủ có thể diễn ra trong môi trường có kiểm soát độ ẩm chứa lớn hơn hoặc bằng 0 g H₂O/m³ khí và nhỏ hơn hoặc bằng 20 g H₂O/m³ khí. Theo một số phương án, bước tôi ủ có thể

diễn ra ở nhiệt độ lớn hơn hoặc bằng 50°C và nhỏ hơn hoặc bằng 300°C . Trừ khi được mô tả theo cách khác, bước tôi ủ hoặc lắng đọng bất kỳ nêu trong bản mô tả này đều có thể được thực hiện trong các điều kiện nêu trên.

Ví dụ, theo một phương án cụ thể, vật liệu perovskit FAPbI_3 có thể được tạo ra theo quy trình nêu dưới đây. Trước tiên, tiền chất chì (II) halogenua chứa tỷ lệ mol giữa PbI_2 và PbCl_2 là khoảng 90:10 được hòa tan trong DMF khan có thể được lắng đọng lên lớp nền bằng cách phủ quay hoặc in với đầu tạo hình khe hẹp. Mục tiền chất chì halogenua có thể được để khô trong môi trường khí về cơ bản không chứa nước, tức là, độ ẩm tương đối nhỏ hơn 30%, trong khoảng 1 giờ (+ 15 phút) để tạo ra màng mỏng. Sau đó, màng mỏng có thể được tôi ủ bằng nhiệt trong khoảng 10 phút ở nhiệt độ khoảng 50°C (+ 10°C). Theo các phương án khác, tiền chất chì halogenua có thể được lắng đọng bằng cách in phun mực, in lõm, in lưới, phún xạ, PE-CVD, lắng đọng lớp nguyên tử, làm bay hơi bằng nhiệt hoặc phủ phun. Tiếp theo, tiền chất formamidini iodua chứa formamidini iodua với nồng độ nằm trong khoảng từ 25 đến 60 mg/mL được hòa tan trong rượu isopropyllic khan có thể được lắng đọng lên màng mỏng chì halogenua bằng cách phủ quay hoặc in với đầu tạo hình khe hẹp. Theo các phương án khác, tiền chất formamidini iodua có thể được lắng đọng bằng cách in phun mực, in lõm, in lưới, phún xạ, PE-CVD, lắng đọng lớp nguyên tử, làm bay hơi bằng nhiệt hoặc phủ phun. Sau khi lắng đọng tiền chất chì halogenua và tiền chất formamidini iodua, lớp nền có thể được tôi ủ ở độ ẩm tương đối khoảng 25% (khoảng 4 đến 7 g $\text{H}_2\text{O}/\text{m}^3$ không khí) và khoảng 125°C đến 200°C để tạo ra vật liệu perovskit formamidini chì iodua (FAPbI_3).

Theo phương án khác, vật liệu perovskit có thể bao gồm $\text{C}'\text{CPbX}_3$, trong đó C' là một hoặc nhiều kim loại nhóm 1 (tức là, Li, Na, K, Rb, Cs). Theo một phương án cụ thể, C' có thể là xesi (Cs). Theo phương án khác, C' có thể là rubidi (Rb). Theo phương án khác, C' có thể là natri (Na). Theo phương án khác, C' có thể là kali (K). Theo các phương án khác nữa, vật liệu perovskit có thể bao gồm $\text{C}'_v\text{C}_w\text{Pb}_y\text{X}_z$, trong đó C' là một hoặc nhiều kim loại nhóm 1 và v, w, y và z là các số thực nằm trong khoảng từ 1 đến 20. Theo các phương án nhất định, vật liệu perovskit có thể được lắng đọng dưới dạng lớp hoạt động trong thiết bị PV bằng cách, ví dụ, đúc nhỏ giọt, đúc quay, phủ hoa văn lõm, phủ bằng dao, phủ hoa văn lõm ngược, in với đầu tạo

hình khe hẹp, in lưới hoặc in phun mực lên lớp nền bằng cách sử dụng các bước được mô tả dưới đây.

Trước tiên, dung dịch chì halogenua được tạo ra. Lượng chì halogenua có thể được cho vào bình khô sạch trong môi trường khí có kiểm soát. Chì halogenua thích hợp bao gồm, nhưng không giới hạn ở, chì (II) iodia, chì (II) bromua, chì (II) clorua và chì (II) florua. Chì halogenua có thể bao gồm một loại chì halogenua hoặc nó có thể bao gồm hỗn hợp chì halogenua với tỷ lệ chính xác. Theo một phương án, chì halogenua có thể bao gồm chì (II) iodia. Theo các phương án nhất định, hỗn hợp chì halogenua có thể chứa iodia, bromua, clorua hoặc florua với tỷ lệ bộ đôi, bộ ba và bộ bốn bất kỳ nằm trong khoảng từ 0,001 đến 100% mol. Theo một phương án, hỗn hợp chì halogenua có thể bao gồm chì (II) clorua và chì (II) iodia với tỷ lệ bằng khoảng 10:90 mol:mol. Theo các phương án khác, hỗn hợp chì halogenua có thể bao gồm chì (II) clorua và chì (II) iodia với tỷ lệ bằng khoảng 5:95, khoảng 7,5:92,5, hoặc khoảng 15:85 mol:mol.

Theo cách khác, các tiền chất muối chì khác có thể được sử dụng cùng với hoặc thay cho muối chì halogenua để tạo thành dung dịch muối chì. Tiền chất muối chì thích hợp có thể là dạng kết hợp bất kỳ của chì (II) hoặc chì (IV) và anion sau đây: nitrat, nitrit, carboxylat, axetat, format, oxalat, sulfat, sulfit, thiosulfat, phosphat, tetrafloroborat, hexaflorophosphat, tetra(perflorophenyl) borat, hydrua, oxit, peroxit, hydroxit, nitrua, arsenat, arsenit, perchlorat, cacbonat, bicarbonat, cromat, dicromat, iodat, bromat, clorat, clorit, hypoclorit, hypobromit, xyanua, xyanat, isoxyanat, fulminat, thioxyanat, isothioxyanat, azit, tetracacbonylcobaltat, carbamoyldixyanometanit, dixyanonitrosometanit, dixyanamit, trixyanometanit, amit và permanganat.

Dung dịch muối chì có thể còn chứa muối chì (II) hoặc chì (IV) với tỷ lệ mol nằm trong khoảng từ 0 đến 100% đối với các ion kim loại sau Be, Mg, Ca, Sr, Ba, Fe, Cd, Co, Ni, Cu, Ag, Au, Hg, Sn, Ge, Ga, Pb, In, Tl, Sb, Bi, Ti, Zn, Cd, Hg và Zr dưới dạng muối của các anion nêu trên.

Sau đó, dung môi có thể được thêm vào bình để hòa tan chì halogenua rắn để tạo thành dung dịch chì halogenua. Dung môi thích hợp bao gồm, nhưng không giới

hạn ở, N-xyclohexyl-2-pyrolidon, alkyl-2-pyrolidon, dimetylformamit (dimethylformamide, DMF), dialkylformamit, dimetylsulfoxit (dimethylsulfoxide, DMSO), axetonitril, metanol, etanol, propanol, butanol, tetrahydrofuran, formamit, tert-butylpyridin, pyridin, alkylpyridin, pyrolidin, clobenzen, diclobenzen, diclometan, clorofom, ở dạng khô, và dạng kết hợp của chúng. Theo một phương án, chất rắn chứa chì này được hòa tan trong dimetylformamit (dimethylformamide, DMF) khô. Chì halogenua rắn có thể được hòa tan ở nhiệt độ nằm trong khoảng từ khoảng 20°C đến khoảng 150°C. Theo một phương án, chì halogenua rắn được hòa tan ở khoảng 85°C. Chì halogenua rắn có thể được hòa tan trong khoảng thời gian cần thiết để tạo thành dung dịch, quá trình này có thể diễn ra trong khoảng thời gian lên tới khoảng 72 giờ. Dung dịch thu được tạo thành cơ sở của mực tiền chất chì halogenua. Theo một số phương án, mực tiền chất chì halogenua có thể có nồng độ chì halogenua nằm trong khoảng từ khoảng 0,001 M và khoảng 10 M. Theo một phương án, mực tiền chất chì halogenua có nồng độ chì halogenua bằng khoảng 1 M. Theo một số phương án, dung dịch chì halogenua có thể còn chứa axit amin (ví dụ, axit 5-aminovaleric, histidin, glyxin, lysin), axit amin hydrohalogenua (ví dụ, axit 5-amino valeric hydroclorua), chất làm thay đổi bề mặt IFL (SAM) (như các chất đã được mô tả ở trên trong bản mô tả này), hoặc dạng kết hợp của chúng.

Tiếp theo, dung dịch halogenua kim loại nhóm 1 được tạo ra. Lượng halogenua kim loại nhóm 1 có thể được cho vào bình khô sạch trong môi trường khí có kiểm soát. Halogenua kim loại nhóm 1 thích hợp bao gồm, nhưng không giới hạn ở, xesi iodua, xesi bromua, xesi clorua, xesi florua, rubidi iodua, rubidi bromua, rubidi clorua, rubidi florua, lithi iodua, lithi bromua, lithi clorua, lithi florua, natri iodua, natri bromua, natri clorua, natri florua, kali iodua, kali bromua, kali clorua, kali florua. Halogenua kim loại nhóm 1 có thể bao gồm một loại halogenua kim loại nhóm 1 hoặc nó có thể bao gồm hỗn hợp halogenua kim loại nhóm 1 với tỷ lệ chính xác. Theo một phương án, halogenua kim loại nhóm 1 có thể bao gồm xesi iodua. Theo phương án khác, halogenua kim loại nhóm 1 có thể bao gồm rubidi iodua. Theo phương án khác, halogenua kim loại nhóm 1 có thể bao gồm natri iodua. Theo phương án khác, halogenua kim loại nhóm 1 có thể bao gồm kali iodua.

Theo cách khác, các tiền chất muối kim loại nhóm 1 khác có thể được sử dụng cùng với hoặc thay cho muối halogenua kim loại nhóm 1 để tạo thành dung dịch muối kim loại nhóm 1. Tiền chất muối kim loại nhóm 1 thích hợp có thể bao gồm dạng kết hợp bất kỳ của các kim loại nhóm 1 và anion sau đây: nitrat, nitrit, carboxylat, axetat, format, oxalat, sulfat, sulfit, thiosulfat, phosphat, tetrafloroborat, hexaflorophosphat, tetra(perflorophenyl) borat, hydrua, oxit, peroxit, hydroxit, nitrua, arsenat, arsenit, perchlorat, cacbonat, bicacbonat, cromat, dicromat, iodat, bromat, clorat, clorit, hypoclorit, hypobromit, xyanua, xyanat, isoxyanat, fulminat, thioxyanat, isothioxyanat, azit, tetracacbonylcobaltat, carbamoyldixyanometanit, dixyanonitrosometanit, dixyanamit, trixyanometanit, amit và permanganat.

Sau đó, dung môi có thể được thêm vào bình để hòa tan halogenua kim loại nhóm 1 rắn để tạo thành dung dịch halogenua kim loại nhóm 1. Dung môi thích hợp bao gồm, nhưng không giới hạn ở, N-xyclohexyl-2-pyrolidon, alkyl-2-pyrolidon, dimetylformamit (dimethylformamide, DMF), dialkylformamit, dimetylsulfoxit (dimethylsulfoxide, DMSO), axetonitril, metanol, etanol, propanol, butanol, tetrahydrofuran, formamit, tert-butylpyridin, pyridin, alkylpyridin, pyrolidin, clobenzen, diclobenzen, diclometan, clorofom, ở dạng khô, và dạng kết hợp của chúng. Theo một phương án, chất rắn chứa chì này được hòa tan trong dimetylsulfoxit (dimethylsulfoxide, DMSO) khô. Halogenua kim loại nhóm 1 rắn có thể được hòa tan ở nhiệt độ nằm trong khoảng từ khoảng 20°C đến khoảng 150°C. Theo một phương án, các chất rắn halogenua kim loại nhóm 1 được hòa tan ở nhiệt độ phòng (tức là khoảng 25°C). Halogenua kim loại nhóm 1 rắn có thể được hòa tan trong khoảng thời gian cần thiết để tạo thành dung dịch, quá trình này có thể diễn ra trong khoảng thời gian lên tới khoảng 72 giờ. Dung dịch thu được tạo thành dung dịch halogenua kim loại nhóm 1. Theo một số phương án, dung dịch halogenua kim loại nhóm 1 có thể có nồng độ halogenua kim loại nhóm 1 nằm trong khoảng từ khoảng 0,001 M và khoảng 10 M. Theo một phương án, dung dịch halogenua kim loại nhóm 1 có nồng độ halogenua kim loại nhóm 1 bằng khoảng 1 M. Theo một số phương án, dung dịch halogenua kim loại nhóm 1 có thể còn chứa axit amin (ví dụ, axit 5-aminovaleric, histidin, glyxin, lysin), axit amin hydrohalogenua (ví dụ, axit 5-amino

valeric hydroclorua), chất làm thay đổi bề mặt IFL (SAM) (như các chất đã được mô tả ở trên trong bản mô tả này), hoặc dạng kết hợp của chúng.

Tiếp theo, dung dịch chì halogenua và dung dịch halogenua kim loại nhóm 1 được trộn để tạo ra mực tiền chất màng mỏng. Dung dịch chì halogenua và dung dịch halogenua kim loại nhóm 1 có thể được trộn theo tỷ lệ sao cho mực tiền chất màng mỏng tạo thành có nồng độ mol của halogenua kim loại nhóm 1 bằng từ 0% đến 25% của nồng độ mol của chì halogenua. Theo các phương án cụ thể, mực tiền chất màng mỏng có thể có nồng độ mol của halogenua kim loại nhóm 1 bằng 1% của nồng độ mol của chì halogenua. Theo các phương án cụ thể, mực tiền chất màng mỏng có thể có nồng độ mol của halogenua kim loại nhóm 1 bằng 5% của nồng độ mol của chì halogenua. Theo các phương án cụ thể, mực tiền chất màng mỏng có thể có nồng độ mol của halogenua kim loại nhóm 1 bằng 10% của nồng độ mol của chì halogenua. Theo các phương án cụ thể, mực tiền chất màng mỏng có thể có nồng độ mol của halogenua kim loại nhóm 1 bằng 15% của nồng độ mol của chì halogenua. Theo các phương án cụ thể, mực tiền chất màng mỏng có thể có nồng độ mol của halogenua kim loại nhóm 1 bằng 20% của nồng độ mol của chì halogenua. Theo các phương án cụ thể, mực tiền chất màng mỏng có thể có nồng độ mol của halogenua kim loại nhóm 1 bằng 25% của nồng độ mol của chì halogenua. Theo một số phương án, dung dịch chì halogenua và dung dịch halogenua kim loại nhóm 1 có thể được khuấy hoặc khuấy mạnh trong hoặc sau khi trộn.

Sau đó, mực tiền chất màng mỏng có thể được lắng đọng lên lớp nền mong muốn. Lớp nền thích hợp có thể bao gồm lớp bất kỳ trong số các lớp nền đã được nêu ở trên trong bản mô tả này. Như đã lưu ý ở trên, mực tiền chất màng mỏng có thể được lắng đọng bằng nhiều cách khác nhau, bao gồm nhưng không giới hạn ở, đúc nhỏ giọt, đúc quay, phủ hoa văn lốm, phủ bằng dao, phủ hoa văn lốm ngược, in với đầu tạo hình khe hẹp, in lưới hoặc in phun mực. Theo các phương án nhất định, mực tiền chất màng mỏng có thể được phủ quay lên lớp nền với tốc độ nằm trong khoảng từ khoảng 500 vòng/phút đến khoảng 10000 vòng/phút trong khoảng thời gian từ khoảng 5 giây đến khoảng 600 giây. Theo một phương án, mực tiền chất màng mỏng có thể được phủ quay lên lớp nền với tốc độ bằng khoảng 3000 vòng/phút trong khoảng 30 giây. Mực tiền chất màng mỏng có thể được lắng đọng lên lớp nền ở môi

trường khí xung quanh trong khoảng độ ẩm tương đối từ khoảng 0% đến khoảng 50%. Sau đó, mực tiền chất màng mỏng có thể được để khô trong môi trường khí về cơ bản không chứa nước, tức là, độ ẩm tương đối nhỏ hơn 30% hoặc $7 \text{ g H}_2\text{O/m}^3$, để tạo ra màng mỏng.

Sau đó, màng mỏng có thể được tôi ủ bằng nhiệt trong khoảng thời gian lên tới khoảng 24 giờ ở nhiệt độ nằm trong khoảng từ khoảng 20°C đến khoảng 300°C . Theo một phương án, màng mỏng có thể được tôi ủ bằng nhiệt trong khoảng 10 phút ở nhiệt độ khoảng 50°C . Sau đó, lớp hoạt động chứa vật liệu perovskit có thể được hoàn thiện bằng quy trình chuyển hóa trong đó màng tiền chất được ngâm chìm hoặc được tráng rửa bằng dung dịch chứa dung môi hoặc hỗn hợp dung môi (ví dụ, DMF, isopropanol, metanol, etanol, butanol, clorofom, clobenzen, dimetylsulfoxit, nước) và muối (ví dụ, metylamoni iodua, formamidini iodua, guanidini iodua, 1,2,2-triaminovinylamoni iodua, axit 5-aminovaleric hydroiodua) với nồng độ nằm trong khoảng từ 0,001 M đến 10 M. Theo các phương án nhất định, màng mỏng vật liệu perovskit có thể còn được tôi ủ sau đó bằng nhiệt theo cách giống như nêu trong dòng đầu tiên của đoạn này.

Theo một số phương án, dung dịch muối có thể được tạo ra bằng cách cho muối vào bình khô sạch trong môi trường khí có kiểm soát. Muối thích hợp bao gồm, nhưng không giới hạn ở, metylamoni iodua, formamidini iodua, guanidini iodua, imidazoli iodua, eten tetramin iodua, 1,2,2-triaminovinylamoni iodua và axit 5-aminovaleric hydroiodua. Các muối thích hợp khác có thể bao gồm cation hữu cơ bất kỳ được mô tả ở trên trong phần có tiêu đề là “vật liệu perovskit”. Muối có thể bao gồm một loại muối hoặc nó có thể bao gồm hỗn hợp muối với tỷ lệ chính xác. Theo một phương án, muối có thể bao gồm metylamoni iodua. Theo phương án khác, muối có thể bao gồm formamidini iodua. Tiếp theo, dung môi có thể được thêm vào bình để hòa tan muối rắn để tạo thành dung dịch muối. Dung môi thích hợp bao gồm, nhưng không giới hạn ở, DMF, axetonitril, isopropanol, metanol, etanol, butanol, clorofom, clobenzen, dimetylsulfoxit, nước, và dạng kết hợp của chúng. Theo một phương án, muối formamidini iodua rắn được hòa tan trong isopropanol. Muối rắn có thể được hòa tan ở nhiệt độ nằm trong khoảng từ khoảng 20°C đến khoảng 150°C . Theo một phương án, muối rắn được hòa tan ở nhiệt độ phòng (tức là khoảng 25°C). Muối rắn

có thể được hòa tan trong khoảng thời gian cần thiết để tạo thành dung dịch, quá trình này có thể diễn ra trong khoảng thời gian lên tới khoảng 72 giờ. Dung dịch thu được tạo thành dung dịch muối. Theo một số phương án, dung dịch muối có thể có nồng độ muối nằm trong khoảng từ khoảng 0,001 M và khoảng 10 M. Theo một phương án, dung dịch muối có nồng độ muối bằng khoảng 1 M.

Ví dụ, bằng cách sử dụng quy trình được mô tả ở trên với dung dịch chì (II) iodua, dung dịch xesi iodua, và dung dịch muối metylamoni (methylammonium, MA) iodua có thể tạo ra vật liệu perovskit có công thức $Cs_iMA_{1-i}PbI_3$, trong đó i nằm trong khoảng giữa 0 và 1. Theo ví dụ khác, bằng cách sử dụng dung dịch chì (II) iodua, dung dịch rubidi iodua, và dung dịch muối formamidini (FA) iodua có thể tạo ra vật liệu perovskit có công thức $Rb_iFA_{1-i}PbI_3$, trong đó i là số nằm trong khoảng giữa 0 và 1. Theo ví dụ khác, bằng cách sử dụng dung dịch chì (II) iodua, dung dịch xesi iodua, và dung dịch muối formamidini (FA) iodua có thể tạo ra vật liệu perovskit có công thức $Cs_iFA_{1-i}PbI_3$, trong đó i là số nằm trong khoảng giữa 0 và 1. Theo ví dụ khác, bằng cách sử dụng dung dịch chì (II) iodua, dung dịch kali iodua, và dung dịch muối formamidini (FA) iodua có thể tạo ra vật liệu perovskit có công thức $K_iFA_{1-i}PbI_3$, trong đó i là số nằm trong khoảng giữa 0 và 1. Theo ví dụ khác, việc sử dụng dung dịch chì (II) iodua, dung dịch natri iodua, và dung dịch muối formamidini (FA) iodua có thể tạo ra vật liệu perovskit có công thức $Na_iFA_{1-i}PbI_3$, trong đó i là số nằm trong khoảng giữa 0 và 1. Theo ví dụ khác, việc sử dụng dung dịch hỗn hợp chì (II) iodua-chì (II) clorua, dung dịch xesi iodua, và dung dịch muối formamidini (FA) iodua có thể tạo ra vật liệu perovskit có công thức $Cs_iFA_{1-i}PbI_{3-y}Cl_y$, trong đó i là số nằm trong khoảng giữa 0 và 1 và y là số nằm trong khoảng giữa 0 và 3.

Theo một phương án cụ thể, dung dịch chì halogenua như được mô tả ở trên có thể có tỷ lệ giữa PbI_2 và $PbCl_2$ là 90:10 tính theo mol. Dung dịch xesi iodua (CsI) có thể được thêm vào dung dịch chì halogenua theo phương pháp được mô tả ở trên để tạo ra mực tiền chất màng mỏng chứa CsI với nồng độ là 10% mol. Vật liệu perovskit $FAPbI_3$ có thể được tạo ra theo phương pháp được mô tả ở trên bằng cách sử dụng dung dịch tiền chất màng mỏng này. Việc thêm ion xesi vào thông qua dung dịch CsI như được mô tả ở trên có thể làm cho các anion clorua và các nguyên tử xesi kết hợp vào mạng tinh thể $FAPbI_3$. Điều này có thể gây ra mức độ co mạng lớn hơn so với

việc thêm ion xesi hoặc rubidi như được mô tả ở trên mà không thêm ion clorua. Bảng 1 dưới đây thể hiện các thông số mạng của vật liệu perovskit FAPbI_3 với 10% mol rubidi và 20% mol clorua (ví dụ, 10% mol PbCl_2), 10% mol xesi và 10% mol xesi với 20% mol clorua, trong đó nồng độ % mol thể hiện nồng độ của chất phụ gia đối với nguyên tử chì trong dung dịch chì halogenua. Như có thể thấy trong bảng 1, vật liệu perovskit FAPbI_3 có thêm xesi và clorua có các thông số mạng nhỏ hơn hai mẫu vật liệu perovskit còn lại.

Bảng 1

Thông tin chi tiết về mẫu	(001) Khoảng cách d	(002) Khoảng cách d
10% mol RbI + 10% mol PbCl_2	6,3759 (15)	3,1822 (5)
10% mol CsI + 0% mol PbCl_2	6,3425 (13)	3,1736 (8)
10% mol CsI + 10% mol PbCl_2	6,3272 (13)	3,1633 (4)

Ngoài ra, dữ liệu thể hiện rằng vật liệu perovskit FAPbI_3 được thêm rubidi, xesi và/hoặc clorua có cấu trúc hình khối Pm3-m . Perovskit FAPbI_3 với lên tới và bao gồm 10% mol Rb và 10% mol Cl , hoặc 10% mol Cs , hoặc 10% mol Cs và 10% mol Cl được thấy là duy trì cấu trúc tinh thể hình khối Pm3-m hình khối. Fig.29 thể hiện các đồ thị nhiễu xạ tia X tương ứng với mỗi trong số các mẫu được trình bày trong bảng 1. Các bảng từ 2 đến 4 thể hiện các đỉnh nhiễu xạ tia X và mật độ đối với ba vật liệu perovskit được thể hiện trong bảng 1. Dữ liệu được thu thập ở điều kiện môi trường xung quanh trên Rigaku Miniflex 600 bằng cách sử dụng nguồn bức xạ $\text{Cu K}\alpha$ ở tốc độ quét là 1,5 độ 2θ /phút.

Bảng 2

10% mol RbI + 10% mol PbCl ₂			
2-theta (độ)	d (angstrom)	Độ cao (cps)	Mật độ đỉnh (pha, chỉ số Miller)
			PbI ₂ , (001)
13,878 (3)	6,3759 (15)	12605 (126)	Perovskit, (001)
19,707 (15)	4,501 (3)	489 (25)	Perovskit, (011)
21,320 (14)	4,164 (3)	286 (19)	ITO, (112)
24,227 (19)	3,671 (3)	1022 (36)	Perovskit, (111)
28,017 (4)	3,1822 (5)	5683 (84)	Perovskit, (002)
30,13 (4)	2,964 (4)	344 (21)	ITO, (112)
31,403 (14)	2,8464 (13)	913 (34)	Perovskit, (012)

Bảng 3

10% mol CsI & 0% mol PbCl ₂			
2-theta (độ)	d (angstrom)	Độ cao (cps)	Mật độ đỉnh pha (chỉ số Miller)
12,614 (14)	7,012 (8)	99 (11)	PbI ₂ , (001)
13,952 (3)	6,3425 (13)	4921 (78)	Perovskit, (001)
19,826 (12)	4,475 (3)	392 (22)	Perovskit, (011)
21,274 (14)	4,173 (3)	281 (19)	ITO, (112)
24,333 (15)	3,655 (2)	1031 (36)	Perovskit, (111)
28,094 (7)	3,1736 (8)	2332 (54)	Perovskit, (002)
30,15 (4)	2,962 (4)	364 (21)	ITO, (112)
31,531 (12)	2,8351 (10)	941 (34)	Perovskit, (012)

Bảng 4

10% mol CsI & 10% mol PbCl ₂			
2-theta (độ)	d (angstrom)	Độ cao (cps)	Mật độ đỉnh pha (chỉ số Miller)
12,635 (6)	7,000 (3)	395 (22)	PbI ₂ , (001)
13,985 (3)	6,3272 (13)	13692 (131)	Perovskit, (001)
19,867 (11)	4,465 (2)	807 (32)	Perovskit, (011)
21,392 (13)	4,150 (2)	254 (18)	ITO, (112)
24,41 (2)	3,643 (3)	918 (34)	Perovskit, (111)
28,188 (4)	3,1633 (4)	6797 (92)	Perovskit, (002)
30,14 (4)	2,963 (4)	348 (21)	ITO, (112)
31,633 (15)	2,8262 (13)	1027 (36)	Perovskit, (012)

Đồ thị nhiễu xạ tia X dự kiến theo hình học của vật liệu Pm3-m hình khối với hằng số mạng = 6,3375Å dưới bức xạ Cu-K α được thể hiện trong bảng 5. Như có thể thấy từ dữ liệu này, mỗi vật liệu perovskit được tạo ra với 10% mol Rb và 10% mol Cl, 10% mol Cs, và 10% Cs và 10% Cl đều có đồ thị nhiễu xạ phù hợp với đồ thị dự kiến của vật liệu perovskit Pm3-m hình khối.

Bảng 5

Đồ thị nhiễu xạ dự kiến theo hình học của Pm3-m hình khối, hằng số mạng = 6,3375Å; bức xạ Cu-K α		
2-Theta (độ)	Khoảng cách d (angstrom)	Chỉ số Miller
13,963	6,3375	(0 0 1)
19,796	4,4813	(0 1 1)
24,306	3,659	(1 1 1)
28,138	3,1688	(0 0 2)
31,541	2,8342	(0 1 2)

Perovskit cải tiến

Các perovskit được gọi là perovskit 2D "phân lớp" được biết là tạo thành khi perovskit được tạo công thức với cation hữu cơ có chuỗi alkyl dài hơn so với cation

metylamoni và formamidini được nêu ở trên trong bản mô tả này. Perovskit 2D phân lớp bao gồm các cấu trúc như pha Ruddlesden-Popper, pha Dion-Jacobson và pha Aurivillius. Ví dụ, bằng cách thế 1-butylamoni thay cho metylamoni hoặc các cation khác được mô tả ở trên, trong quá trình tạo ra perovskit trong phương pháp "một bước" (không được nêu trong bản mô tả này), có thể tạo ra perovskit 2D Ruddlesden-Popper. Trong perovskit này, 1-butylamoni ngăn không cho perovskit tạo thành mạng kết tinh đầy đủ, và thay vào đó làm cho perovskit tạo thành ở dạng "phiến" perovskit có cấu trúc tinh thể đơn theo độ dày. Fig.5 minh họa cấu trúc của perovskit Ruddlesden-Popper 5500 với cation 1-butylamoni 5510. Như có thể thấy từ Fig.5, "đuôi" của cation butylamoni 5510 gây ra sự phân tách giữa phần chì và phần iodua của vật liệu perovskit và các cấu trúc chì và iodua khác, tạo ra "phiến" perovskit 2D. Theo đó, việc đưa cation "hữu cơ cỡ lớn", như 1-butylamoni hoặc benzylamoni, vào trong quá trình tạo ra vật liệu perovskit có thể là không mong muốn nếu dạng Ruddlesden-Popper của perovskit không được mong muốn.

Tuy nhiên, việc thêm một lượng loãng của dung dịch 1-butylamoni trước khi tôi ủ vật liệu perovskit có thể tạo ra perovskit như được thể hiện trên Fig.6. Fig.6 minh họa một phương án của vật liệu perovskit 2000 có thêm cation alkyl amoni để làm thụ động hóa bề mặt. Theo phương án được minh họa, bề mặt của vật liệu perovskit formamidini chì iodua (FAPbI₃) 2010 được thể hiện với cation 1-butylamoni 2020 ở bề mặt. Cation 1-butylamoni, hoặc các cation hữu cơ "cỡ lớn" khác như được nêu trong bản mô tả này, có thể khuếch tán vào vật liệu perovskit gần bề mặt của mạng tinh thể vật liệu perovskit, theo một số phương án. Theo các phương án cụ thể, cation 1-butylamoni, hoặc các cation hữu cơ "cỡ lớn" khác như được nêu trong bản mô tả này, có thể nằm ở phạm vi 50 nm hoặc nhỏ hơn trong vật liệu perovskit tính từ bề mặt mạng tinh thể hoặc biên hạt. Việc bao gồm cation hữu cơ "cỡ lớn", như 1-butylamoni, gần hoặc tại bề mặt của vật liệu perovskit có thể tạo ra công thức của vật liệu perovskit lệch với hệ số tỷ lệ "lý tưởng" của vật liệu perovskit nêu trong bản mô tả này. Ví dụ, việc bao gồm cation hữu cơ như vậy có thể làm cho vật liệu perovskit có công thức dưới tỷ lệ (substoichiometric) hoặc siêu tỷ lệ (superstoichiometric) đối với công thức CMX₃ nêu trong bản mô tả này. Trong trường hợp này, công thức tổng quát cho vật liệu perovskit có thể được thể hiện là C_xM_yX_z,

trong đó x, y và z là các số thực. Theo một số phương án, vật liệu perovskit có thể có công thức $C'_{2n-1}M_nX_{3n+1}$, trong đó n là số nguyên. Ví dụ, khi $n=1$, vật liệu perovskit có thể có công thức C'_2MX_4 , khi $n=2$, vật liệu perovskit có thể có công thức $C'_2CM_2X_7$, khi $n=3$, vật liệu perovskit có thể có công thức $C'_2C_2M_3X_{10}$, khi $n=4$, vật liệu perovskit có thể có công thức $C'_2C_3M_4X_{13}$, và tương tự. Như được minh họa bởi Fig.30, giá trị n thể hiện độ dày của mạng con halogenua kim loại vô cơ của vật liệu perovskit. Pha vật liệu perovskit có công thức $C'_{2n-1}M_nX_{3n+1}$ có thể hình thành ở vùng mà cation hữu cơ cỡ lớn khuếch tán vào, hoặc theo cách khác là đi vào, mạng tinh thể của vật liệu perovskit. Ví dụ, pha như vậy có thể tồn tại trong vòng 50 nm của bề mặt mạng tinh thể (ví dụ, bề mặt hoặc biên hạt) của vật liệu perovskit mà đã được tạo ra bao gồm cation hữu cơ cỡ lớn như được nêu trong bản mô tả này.

“Đuôi” cacbon của ion 1-butyl amoni có thể tạo ra tính chất bảo vệ đối với bề mặt của perovskit bằng cách giữ các phân tử khác cách xa bề mặt một cách hiệu quả. Theo một số phương án, “đuôi” nhóm alkyl của ion 1-butyl amoni có thể được định hướng ra khỏi hoặc song song với bề mặt của vật liệu perovskit. Cụ thể, “đuôi” của 1-butylamoni có tính chất kỵ nước, ngăn không cho các phân tử nước tiếp xúc với bề mặt của perovskit và bảo vệ bề mặt của vật liệu perovskit 2010 khỏi nước trong môi trường. Ngoài ra, cation 1-butylamoni cũng có thể hoạt động để làm thụ động hóa bề mặt và biên hạt hoặc khiếm khuyết bất kỳ với vật liệu perovskit 2010. Thụ động hóa chỉ tính chất điện mà ngăn chặn sự tích tụ điện tích hoặc “trạng thái bẫy” ở bề mặt hoặc biên hạt của vật liệu perovskit 2010. Bằng cách hoạt động để làm thụ động hóa các phần của vật liệu perovskit 2010, 1-butylamoni có thể tạo điều kiện cải thiện sự vận chuyển điện tích vào và ra khỏi vật liệu perovskit 2010 và cải thiện các tính chất điện của lớp quang hoạt.

Theo một số phương án, các cation hữu cơ khác có thể được sử dụng thay cho, hoặc kết hợp với, 1-butylamoni. Ví dụ về các cation hữu cơ “cỡ lớn” khác mà có thể hoạt động để làm thụ động hóa bề mặt của vật liệu perovskit, bao gồm, nhưng không giới hạn ở, etylamoni, propylamoni, n-butylamoni; perylen n-butylamin-imit; butan-1,4-diamoni; 1-pentylamoni; 1-hexylamoni; poly(vinylamoni); phenyletylamoni; benzylamoni; 3-phenyl-1-propylamoni; 4-phenyl-1-butylamoni; 1,3-dimethylbutylamoni; 3,3-dimethylbutylamoni; 1-heptylamoni; 1-octylamoni; 1-

nonylamoni; 1-dexylamoni và 1-icosanyl amoni. Ngoài ra, cation hữu cơ cỡ lớn có đuôi chứa một hoặc nhiều nguyên tử khác loại ngoài gốc cation, nguyên tử khác loại này có thể phối hợp với, liên kết với hoặc kết hợp với mạng tinh thể vật liệu perovskit. Nguyên tử khác loại có thể là nguyên tử bất kỳ ở đuôi mà không phải là hydro hoặc cacbon, bao gồm nitơ, lưu huỳnh, oxy hoặc phospho.

Các ví dụ khác về cation hữu cơ “cỡ lớn” có thể bao gồm các phân tử được tạo chức với nhóm amoni, nhóm phosphoni hoặc nhóm cation khác mà có thể kết hợp vào vị trí C của bề mặt của vật liệu perovskit sau đây: benzen, pyridin, naphtalen, antraxen, xanten, phenathren, tetraxen, chrysen, tetraphen, benzo[c]phenathren, triphenylen, pyren, perylen, corannulen, coronen, dicarboxylic imit được thế, anilin, N-(2-aminoethyl)-2-isoindol-1,3-dion, 2-(1-aminoethyl)naphtalen, 2-triphenylen-O-ethylamin ete, benzylamin, muối benzylamoni, N-n-butyl-N'-4-aminobutylperylene-3,4,9,10-bis(dicarboximit), 1-(4-alkylphenyl)metanamin, 1-(4-alkyl-2-phenyl)etanamin, 1-(4-alkylphenyl)metanamin, 1-(3-alkyl-5-alkylphenyl)metanamin, 1-(3-alkyl-5-alkyl-2-phenyl)etanamin, 1-(4-alkyl-2-phenyl)etanamin, 2-ethylamin-7-alkyl-naphtalen, 2-ethylamin-6-alkyl-naphtalen, 1-ethylamin-7-alkyl-naphtalen, 1-ethylamin-6-alkyl-naphtalen, 2-methylamin-7-alkyl-naphtalen, 2-methylamin-6-alkyl-naphtalen, 1-methylamin-7-alkyl-naphtalen, 1-methylamin-6-alkyl-naphtalen, N-n-aminoalkyl-N'-4-aminobutylperylene-3,4,9,10-bis(dicarboximit), 1-(3-butyl-5-metoxylbutylphenyl)metanamin, 1-(4-pentylphenyl)metanamin, 1-[4-(2-methylpentyl)-2-phenyl]etanamin, 1-(3-butyl-5-pentyl-2-phenyl)etanamin, 2-(5-[4-methylpentyl]-2-naphtyl)etanamin, N-7-tridexyl-N'-4-aminobutylperylene-3,4,9,10-bis(dicarboximit), N-n-heptyl-N'-4-aminobutylperylene-3,4,9,10-bis(dicarboximit), 2-(6-[3-metoxylpropyl]-2-naphtyl)etanamin. Các hình vẽ từ Fig.17 đến Fig.28 minh họa cấu trúc của các phân tử hữu cơ này theo các phương án nhất định. Tham chiếu đến Fig.17 và Fig.18, mỗi “nhóm R”, R_x có thể là nhóm bất kỳ trong số H, R', Me, Et, Pr, Ph, Bz, F, Cl, Br, I, NO₂, OR', NR'₂, SCN, CN, N₃, SR', trong đó R' có thể là chuỗi alkyl, alkenyl hoặc alkynyl bất kỳ. Ngoài ra, ít nhất một trong số các nhóm R_x được minh họa có thể là $(CH_2)_nEX_y$ hoặc $(CH_2)_nC(EX_y)_2$ trong đó n và $y = 0, 1, 2$, hoặc lớn hơn, n và y có thể bằng hoặc không bằng, E được chọn từ nhóm bao gồm C, Si, O, S, Se, Te, N,

P, As, hoặc B, và X là halogenua hoặc halogenua giả như F, Cl, Br, I, CN, hoặc H. Ngoài ra, liên quan đến Fig.19, các phân tử được minh họa có thể bao gồm hydrohalogenua bất kỳ của mỗi amin được minh họa, ví dụ, muối benzylamoni, trong đó nhóm X được minh họa có thể là F, Cl, Br, I, SCN, CN hoặc halogenua giả khác bất kỳ. Các anion không phải halogenua có thể chấp nhận được khác có thể bao gồm: nitrat, nitrit, carboxylat, axetat, axetonyl axetonat, format, oxalat, sulfat, sulfít, thiosulfat, phosphat, tetrafloroborat, hexaflorophosphat, tetra(perflorophenyl) borat, hydrua, oxit, peroxit, hydroxit, nitrua, arsenat, arsenit, perchlorat, cacbonat, bicarbonat, cromat, dicromat, iodat, bromat, clorat, clorit, hypoclorit, hypobromit, xyanua, xyanat, isoxyanat, fulminat, thioxyanat, isothioxyanat, azit, tetracacbonylcobaltat, carbamoyldixyanometanit, dixyanonitrosometanit, dixyanamit, trixyanometanit, amit và permanganat. Nhóm R thích hợp có thể còn bao gồm, nhưng không giới hạn ở: hydro, nhóm metyl, etyl, propyl, butyl, pentyl hoặc đồng phân của chúng; alkan, alken hoặc alkyn C_xH_y bất kỳ, trong đó $x = 1-20$, $y = 1-42$, mạch vòng, mạch nhánh hoặc mạch thẳng; alkyl halogenua, $C_xH_yX_z$, $x = 1-20$, $y = 0-42$, $z = 1-42$, $X = F, Cl, Br$ hoặc I ; nhóm thơm bất kỳ (ví dụ, phenyl, alkylphenyl, alkoxyphenyl, pyridin, naphthalen); phức chất dạng vòng trong đó ít nhất một nitơ được chứa trong vòng (ví dụ, pyridin, pyrol, pyrrolidin, piperidin, tetrahydroquinolin); nhóm chứa lưu huỳnh bất kỳ (ví dụ, sulfoxit, thiol, alkyl sulfua); nhóm chứa nitơ bất kỳ (nitroxit, amin); nhóm chứa phospho bất kỳ (phosphat); nhóm chứa bo bất kỳ (ví dụ, axit boronic); axit hữu cơ bất kỳ (ví dụ, axit axetic, axit propanoic); và dẫn xuất este hoặc amit của chúng; axit amin bất kỳ (ví dụ, glyxin, xystein, prolin, axit glutamic, arginin, serin, histidin, axit 5-amonivaleric) bao gồm dẫn xuất alpha, beta, gamma và dẫn xuất lớn hơn; nhóm chứa silic bất kỳ (ví dụ, siloxan); và alkoxy hoặc nhóm bất kỳ, $-OC_xH_y$, trong đó $x = 0-20$, $y = 1-42$.

Ngoài ra, theo một số phương án, cation hữu cơ cỡ lớn có thể làm thụ động hóa biên hạt và khiếm khuyết bề mặt ở vật liệu perovskit. Fig.7 minh họa một phương án ví dụ của lớp vật liệu perovskit 3000 với 1-butylamoni 3020 làm thụ động hóa cả bề mặt và biên hạt 3015 của vật liệu perovskit cỡ lớn 3010. Như được mô tả ở trên, đuôi alkyl của các ion này cũng có thể tạo ra lớp kỵ nước mà đẩy nước và các gốc phân cực khác và cản trở các gốc này không chạm tới bề mặt của vật liệu perovskit. Như

có thể thấy trên Fig.7, “đuôi” của các cation hữu cơ cỡ lớn này có thể không liên kết hóa học (ví dụ, liên kết theo cách cộng hóa trị hoặc ion) với bề mặt hoặc biên hạt 3015 của lớp vật liệu perovskit 3000. Trong bản mô tả này, “đuôi” của cation hữu cơ cỡ lớn bất kỳ chỉ cấu trúc cacbon không phải ion của cation hữu cơ cỡ lớn. Ví dụ, đuôi của 1-butylamoni là nhóm butyl và đuôi của benzylamoni là nhóm benzyl.

Đuôi của cation hữu cơ cỡ lớn có thể còn có các cách bố trí khác đối với bề mặt hoặc biên hạt của vật liệu perovskit. Nói chung, “đầu” cation của cation hữu cơ cỡ lớn sẽ không khuếch tán nhiều hơn 50 nm qua bề mặt hoặc biên hạt của vật liệu perovskit. Đuôi có thể tương tác yếu với vật liệu perovskit và được định hướng ra khỏi bề mặt hạt tinh thể vật liệu perovskit. Đuôi có thể có tương tác liên phân tử (ví dụ, liên kết lưỡng cực-lưỡng cực hoặc liên kết hydro) với bề mặt hạt tinh thể vật liệu perovskit, tạo ra kết cấu trong đó đuôi được định hướng về phía bề mặt hạt tinh thể vật liệu perovskit. Theo một số phương án, đuôi của một số cation hữu cơ cỡ lớn có mặt trong vật liệu perovskit có thể không tương tác với bề mặt hoặc biên hạt của vật liệu perovskit và đuôi của các cation hữu cơ cỡ lớn khác trong vật liệu perovskit có thể tương tác với bề mặt hoặc biên hạt của vật liệu perovskit. Đuôi có thể bao gồm nguyên tử khác loại hoặc anion (tức là, ion lưỡng tính) với ít nhất một cặp đơn điện tử mà có thể tương tác theo cách cộng hóa trị (ví dụ, liên kết cộng hóa trị phối trí) với bề mặt hạt tinh thể vật liệu perovskit thông qua nguyên tử kim loại (ví dụ, Pb, Sn, Ge, In, Bi, Cu, Ag, Au) có mặt trong vật liệu perovskit này. Đuôi có thể còn bao gồm gốc cation, như diamoni butan như được nêu trong bản mô tả này, mà có thể kết hợp vào vật liệu perovskit bằng cách thế trên ít nhất hai vị trí cation “C” (như formamidini). Đuôi bao gồm gốc cation có thể còn nối hai lớp của vật liệu perovskit 2D, nằm hướng về bề mặt hạt tinh thể vật liệu perovskit, hoặc định hướng ra khỏi bề mặt hạt tinh thể vật liệu perovskit theo cách tương tự như cách được mô tả đối với đuôi không ion. Theo phương án khác, cation hữu cơ cỡ lớn có đuôi đủ lớn, như cation imidazoli, có thể chỉ đơn giản là nằm trên bề mặt perovskit hoặc biên hạt mà không khuếch tán vào vật liệu perovskit.

Ngoài ra, theo các phương án khác, cation hữu cơ cỡ lớn với nhóm đuôi có chiều dài và kích thước thay đổi có thể được cấp lên perovskit để làm thụ động hóa biên hạt và khiếm khuyết bề mặt ở vật liệu perovskit. Fig.8 minh họa một phương án ví dụ

của lớp vật liệu perovskit 4000 với dạng kết hợp của 1-butylamoni 4020, 1-nonylamoni 4021, 1-heptylamoni 4022 và 1-hexyl amoni 4023 làm thụ động hóa cả bề mặt và biên hạt 4015 của vật liệu perovskit cỡ lớn 4010. Theo các phương án cụ thể, hỗn hợp bất kỳ của các hợp chất alkylamoni nêu trên có thể được cấp lên vật liệu perovskit như được nêu trong bản mô tả này. Fig.8 minh họa một phương án ví dụ của lớp vật liệu perovskit 4000 với dạng kết hợp của 1-butylamoni 4020, 1-nonylamoni 4021, 1-heptylamoni 4022 và 1-hexyl amoni 4023 làm thụ động hóa cả bề mặt và biên hạt 4015 của vật liệu perovskit cỡ lớn 4010. Theo các phương án cụ thể, hỗn hợp bất kỳ của các hợp chất alkylamoni nêu trên có thể được cấp lên vật liệu perovskit như được nêu trong bản mô tả này. Theo một số phương án, cation hữu cơ cỡ lớn có thể chứa nhóm benzyl. Fig.8A minh họa một phương án ví dụ của lớp vật liệu perovskit 4500 với nhiều loại cation hữu cơ cỡ lớn chứa nhóm benzyl làm thụ động hóa cả bề mặt và biên hạt 4515 của vật liệu perovskit cỡ lớn 4510.

Việc thêm lớp phủ bề mặt 1-butylamoni lên vật liệu perovskit như được mô tả ở trên đã được cho thấy là làm tăng độ bền ở nhiệt độ cao của perovskit trong môi trường ẩm ướt. Fig.9 thể hiện sự so sánh các hình ảnh đã được chụp của vật liệu perovskit có và không có lớp phủ bề mặt 1-butylamoni (“BAI”) trong khoảng thời gian 48 ngày. Cả hai vật liệu perovskit đều có cùng thành phần và được cho tiếp xúc với môi trường có nhiệt độ là 85°C ở độ ẩm tương đối là 55% trong 48 ngày. Như có thể thấy từ các hình ảnh, vật liệu perovskit không có lớp phủ bề mặt 1-butylamoni có màu sáng hơn đáng kể sau 1 ngày tiếp xúc với môi trường, cho thấy rằng vật liệu perovskit này bị phân hủy đáng kể. Vật liệu perovskit có lớp phủ bề mặt 1-butylamoni thể hiện sự sáng màu dần dần trong 48 ngày và vẫn sẫm màu một phần sau 48 ngày. Điều này thể hiện rằng vật liệu perovskit có lớp phủ bề mặt 1-butylamoni bền hơn so với vật liệu perovskit không có lớp phủ bề mặt 1-butylamoni trong quá trình tiếp xúc kéo dài với môi trường nhiệt độ cao.

Fig.10 thể hiện sự so sánh các hình ảnh đã được chụp của vật liệu perovskit có và không có lớp phủ bề mặt 1-butylamoni (“BAI”) trong khoảng thời gian là 7 ngày. Cả hai vật liệu perovskit đều có cùng thành phần và được cho tiếp xúc với môi trường có nhiệt độ là 85°C ở độ ẩm tương đối là 0% trong 7 ngày. Như có thể thấy từ các hình ảnh, vật liệu perovskit không có lớp phủ bề mặt 1-butylamoni có màu sáng hơn

đáng kể sau 1 ngày tiếp xúc với môi trường, cho thấy rằng vật liệu perovskit này bị phân hủy đáng kể. Vật liệu perovskit có lớp phủ bề mặt 1-butylamoni gần như không thể hiện sự thay đổi màu sắc sau 7 ngày. Điều này thể hiện rằng vật liệu perovskit có lớp phủ bề mặt 1-butylamoni không bị phân hủy hoàn toàn trong quá trình tiếp xúc kéo dài với môi trường nhiệt độ cao, độ ẩm cao.

Theo các phương án khác, perylen n-butylamin-imit có thể được cấp lên bề mặt của vật liệu perovskit như được mô tả ở trên đối với 1-butylamoni. Các hình vẽ từ Fig.11A đến Fig.11D minh họa các perylen monoimit và diimit khác nhau mà có thể được cấp lên bề mặt của vật liệu perovskit theo sáng chế. Fig.12 minh họa một phương án của vật liệu perovskit 2500 có thêm cation alkyl amoni để làm thụ động hóa bề mặt. Theo phương án được minh họa, bề mặt của vật liệu perovskit formamidini chì iodua (FAPbI_3) 2510 được thể hiện với perylen n-butylamin-imit 2520 ở bề mặt. Như với 1-butylamoni được minh họa trên Fig.6, "đuôi" cacbon của ion perylen n-butylamin-imit có thể tạo ra tính chất bảo vệ đối với bề mặt của perovskit bằng cách giữ các phân tử khác cách xa bề mặt một cách hiệu quả. Cụ thể, "đuôi" của perylen n-butylamin-imit có tính chất kỵ nước, ngăn không cho các phân tử nước tiếp xúc với bề mặt của perovskit và bảo vệ bề mặt của vật liệu perovskit 2510 khỏi nước trong môi trường. Ngoài ra, cation perylen n-butylamin-imit cũng có thể hoạt động để làm thụ động hóa bề mặt và biên hạt hoặc khiếm khuyết bất kỳ với vật liệu perovskit 2510. Bằng cách hoạt động để làm thụ động hóa các phần của vật liệu perovskit 2510, perylen n-butylamin-imit có thể tạo điều kiện cải thiện sự vận chuyển điện tích vào và ra khỏi vật liệu perovskit 2510 và cải thiện các tính chất điện của lớp quang hoạt.

Phương pháp ví dụ để lắng đọng 1-butylamoni trước khi tôi ủ vật liệu perovskit được mô tả dưới đây.

Trước tiên, mực tiền chất chì halogenua được tạo ra. Lượng chì halogenua có thể được cho vào bình khô sạch trong môi trường khí có kiểm soát (ví dụ, hộp môi trường khí có kiểm soát với các lỗ cửa có gắng tay cho phép thao tác vật liệu trong môi trường không có không khí). Chì halogenua thích hợp bao gồm, nhưng không giới hạn ở, chì (II) iodua, chì (II) bromua, chì (II) clorua và chì (II) florua. Chì

halogenua có thể bao gồm một loại chì halogenua hoặc nó có thể bao gồm hỗn hợp chì halogenua với tỷ lệ chính xác. Theo các phương án nhất định, hỗn hợp chì halogenua có thể chứa iodia, bromua, clorua hoặc florua với tỷ lệ bộ đôi, bộ ba và bộ bốn bất kỳ nằm trong khoảng từ 0,001 đến 100% mol. Theo một phương án, hỗn hợp chì halogenua có thể bao gồm chì (II) clorua và chì (II) iodia với tỷ lệ bằng khoảng 10:90 mol:mol. Theo các phương án khác, hỗn hợp chì halogenua có thể bao gồm chì (II) clorua và chì (II) iodia với tỷ lệ bằng khoảng 5:95, khoảng 7,5:92,5, hoặc khoảng 15:85 mol:mol.

Theo cách khác, các tiền chất muối chì khác có thể được sử dụng cùng với hoặc thay cho muối chì halogenua để tạo ra mực tiền chất. Muối tiền chất thích hợp có thể là dạng kết hợp bất kỳ của chì (II) hoặc chì (IV) và anion sau đây: nitrat, nitrit, carboxylat, axetat, axetonyl axetonat, format, oxalat, sulfat, sulfit, thiosulfat, phosphat, tetrafloroborat, hexaflorophosphat, tetra(perflorophenyl) borat, hydrua, oxit, peroxit, hydroxit, nitrua, arsenat, arsenit, perchlorat, cacbonat, bicarbonat, cromat, dicromat, iodat, bromat, clorat, clorit, hypoclorit, hypobromit, xyanua, xyanat, isoxyanat, fulminat, thioxyanat, isothioxyanat, azit, tetracacbonylcobaltat, carbamoyldixyanometanit, dixyanonitrosometanit, dixyanamit, trixyanometanit, amit và permanganat.

Mực tiền chất có thể còn bao gồm muối chì (II) hoặc chì (IV) với tỷ lệ mol nằm trong khoảng từ 0 đến 100% đối với các ion kim loại sau Be, Mg, Ca, Sr, Ba, Fe, Cd, Co, Ni, Cu, Ag, Au, Hg, Sn, Ge, Ga, In, Tl, Sb, Bi, Ti, Zn, Cd, Hg và Zr dưới dạng muối của các anion nêu trên.

Sau đó, dung môi có thể được thêm vào để hòa tan chất rắn chứa chì để tạo ra mực tiền chất chì halogenua. Dung môi thích hợp bao gồm, nhưng không giới hạn ở, N-xyclohexyl-2-pyrrolidon, alkyl-2-pyrrolidon, dimetylformamit, dialkylformamit, dimethylsulfoxit (dimethylsulfoxide, DMSO), metanol, etanol, propanol, butanol, tetrahydrofuran, formamit, tert-butylpyridin, pyridin, alkylpyridin, pyrrolidin, clobenzen, diclobenzen, diclometan, clorofom, alkylnitril, arylnitril, axetonitril, rượu alkoxyl, alkoxyetanol, 2-metoxietanol, glycol, propylen glycol, etylen glycol, ở dạng khô, và dạng kết hợp của chúng. Theo một phương án, chất rắn chứa chì này được

hòa tan trong dimetylformamit (dimethylformamide, DMF) khô. Chất rắn chứa chì này có thể được hòa tan ở nhiệt độ nằm trong khoảng từ khoảng 20°C đến khoảng 150°C. Theo một số phương án, dung môi có thể còn bao gồm 2-metoxyetanol và axetonitril. Theo một số phương án, 2-metoxyetanol và axetonitril có thể được thêm với tỷ lệ thể tích từ khoảng 25:75 đến khoảng 75:25, hoặc ít nhất là 25:75. Theo các phương án cụ thể, dung môi có thể bao gồm tỷ lệ 2-metoxyetanol và axetonitril trên DMF trong khoảng từ 1:100 đến khoảng 1:1, hoặc từ khoảng 1:100 đến khoảng 1:5, trên cơ sở thể tích. Theo các phương án cụ thể, dung môi có thể bao gồm tỷ lệ 2-metoxyetanol và axetonitril trên DMF ít nhất là khoảng 1:100 trên cơ sở thể tích. Theo một phương án, chất rắn chứa chì được hòa tan ở khoảng 85°C. Chất rắn chứa chì có thể được hòa tan trong khoảng thời gian cần thiết để tạo thành dung dịch, quá trình này có thể diễn ra trong khoảng thời gian lên tới khoảng 72 giờ. Dung dịch thu được tạo thành cơ sở của mực tiền chất chì halogenua. Theo một số phương án, mực tiền chất chì halogenua có thể có nồng độ chì halogenua nằm trong khoảng từ khoảng 0,001 M và khoảng 10 M. Theo một phương án, mực tiền chất chì halogenua có nồng độ chì halogenua bằng khoảng 1 M.

Tùy ý, các chất phụ gia nhất định có thể được thêm vào mực tiền chất chì halogenua để tác động đến độ kết tinh và độ ổn định của perovskit cuối cùng. Theo một số phương án, mực tiền chất chì halogenua có thể còn chứa axit amin (ví dụ, axit 5-aminovaleric, histidin, glyxin, lysin), axit amin hydrohalogenua (ví dụ, axit 5-amino valeric hydroclorua), chất làm thay đổi bề mặt IFL (SAM) (như các chất đã được mô tả ở trên trong bản mô tả này), hoặc dạng kết hợp của chúng. Theo một phương án, formamidini clorua có thể được thêm vào mực tiền chất chì halogenua. Theo các phương án khác, halogenua của cation bất kỳ đã được mô tả ở trên trong bản mô tả này có thể được sử dụng. Theo một số phương án, dạng kết hợp của các chất phụ gia có thể được thêm vào mực tiền chất chì halogenua bao gồm, ví dụ, dạng hợp của formamidini clorua và axit 5-amino valeric hydroclorua.

Chất phụ gia, bao gồm formamidini clorua và/hoặc axit 5-amino valeric hydroclorua, có thể được thêm vào mực tiền chất chì halogenua với các nồng độ khác nhau tùy thuộc vào đặc tính mong muốn của vật liệu perovskit tạo thành. Theo một phương án, chất phụ gia có thể được thêm vào với nồng độ nằm trong khoảng từ

khoảng 1 nM đến khoảng 1 M. Theo phương án khác, chất phụ gia có thể được thêm vào với nồng độ nằm trong khoảng từ khoảng 1 μM đến khoảng 1 M. Theo phương án khác, chất phụ gia có thể được thêm vào với nồng độ nằm trong khoảng từ khoảng 1 μM đến khoảng 1 mM.

Theo một số phương án, dung dịch halogenua kim loại nhóm 1 được tạo ra để được thêm vào mực tiền chất chì halogenua. Lượng halogenua kim loại nhóm 1 có thể được cho vào bình khô sạch trong môi trường khí có kiểm soát. Halogenua kim loại nhóm 1 thích hợp bao gồm, nhưng không giới hạn ở, xesi iodua, xesi bromua, xesi clorua, xesi florua, rubidi iodua, rubidi bromua, rubidi clorua, rubidi florua, lithi iodua, lithi bromua, lithi clorua, lithi florua, natri iodua, natri bromua, natri clorua, natri florua, kali iodua, kali bromua, kali clorua, kali florua. Halogenua kim loại nhóm 1 có thể bao gồm một loại halogenua kim loại nhóm 1 hoặc nó có thể bao gồm hỗn hợp halogenua kim loại nhóm 1 với tỷ lệ chính xác. Theo một phương án, halogenua kim loại nhóm 1 có thể bao gồm xesi iodua. Theo phương án khác, halogenua kim loại nhóm 1 có thể bao gồm rubidi iodua. Theo phương án khác, halogenua kim loại nhóm 1 có thể bao gồm natri iodua. Theo phương án khác, halogenua kim loại nhóm 1 có thể bao gồm kali iodua.

Theo cách khác, các tiền chất muối kim loại nhóm 1 khác có thể được sử dụng cùng với hoặc thay cho muối halogenua kim loại nhóm 1 để tạo thành dung dịch muối kim loại nhóm 1. Tiền chất muối kim loại nhóm 1 thích hợp có thể bao gồm dạng kết hợp bất kỳ của các kim loại nhóm 1 và anion sau đây: nitrat, nitrit, carboxylat, axetat, format, oxalat, sulfat, sulfit, thiosulfat, phosphat, tetrafloroborat, hexaflorophosphat, tetra(perflorophenyl) borat, hydrua, oxit, peroxit, hydroxit, nitrua, arsenat, arsenit, perchlorat, cacbonat, bicacbonat, cromat, dicromat, iodat, bromat, clorat, clorit, hypoclorit, hypobromit, xyanua, xyanat, isoxyanat, fulminat, thioxyanat, isothioxyanat, azit, tetracacbonylcobaltat, carbamoyldixyanometanit, dixyanonitrosometanit, dixyanamit, trixyanometanit, amit và permanganat.

Sau đó, dung môi có thể được thêm vào bình để hòa tan halogenua kim loại nhóm 1 rắn để tạo thành dung dịch halogenua kim loại nhóm 1. Dung môi thích hợp bao gồm, nhưng không giới hạn ở, N-xyclohexyl-2-pyrrolidon, alkyl-2-pyrrolidon,

dimethylformamit (dimethylformamide, DMF), dialkylformamit, dimethylsulfoxit (dimethylsulfoxide, DMSO), metanol, etanol, propanol, butanol, tetrahydrofuran, formamit, tert-butylpyridin, pyridin, alkylpyridin, pyrrolidin, clobenzen, diclobenzen, diclometan, clorofom, ở dạng khô, và dạng kết hợp của chúng. Theo một phương án, chất rắn chứa chì này được hòa tan trong dimethylsulfoxit (dimethylsulfoxide, DMSO) khô. Halogenua kim loại nhóm 1 rắn có thể được hòa tan ở nhiệt độ nằm trong khoảng từ khoảng 20°C đến khoảng 150°C. Theo một phương án, halogenua kim loại nhóm 1 rắn được hòa tan ở nhiệt độ phòng (tức là khoảng 25°C). Halogenua kim loại nhóm 1 rắn có thể được hòa tan trong khoảng thời gian cần thiết để tạo thành dung dịch, quá trình này có thể diễn ra trong khoảng thời gian lên tới khoảng 72 giờ. Dung dịch thu được tạo thành dung dịch halogenua kim loại nhóm 1. Theo một số phương án, dung dịch halogenua kim loại nhóm 1 có thể có nồng độ halogenua kim loại nhóm 1 nằm trong khoảng từ khoảng 0,001 M và khoảng 10 M. Theo một phương án, dung dịch halogenua kim loại nhóm 1 có nồng độ halogenua kim loại nhóm 1 bằng khoảng 1 M. Theo một số phương án, dung dịch halogenua kim loại nhóm 1 có thể còn chứa axit amin (ví dụ, axit 5-aminovaleric, histidin, glyxin, lysin), axit amin hydrohalogenua (ví dụ, axit 5-amino valeric hydroclorua), chất làm thay đổi bề mặt IFL (SAM) (như các chất đã được mô tả ở trên trong bản mô tả này), hoặc dạng kết hợp của chúng.

Tiếp theo, dung dịch chì halogenua và dung dịch halogenua kim loại nhóm 1 được trộn để tạo ra mực tiền chất màng mỏng. Dung dịch chì halogenua và dung dịch halogenua kim loại nhóm 1 có thể được trộn theo tỷ lệ sao cho mực tiền chất màng mỏng tạo thành có nồng độ mol của halogenua kim loại nhóm 1 bằng từ 0% đến 25% của nồng độ mol của chì halogenua. Theo các phương án cụ thể, mực tiền chất màng mỏng có thể có nồng độ mol của halogenua kim loại nhóm 1 bằng 1% của nồng độ mol của chì halogenua. Theo các phương án cụ thể, mực tiền chất màng mỏng có thể có nồng độ mol của halogenua kim loại nhóm 1 bằng 5% của nồng độ mol của chì halogenua. Theo các phương án cụ thể, mực tiền chất màng mỏng có thể có nồng độ mol của halogenua kim loại nhóm 1 bằng 10% của nồng độ mol của chì halogenua. Theo các phương án cụ thể, mực tiền chất màng mỏng có thể có nồng độ mol của halogenua kim loại nhóm 1 bằng 15% của nồng độ mol của chì halogenua. Theo các

phương án cụ thể, mực tiền chất màng mỏng có thể có nồng độ mol của halogenua kim loại nhóm 1 bằng 20% của nồng độ mol của chì halogenua. Theo các phương án cụ thể, mực tiền chất màng mỏng có thể có nồng độ mol của halogenua kim loại nhóm 1 bằng 25% của nồng độ mol của chì halogenua. Theo một số phương án, dung dịch chì halogenua và dung dịch halogenua kim loại nhóm 1 có thể được khuấy hoặc khuấy mạnh trong hoặc sau khi trộn.

Tùy ý, theo các phương án nhất định, nước có thể được thêm vào mực tiền chất chì halogenua. Theo một số phương án, dung môi có thể còn bao gồm 2-metoxietanol và axetonitril. Theo một số phương án, 2-metoxietanol và axetonitril có thể được thêm với tỷ lệ thể tích từ khoảng 25:75 đến khoảng 75:25, hoặc ít nhất là 25:75. Theo các phương án cụ thể, dung môi có thể bao gồm tỷ lệ 2-metoxietanol và axetonitril trên DMF trong khoảng từ 1:100 đến khoảng 1:1, hoặc từ khoảng 1:100 đến khoảng 1:5, trên cơ sở thể tích. Theo các phương án cụ thể, dung môi có thể bao gồm tỷ lệ 2-metoxietanol và axetonitril trên DMF ít nhất là khoảng 1:100 trên cơ sở thể tích. Để minh họa và không giới hạn sáng chế ở bất kỳ lý thuyết hay cơ chế cụ thể nào, sự có mặt của nước tác động đến sự phát triển tinh thể của màng mỏng perovskit. Trong trường hợp bình thường, nước có thể được hấp thụ dưới dạng hơi từ không khí. Tuy nhiên, có thể kiểm soát độ kết tinh của PV perovskit thông qua việc thêm trực tiếp nước vào mực tiền chất chì halogenua với nồng độ cụ thể. Nước thích hợp bao gồm nước cất, nước khử ion, hoặc nguồn nước khác bất kỳ mà về cơ bản là không chứa tạp chất (bao gồm cả khoáng chất). Dựa vào các đường quét I-V ánh sáng, đã phát hiện ra rằng hiệu suất chuyển đổi ánh sáng thành điện năng của PV perovskit có thể tăng gần ba lần khi thêm nước so với thiết bị khô hoàn toàn.

Nước có thể được thêm vào mực tiền chất chì halogenua với các nồng độ khác nhau tùy thuộc vào đặc tính mong muốn của vật liệu perovskit tạo thành. Theo một phương án, nước có thể được thêm vào với nồng độ nằm trong khoảng từ khoảng 1 nL/mL đến khoảng 1 mL/mL. Theo phương án khác, nước có thể được thêm vào với nồng độ nằm trong khoảng từ khoảng 1 μ L/mL đến khoảng 0,1 mL/mL. Theo phương án khác, nước có thể được thêm vào với nồng độ nằm trong khoảng từ khoảng 1 μ L/mL đến khoảng 20 μ L/mL.

Sau đó, mực tiền chất chì halogenua hoặc mực tiền chất màng mỏng có thể được lắng đọng lên lớp nền mong muốn. Lớp nền thích hợp có thể bao gồm lớp bất kỳ trong số các lớp nền đã được nêu ở trên trong bản mô tả này. Như đã lưu ý ở trên, mực tiền chất chì halogenua hoặc mực tiền chất màng mỏng có thể được lắng đọng bằng nhiều cách khác nhau, bao gồm nhưng không giới hạn ở, đúc nhỏ giọt, đúc quay, phủ bằng dao, in với đầu tạo hình khe hẹp, in lưới hoặc in phun mực. Theo các phương án nhất định, mực tiền chất chì halogenua hoặc mực tiền chất màng mỏng có thể được phủ quay lên lớp nền với tốc độ nằm trong khoảng từ khoảng 500 vòng/phút đến khoảng 10000 vòng/phút trong khoảng thời gian từ khoảng 5 giây đến khoảng 600 giây. Theo một phương án, mực tiền chất chì halogenua hoặc mực tiền chất màng mỏng có thể được phủ quay lên lớp nền với tốc độ bằng khoảng 3000 vòng/phút trong khoảng 30 giây. Theo một số phương án, nhiều bước lắng đọng mực tiền chất tiếp theo có thể được thực hiện để tạo ra lớp màng mỏng. Mực tiền chất chì halogenua hoặc mực tiền chất màng mỏng có thể được lắng đọng lên lớp nền ở môi trường khí xung quanh trong khoảng độ ẩm tương đối từ khoảng 0% đến khoảng 50%. Sau đó, mực tiền chất chì halogenua hoặc mực tiền chất màng mỏng có thể được để khô trong môi trường khí về cơ bản không chứa nước, tức là, độ ẩm tương đối nhỏ hơn 30%, để tạo ra màng mỏng.

Sau khi lắng đọng tiền chất chì halogenua hoặc tiền chất màng mỏng, cation hữu cơ cỡ lớn như được mô tả ở trên (ví dụ, benzylamoni, phenyletylamoni, etylamoni, propylamoni, n-butylamoni; butan-1,4-diamoni; 1-pentylamoni; 1-hexylamoni; poly(vinylamoni); phenyletylamoni; 3-phenyl-1-propylamoni; 4-phenyl-1-butylamoni; 1,3-dimetylbutylamoni; 3,3-dimetylbutylamoni; 1-heptylamoni; 1-octylamoni; 1-nonylamoni; 1-dexylamoni; 1-icosanyl amoni; hoặc cation cỡ lớn khác bất kỳ được nêu trong bản mô tả này hoặc được minh họa trên các hình vẽ từ Fig.17 đến Fig.28) dung dịch muối có thể được cấp lên màng mỏng thu được từ bước lắng đọng tiền chất muối chì và tiền chất muối thứ hai. Muối hữu cơ cỡ lớn có thể bao gồm muối halogenua, nitrat, nitrit, carboxylat, axetat, axetonyl axetonat, format, oxalat, sulfat, sulfít, thiosulfat, phosphat, tetrafloborat, hexaflophosphat, tetra(perflophenyl) borat, hydrua, oxit, peroxit, hydroxit, nitrua, arsenat, arsenit, perclorat, cacbonat, bicacbonat, cromat, dicromat, iodat, bromat,

clorat, clorit, hypoclorit, hypobromit, xyanua, xyanat, isoxyanat, fulminat, thioxyanat, isothioxyanat, azit, tetracacbonylcobaltat, carbamoyldixyanometanit, dixyanonitrosometanit, dixyanamit, trixyanometanit, amit và/hoặc permanganat của cation bất kỳ trong số các cation nêu trên. Dung dịch muối cation hữu cơ cỡ lớn có thể được tạo ra bằng cách hòa tan muối cation hữu cơ cỡ lớn trong dung môi như rượu, N-xyclohexyl-2-pyrrolidon, alkyl-2-pyrrolidon, dimetylformamit (dimethylformamide, DMF), dialkylformamit, dimetylsulfoxit (dimethylsulfoxide, DMSO), metanol, etanol, propanol, butanol, tetrahydrofuran, formamit, tert-butylpyridin, pyridin, alkylpyridin, pyrrolidin, clobenzen, diclobenzen, diclometan, clorofom, ở dạng khô, và dạng kết hợp của chúng. Theo một phương án cụ thể, muối cation hữu cơ cỡ lớn có thể được hòa tan trong rượu isopropylic. Theo các phương án nhất định, dung dịch muối cation hữu cơ cỡ lớn có thể có nồng độ muối cation hữu cơ cỡ lớn nằm trong khoảng từ 0,0001 M đến 1,0 M. Theo các phương án khác, dung dịch muối cation hữu cơ cỡ lớn có thể có nồng độ muối cation hữu cơ cỡ lớn nằm trong khoảng từ 0,01 M đến 0,1 M. Theo các phương án cụ thể, dung dịch muối cation hữu cơ cỡ lớn có thể có nồng độ muối cation hữu cơ cỡ lớn nằm trong khoảng từ 0,02 M đến 0,05 M. Theo một phương án cụ thể, dung dịch muối cation hữu cơ cỡ lớn có thể có nồng độ muối cation hữu cơ cỡ lớn bằng khoảng 0,05 M. Dung dịch muối cation hữu cơ cỡ lớn có thể được lắng đọng lên màng mỏng tiền chất vật liệu perovskit theo phương pháp bất kỳ được nêu trong bản mô tả này đối với bước lắng đọng dung dịch. Các phương pháp này có thể bao gồm phủ phun, đúc nhỏ giọt, đúc quay, phủ bằng dao, in với đầu tạo hình khe hẹp, in lưới, in lõm hoặc in phun mực. Theo một phương án, muối cation hữu cơ cỡ lớn có thể là 1-butylamoni iodua. Theo phương án khác, muối cation hữu cơ cỡ lớn có thể là benzylamoni iodua. Theo phương án khác nữa, muối cation hữu cơ cỡ lớn có thể là phenyletylamoni iodua.

Sau đó, màng mỏng có thể được tôi ủ bằng nhiệt trong khoảng thời gian lên tới khoảng 24 giờ ở nhiệt độ nằm trong khoảng từ khoảng 20°C đến khoảng 300°C. Theo một phương án, màng mỏng có thể được tôi ủ bằng nhiệt trong khoảng 10 phút ở nhiệt độ khoảng 50°C. Sau đó, lớp hoạt động chứa vật liệu perovskit có thể được hoàn thiện bằng quy trình chuyển hóa trong đó màng tiền chất được ngâm chìm hoặc được tráng rửa bằng dung dịch chứa dung môi hoặc hỗn hợp dung môi (ví dụ, DMF,

isopropanol, metanol, etanol, butanol, clorofom, clobenzen, dimetylsulfoxit, nước) và muối (ví dụ, metylamoni iodua, formamidini iodua, guanidini iodua, 1,2,2-triaminovinylamoni iodua, axit 5-aminovaleric hydroiodua) với nồng độ nằm trong khoảng từ 0,001 M đến 10 M. Theo các phương án nhất định, màng mỏng có thể còn được tôi ủ sau đó bằng nhiệt theo cách giống như nêu trong dòng đầu tiên của đoạn này.

Sau khi màng mỏng được lắng đọng, và theo một số phương án, được tôi ủ, tiền chất muối thứ hai (ví dụ, formamidini iodua, formamidini thioxyanat hoặc guanidini thioxyanat) có thể được lắng đọng lên màng mỏng muối chì, trong đó màng mỏng có thể có nhiệt độ khoảng bằng nhiệt độ xung quanh hoặc có nhiệt độ được kiểm soát nằm trong khoảng từ 0°C đến 500°C. Tiền chất muối thứ hai có thể được lắng đọng ở nhiệt độ xung quanh hoặc ở nhiệt độ được nâng cao nằm trong khoảng từ khoảng 25°C đến 125°C. Tiền chất muối thứ hai có thể được lắng đọng bằng các phương pháp khác nhau đã biết trong lĩnh vực, bao gồm nhưng không giới hạn ở, phủ quay, phủ bằng dao, in với đầu tạo hình khe hẹp, in phun mực, in lốm, in lưới, phun xạ, PECVD, làm bay hơi bằng nhiệt hoặc phủ phun. Theo một số phương án, nhiều bước lắng đọng dung dịch muối thứ hai tiếp theo có thể được thực hiện để tạo ra lớp màng mỏng. Theo một số phương án, tiền chất muối thứ hai có thể là dung dịch chứa một hoặc nhiều dung môi. Ví dụ, tiền chất muối thứ hai có thể chứa một hoặc nhiều dung môi trong số N-xyclohexyl-2-pyrrolidon, alkyl-2-pyrrolidon, dimetylformamit, dialkylformamit, dimetylsulfoxit (dimethylsulfoxide, DMSO), metanol, etanol, propanol, butanol, tetrahydrofuran, formamit, tert-butylpyridin, pyridin, alkylpyridin, pyrrolidin, clobenzen, diclobenzen, diclometan, clorofom, ở dạng khô, và dạng kết hợp của chúng.

Theo một số phương án, muối cation hữu cơ cỡ lớn bất kỳ như được nêu trong bản mô tả này có thể được kết hợp với dung dịch muối thứ hai trước khi lắng đọng dung dịch muối thứ hai. Theo các phương án cụ thể, dung dịch muối cation hữu cơ cỡ lớn có thể được tạo ra như được mô tả ở trên và được trộn với dung dịch muối thứ hai trước khi lắng đọng dung dịch muối thứ hai. Ví dụ, dung dịch muối cation hữu cơ cỡ lớn có thể có nồng độ muối cation hữu cơ cỡ lớn nằm trong khoảng từ 0,0001 M đến 1,0 M. Theo các phương án khác, dung dịch muối cation hữu cơ cỡ lớn có thể có

nồng độ muối cation hữu cơ cỡ lớn nằm trong khoảng từ 0,01 M đến 0,1 M. Theo các phương án cụ thể, dung dịch muối cation hữu cơ cỡ lớn có thể có nồng độ muối cation hữu cơ cỡ lớn nằm trong khoảng từ 0,02 M đến 0,05 M. Theo một phương án cụ thể, dung dịch muối cation hữu cơ cỡ lớn có thể có nồng độ muối cation hữu cơ cỡ lớn bằng khoảng 0,05 M. Theo các phương án khác, dung dịch muối cation hữu cơ cỡ lớn có thể được lắng đọng lên màng mỏng chì halogenua được tạo thành sau khi lắng đọng mực tiền chất chì halogenua hoặc mực tiền chất màng mỏng. Theo phương án khác, dung dịch muối cation hữu cơ cỡ lớn có thể được lắng đọng lên màng mỏng tiền chất perovskit sau khi lắng đọng dung dịch muối thứ hai.

Cuối cùng, lớp nền cùng với màng mỏng tiền chất vật liệu perovskit có thể được tối ưu. Việc tối ưu lớp nền có thể chuyển hóa tiền chất muối chì và tiền chất muối thứ hai thành vật liệu perovskit (ví dụ, FAPbI_3 , GAPb(SCN)_3 , FASnI_3), với lớp cation hữu cơ cỡ lớn làm thụ động hóa bề mặt. Bước tối ưu có thể được thực hiện trong các môi trường khí khác nhau ở áp suất xung quanh (ví dụ, khoảng 0,1 MPa (1 atm hay 760 Torr), tùy thuộc vào điều kiện môi trường khí và độ nâng cao) hoặc ở áp suất nhỏ hơn áp suất môi trường khí hoặc áp suất xung quanh (ví dụ, từ khoảng 0,13 Pa đến khoảng 66,66 Pa (từ 1 mTorr đến 500 mTorr)). Môi trường khí dùng để tối ưu có thể là không khí xung quanh, môi trường có kiểm soát độ ẩm (ví dụ, 0-100 g $\text{H}_2\text{O}/\text{m}^3$ khí), argon tinh khiết, nitơ tinh khiết, oxy tinh khiết, hydro tinh khiết, heli tinh khiết, neon tinh khiết, krypton tinh khiết, CO_2 tinh khiết, hoặc dạng kết hợp bất kỳ của các khí nêu trên. Môi trường có kiểm soát độ ẩm có thể bao gồm môi trường trong đó độ ẩm tuyệt đối hoặc % độ ẩm tương đối được giữ ở giá trị cố định, hoặc trong đó độ ẩm tuyệt đối hoặc % độ ẩm tương đối thay đổi theo các điểm thiết đặt định trước hoặc chức năng định trước. Theo các phương án cụ thể, bước tối ưu có thể diễn ra trong môi trường có kiểm soát độ ẩm có % độ ẩm tương đối lớn hơn hoặc bằng 0% và nhỏ hơn hoặc bằng 50%. Theo các phương án khác, bước tối ưu có thể diễn ra trong môi trường có kiểm soát độ ẩm chứa lớn hơn hoặc bằng 0 g $\text{H}_2\text{O}/\text{m}^3$ khí và nhỏ hơn hoặc bằng 20 g $\text{H}_2\text{O}/\text{m}^3$ khí. Theo một số phương án, bước tối ưu có thể diễn ra ở nhiệt độ lớn hơn hoặc bằng 50°C và nhỏ hơn hoặc bằng 300°C.

Ví dụ, theo một phương án cụ thể, vật liệu perovskit FAPbI_3 có thể được tạo ra theo quy trình nêu dưới đây. Trước tiên, tiền chất chì (II) halogenua chứa tỷ lệ mol

giữa PbI_2 và PbCl_2 là khoảng 90:10 được hòa tan trong DMF khan có thể được lắng đọng lên lớp nền bằng cách phủ quay, phủ bằng dao hoặc in với đầu tạo hình khe hẹp. Mục tiền chất chì halogenua có thể được để khô trong môi trường khí về cơ bản không chứa nước, tức là, độ ẩm tương đối nhỏ hơn 30% hoặc $17 \text{ g H}_2\text{O}/\text{m}^3$, trong khoảng 1 giờ (+ 15 phút) để tạo ra màng mỏng. Sau đó, màng mỏng có thể được tôi ủ bằng nhiệt trong khoảng 10 phút ở nhiệt độ khoảng 50°C (+ 10°C). Theo các phương án khác, tiền chất chì halogenua có thể được lắng đọng bằng cách in phun mực, in lõm, in lưới, phủ bằng dao, phún xạ, PE-CVD, lắng đọng lớp nguyên tử, làm bay hơi bằng nhiệt hoặc phủ phun. Tiếp theo, dung dịch muối 1-butylamoni có nồng độ là 0,05 M trong rượu isopropylic có thể được lắng đọng lên màng mỏng chì halogenua. Tiếp theo, tiền chất formamidini iodua chứa formamidini iodua với nồng độ nằm trong khoảng từ 15 đến 100 mg/mL được hòa tan trong rượu isopropylic khan có thể được lắng đọng lên màng mỏng chì halogenua bằng cách phủ quay hoặc phủ bằng dao. Theo các phương án khác, tiền chất formamidini iodua có thể được lắng đọng bằng cách in phun mực, in lõm, in lưới, in với đầu tạo hình khe hẹp, phún xạ, PE-CVD, lắng đọng lớp nguyên tử, làm bay hơi bằng nhiệt hoặc phủ phun. Tiếp theo, lớp nền có thể được tôi ủ ở độ ẩm tương đối khoảng 25% (khoảng 4 đến 7 $\text{g H}_2\text{O}/\text{m}^3$ khí) và khoảng 100°C đến 200°C để tạo ra vật liệu perovskit formamidini chì iodua (FAPbI_3), với lớp bề mặt bao gồm 1-butylamoni. Theo các phương án thay thế, dung dịch muối 1-butylamoni có thể được lắng đọng lên màng mỏng được tạo thành sau khi lắng đọng tiền chất formamidini iodua. Theo phương án khác, dung dịch muối 1-butylamoni có thể được kết hợp với mục tiền chất chì halogenua trước khi lắng đọng mục tiền chất chì halogenua. Theo phương án khác nữa, dung dịch muối 1-butylamoni có thể được kết hợp với tiền chất formamidini iodua trước khi lắng đọng tiền chất formamidini iodua. Theo phương án khác nữa, dung dịch muối 1-butylamoni có thể được lắng đọng lên màng mỏng sau khi lắng đọng tiền chất formamidini iodua và trước khi tôi ủ màng mỏng và lớp nền. Theo phương án khác nữa, dung dịch muối 1-butylamoni có thể được lắng đọng lên màng mỏng sau khi tôi ủ màng mỏng và lớp nền.

Theo các phương án khác, bằng cách sử dụng quy trình được mô tả ở trên với dung dịch chì (II) iodua, dung dịch xesi iodua, dung dịch muối metylamoni (methylammonium, MA) iodua và dung dịch muối 1-butylamoni có thể tạo ra vật liệu

perovskit có công thức là $\text{Cs}_i\text{MA}_{1-i}\text{PbI}_3$, trong đó i là số nằm trong khoảng từ 0 đến 1 với lớp bề mặt bao gồm 1-butylamoni. Theo ví dụ khác, việc sử dụng dung dịch chì (II) iodua, dung dịch rubidi iodua, dung dịch muối formamidini (FA) iodua, và dung dịch muối 1-butylamoni có thể tạo ra vật liệu perovskit có công thức $\text{Rb}_i\text{FA}_{1-i}\text{PbI}_3$, trong đó i là số nằm trong khoảng giữa 0 và 1 với lớp bề mặt là lớp 1-butylamoni. Theo ví dụ khác, bằng cách sử dụng quy trình được mô tả ở trên với dung dịch chì (II) iodua, dung dịch xesi iodua, dung dịch muối formamidini (FA) iodua, và dung dịch muối 1-butylamoni có thể tạo ra vật liệu perovskit có công thức $\text{Cs}_i\text{FA}_{1-i}\text{PbI}_3$, trong đó i là số nằm trong khoảng giữa 0 và 1 với lớp bề mặt là lớp 1-butylamoni. Theo ví dụ khác, việc sử dụng dung dịch chì (II) iodua, dung dịch kali iodua, dung dịch muối formamidini (FA) iodua, và dung dịch muối 1-butylamoni có thể tạo ra vật liệu perovskit có công thức $\text{K}_i\text{FA}_{1-i}\text{PbI}_3$, trong đó i là số nằm trong khoảng giữa 0 và 1 với lớp bề mặt bao gồm lớp 1-butylamoni. Theo ví dụ khác, việc sử dụng dung dịch chì (II) iodua, dung dịch natri iodua, dung dịch muối formamidini (FA) iodua, và dung dịch muối 1-butylamoni có thể tạo ra vật liệu perovskit có công thức $\text{Na}_i\text{FA}_{1-i}\text{PbI}_3$, trong đó i là số nằm trong khoảng giữa 0 và 1 với lớp bề mặt bao gồm lớp 1-butylamoni. Theo ví dụ khác, việc sử dụng dung dịch hỗn hợp chì (II) iodua-chì (II) clorua, dung dịch xesi iodua, dung dịch muối formamidini (FA) iodua, và dung dịch muối 1-butylamoni có thể tạo ra vật liệu perovskit có công thức $\text{Cs}_i\text{FA}_{1-i}\text{PbI}_{3-y}\text{Cl}_y$, trong đó i là số nằm trong khoảng giữa 0 và 1 và y đại diện cho số giữa 0 và 3 với lớp bề mặt bao gồm lớp 1-butylamoni.

Theo phương án khác, vật liệu perovskit FAPbI_3 có thể được tạo ra theo quy trình nêu dưới đây. Trước tiên, mực tiền chất chì (II) halogenua chứa tỷ lệ mol giữa PbI_2 và PbCl_2 là khoảng 90:10 được hòa tan trong DMF khan có thể được lắng đọng lên lớp nền bằng cách phủ quay, phủ bằng dao hoặc in với đầu tạo hình khe hẹp. Mực tiền chất chì halogenua có thể được để khô trong môi trường khí về cơ bản không chứa nước, tức là, độ ẩm tương đối nhỏ hơn 30% hoặc $17 \text{ g H}_2\text{O/m}^3$, trong khoảng 1 giờ (+ 15 phút) để tạo ra màng mỏng. Sau đó, màng mỏng có thể được tôi ủ bằng nhiệt trong khoảng 10 phút ở nhiệt độ khoảng 50°C (+ 10°C). Theo các phương án khác, tiền chất chì halogenua có thể được lắng đọng bằng cách in phun mực, in lõm, in lưới, phun xạ, PE-CVD, lắng đọng lớp nguyên tử, làm bay hơi bằng nhiệt hoặc phủ

phun. Tiếp theo, tiền chất formamidini iodua chứa formamidini iodua với nồng độ nằm trong khoảng từ 15 đến 60 mg/mL được hòa tan trong rượu isopropylic khan có thể được lắng đọng lên màng mỏng chì halogenua bằng cách phủ quay hoặc phủ bằng dao. Theo các phương án khác, tiền chất formamidini iodua có thể được lắng đọng bằng cách in phun mực, in lốm, in lưới, in với đầu tạo hình khe hẹp, phun xạ, PE-CVD, lắng đọng lớp nguyên tử, phủ bằng dao, làm bay hơi bằng nhiệt hoặc phủ phun. Sau khi lắng đọng tiền chất chì halogenua và tiền chất formamidini iodua, dung dịch muối benzylamoni có nồng độ là 0,04 M trong rượu isopropylic có thể được lắng đọng lên màng mỏng tiền chất vật liệu perovskit. Tiếp theo, lớp nền có thể được tôi ủ ở độ ẩm tương đối khoảng 25% (khoảng 4 đến 7 g H₂O/m³ khí) và khoảng 100°C đến 200°C để tạo ra vật liệu perovskit formamidini chì iodua (FAPbI₃), với lớp bề mặt bao gồm benzylamoni. Theo các phương án cụ thể, dung dịch muối benzylamoni có thể được lắng đọng lên màng mỏng chì halogenua trước khi lắng đọng tiền chất formamidini iodua. Theo phương án khác, dung dịch muối benzylamoni có thể được kết hợp với mực tiền chất chì halogenua trước khi lắng đọng mực tiền chất chì halogenua. Theo phương án khác nữa, dung dịch muối benzylamoni có thể được kết hợp với tiền chất formamidini iodua trước khi lắng đọng tiền chất formamidini iodua. Theo một số phương án, vật liệu perovskit tạo thành có thể có cấu trúc tinh thể hình khối ở vật liệu khối cách xa bề mặt. Sự có mặt của cation hữu cơ cỡ lớn gần bề mặt của vật liệu perovskit có thể tạo ra cấu trúc tinh thể không phải hình khối gần bề mặt của vật liệu perovskit.

Theo các phương án khác, bằng cách sử dụng quy trình được mô tả ở trên với dung dịch chì (II) iodua, dung dịch xesi iodua, dung dịch muối metylamoni (methyllummonium, MA) iodua và dung dịch muối 1-butylamoni có thể tạo ra vật liệu perovskit có công thức là Cs_iMA_{1-i}PbI₃, trong đó *i* là số nằm trong khoảng từ 0 đến 1 với lớp bề mặt bao gồm benzylamoni. Theo ví dụ khác, bằng cách sử dụng quy trình được mô tả ở trên với dung dịch chì (II) iodua, dung dịch rubidi iodua, dung dịch muối formamidini (FA) iodua, và dung dịch muối benzylamoni có thể tạo ra vật liệu perovskit có công thức Rb_iFA_{1-i}PbI₃, trong đó *i* là số nằm trong khoảng giữa 0 và 1 với lớp bề mặt có chứa lớp benzylamoni. Theo ví dụ khác, bằng cách sử dụng quy trình được mô tả ở trên với dung dịch chì (II) iodua, dung dịch xesi iodua, dung dịch

muối formamidini (FA) iodia, và dung dịch muối benzylamoni có thể tạo ra vật liệu perovskit có công thức $\text{Cs}_i\text{FA}_{1-i}\text{PbI}_3$, trong đó i là số nằm trong khoảng giữa 0 và 1 với lớp bề mặt có chứa lớp benzylamoni. Theo ví dụ khác, bằng cách sử dụng quy trình được mô tả ở trên với dung dịch chì (II) iodia, dung dịch kali iodia, dung dịch muối formamidini (FA) iodia, và dung dịch muối benzylamoni có thể tạo ra vật liệu perovskit có công thức $\text{K}_i\text{FA}_{1-i}\text{PbI}_3$, trong đó i là số nằm trong khoảng giữa 0 và 1 với lớp bề mặt có chứa lớp benzylamoni. Theo ví dụ khác, bằng cách sử dụng quy trình được mô tả ở trên với dung dịch chì (II) iodia, dung dịch natri iodia, dung dịch muối formamidini (FA) iodia, và dung dịch muối benzylamoni có thể tạo ra vật liệu perovskit có công thức $\text{Na}_i\text{FA}_{1-i}\text{PbI}_3$, trong đó i là số nằm trong khoảng giữa 0 và 1 với lớp bề mặt of benzylamoni r. Theo ví dụ khác, bằng cách sử dụng quy trình được mô tả ở trên với dung dịch hỗn hợp chì (II) iodia-chì (II) clorua, dung dịch xesi iodia, dung dịch muối formamidini (FA) iodia, và dung dịch muối benzylamoni có thể tạo ra vật liệu perovskit có công thức $\text{Cs}_i\text{FA}_{1-i}\text{PbI}_{3-y}\text{Cl}_y$, trong đó i là số nằm trong khoảng giữa 0 và 1 và y là số nằm giữa 0 và 3 với lớp bề mặt có chứa lớp benzylamoni.

Phương pháp tạo ra vật liệu perovskit với benzylamoni được mô tả dưới đây. Trước tiên, mực tiền chất chì iodia được tạo ra bằng cách hòa tan PbI_2 , PbCl_2 và xesi iodia (CsI) trong hỗn hợp gồm các dung môi DMF và DMSO. Để tạo ra tiền chất chì iodia, dung dịch CsI/DMSO 1,5 M được tạo ra bằng cách hòa tan CsI trong DMSO. Dung dịch CsI/DMSO có thể được tạo ra, theo một phương án cụ thể, bằng cách khuấy CsI trong DMSO ở tỷ lệ là 1,5 mmol CsI trong mỗi 1,0 mL DMSO khan ở nhiệt độ phòng trong khoảng thời gian từ 1 giờ đến 2,5 giờ. Tiếp theo, dung dịch CsI nêu trên được thêm vào dung dịch chứa PbI_2 , PbCl_2 và dung môi DMF khan để tạo thành dung dịch Pb^{2+} 1,28 M, trong đó tỷ lệ giữa Cs và Pb là 1:10 và tỷ lệ giữa I và Cl là 9:1. Theo một phương án cụ thể, dung dịch Pb^{2+} 1,28 M có thể được tạo ra bằng cách thêm dung dịch CsI vào bình chứa 1,26 mmol PbI_2 , 0,14 mmol PbCl_2 và 1,0 mL dung môi DMF khan đối với mỗi 93,8 μL dung dịch CsI. Dung dịch Pb^{2+} được trộn ở nhiệt độ nằm trong khoảng từ 50°C đến 100°C trong thời gian từ 1,5 giờ đến 2,5 giờ trước khi được làm mát để tạo ra mực tiền chất chì iodia. Theo một phương án cụ thể, dung dịch Pb^{2+} có thể được khuấy ở 85°C trong 2 giờ trước khi được làm mát bằng cách khuấy dung dịch trong môi trường ở nhiệt độ phòng trong 1 giờ. Theo một

số phương án, mực tiền chất chì iodua có thể được lọc trước khi lắng đọng mực tiền chất chì iodua. Màng lọc loại 0,2 μm có thể được sử dụng để lọc mực tiền chất chì iodua, theo một phương án cụ thể.

Các dung dịch formamidini iodua (FAI) và benzylamoni iodua (BzAI) được tạo ra bằng cách hòa tan các muối FAI và BzAI trong isopropanol (IPA) khan để tạo thành dung dịch FAI 0,2 M và dung dịch BzAI 0,05 M, một cách tương ứng. Theo các phương án cụ thể, cả hai dung dịch FAI và BzAI đều có thể được giữ ở 75°C trong quá trình phủ nêu dưới đây.

Tiếp theo, mực tiền chất chì iodua được lắng đọng lên lớp nền và sau đó được tôi ủ để tạo ra màng chì iodua. Theo một phương án cụ thể, mực tiền chất chì iodua được giữ ở 45°C có thể được phủ bằng dao lên lớp nền được phủ bằng lớp màng mỏng niken oxit (NiO) và sau đó được tôi ủ ở 50°C trong 10 phút để tạo ra màng chì iodua.

Tiếp theo, để tạo ra lớp vật liệu perovskit, màng chì iodua trước tiên được tráng một lớp phủ dung dịch BzAI, sau đó là ba lớp phủ dung dịch FAI. Sau khi lắng đọng mỗi trong số các lớp phủ dung dịch BzAI và dung dịch FAI, lớp phủ được để khô trước khi lắng đọng lớp phủ nêu dưới đây. Theo các phương án cụ thể, cả hai dung dịch BzAI và FAI đều có thể được giữ ở 45°C trong quá trình lắng đọng mỗi lớp phủ tương ứng. Sau khi lớp phủ đã được lắng đọng, lớp nền và lớp phủ có thể được tôi ủ để tạo ra lớp vật liệu perovskit. Theo một phương án cụ thể, sau khi FAI thứ ba đã được lắng đọng, lớp nền ngay lập tức được làm nóng đến 157°C trong 5 phút để tôi ủ lớp vật liệu perovskit.

Phương pháp nêu trên có thể có một số ưu điểm. Ví dụ, việc lắng đọng dung dịch BzAI lên màng chì iodua trước khi lắng đọng dung dịch FAI có thể tạo ra khuôn mẫu trung gian để phát triển vật liệu perovskit FAPbI_3 3D bằng cách tạo ra vật liệu perovskit 2D. BzAI có thể phản ứng với màng mỏng chì iodua để tạo ra pha vật liệu perovskit 2D trung gian. Khi phản ứng với FAI sau khi lắng đọng dung dịch FAI, các cation BzA^+ ở pha 2D có thể được thay thế hoàn toàn hoặc một phần bằng các cation FA^+ để tạo thành khung FAPbI_3 3D. Ngoài ra, BzAI cũng có thể làm thụ động hóa các khiếm khuyết tinh thể ở vật liệu perovskit FAPbI_3 3D. Mật độ phát quang quang

học của các màng mỏng FAPbI_3 được tạo ra theo quy trình được mô tả ở trên sáng hơn (cao hơn) so với mật độ phát quang quang học của các màng mỏng FAPbI_3 được tạo ra theo quy trình không có BzAI. Fig.31 minh họa cả hình ảnh quang học (độ hấp thụ) và hình ảnh phát quang quang học của thiết bị quang điện chứa vật liệu perovskit 3105 được tạo ra mà không thêm BzAI và thiết bị quang điện chứa vật liệu perovskit 3110 được tạo ra với BzAI như được nêu trong bản mô tả này. Fig.31 cho thấy rằng hình ảnh quang học của thiết bị quang điện chứa vật liệu perovskit 3110 sẫm hơn, thể hiện độ hấp thụ ánh sáng cao hơn, và hình ảnh phát quang quang học của thiết bị quang điện chứa vật liệu perovskit 3110 sáng hơn so với thiết bị quang điện chứa vật liệu perovskit 3105. Ngoài ra, công suất ra được quan sát thấy là lớn hơn từ thiết bị quang điện chứa vật liệu perovskit có kết hợp BzAI. Fig.32 minh họa đường cong công suất ra 3205 tương ứng với thiết bị quang điện không có BzAI, như thiết bị quang điện 3105, và đường cong công suất ra 3210 tương ứng với thiết bị quang điện có BzAI như được nêu trong bản mô tả này, như thiết bị quang điện 3110. Giá trị đo công suất ra được thể hiện trên Fig.32 được đo tại điểm công suất cực đại trong điều kiện chiếu sáng 100 mW/cm^2 AM1.5G trong 180 giây với việc đo trong điều kiện tối trong 30 giây xen giữa để chứng minh hiệu suất ở trạng thái ổn định. Như có thể thấy từ Fig.32, thiết bị quang điện có kết hợp BzAI trong quá trình sản xuất tạo ra công suất trên một đơn vị diện tích lớn hơn ($16,0 \text{ mW/cm}^2$), điện áp lớn hơn (785 mV) và dòng điện trên một đơn vị diện tích lớn hơn ($20,3 \text{ mA/cm}^2$) so với thiết bị quang điện được tạo ra mà không có BzAI ($15,0 \text{ mW/cm}^2$, 770 mV và $19,5 \text{ mA/cm}^2$). Fig.33 minh họa đường quét dòng điện-điện áp (I-V) 3320 của thiết bị quang điện chứa vật liệu perovskit được tạo ra mà không có BzAI, được đánh dấu là đường mẫu “5r”, và thiết bị quang điện chứa vật liệu perovskit được tạo ra với BzAI, được đánh dấu là đường mẫu “10r”. Như có thể thấy từ Fig.33, thiết bị quang điện chứa vật liệu perovskit được tạo ra với BzAI tạo ra dòng điện lớn hơn trên một khoảng điện áp lệch so với thiết bị quang điện chứa vật liệu perovskit được tạo ra mà không có BzAI. Ngoài ra, Fig.34 thể hiện các đồ thị dạng hộp đối với điện áp hở mạch (V_{oc}), mật độ dòng ngắn mạch (J_{sc}), hệ số lấp đầy (FF) và hiệu suất chuyển đổi năng lượng (PCE) đối với sáu thiết bị quang điện chứa vật liệu perovskit được tạo ra mà không có BzAI (mẫu 5, r = quét ngược, f = quét xuôi và s = đo ở trạng thái ổn định) và sáu thiết bị

quang điện chứa vật liệu perovskit được tạo ra với BzAI (mẫu 10). Fig.35 minh họa hiệu suất lượng tử ngoài (EQE) của sáu thiết bị quang điện chứa vật liệu perovskit được tạo ra mà không có BzAI (đồ thị 3505) và sáu thiết bị quang điện chứa vật liệu perovskit được tạo ra với BzAI (đồ thị 3510). Mỗi đường cong EQE trên Fig.35 được lấy tích phân để ước tính J_{sc} ở đơn vị mA/cm^2 , minh họa rằng thiết bị chứa vật liệu perovskit được tạo ra với BzAI thể hiện J_{sc} (diện tích dưới đường cong EQE) cao hơn so với thiết bị chứa vật liệu perovskit được tạo ra mà không có BzAI. Cuối cùng, Fig.36 thể hiện đồ thị đo phổ dẫn nạp 3605 của thiết bị quang điện chứa vật liệu perovskit được tạo ra mà không có BzAI và đồ thị đo phổ dẫn nạp 3610 của thiết bị quang điện chứa vật liệu perovskit được tạo ra với BzAI. Đồ thị đo phổ dẫn nạp 3610 thể hiện sự di chuyển ion bị cản trở đối với các thiết bị mẫu có benzylamoni khi so với đồ thị đo phổ dẫn nạp 3605 đối với các thiết bị mẫu không có benzylamoni. Sự di chuyển ion quá mức được biết là có tác động bất lợi đến hiệu suất và độ bền của thiết bị chứa vật liệu perovskit, cho thấy rằng việc bao gồm benzylamoni trong thiết bị quang điện chứa vật liệu perovskit có thể làm tăng hiệu suất và độ bền của thiết bị này.

Perovskit được cải tiến với cation diamoni butan

Việc kết hợp 1,4-diamoni butan, hoặc các hợp chất hữu cơ poly-amoni khác như được mô tả dưới đây, vào cấu trúc tinh thể của vật liệu perovskit có thể cải thiện các tính chất của vật liệu đó. Theo một phương án, việc thêm 1,4-diamoni butan vào perovskit FAPbI_3 như được mô tả dưới đây có thể tạo ra các tính chất có lợi cho vật liệu perovskit này. Theo một số phương án, 1,4-diamoni butan có thể được kết hợp vào vật liệu perovskit bằng cách sử dụng muối 1,4-diamoni butan thay cho muối cation hữu cơ cỡ lớn trong quy trình được mô tả ở trên, và việc thêm muối 1,4-diamoni butan (hoặc muối polyamoni hữu cơ khác nêu trong bản mô tả này) có thể diễn ra ở giai đoạn bất kỳ của phương pháp tạo ra perovskit mà việc thêm muối cation hữu cơ cỡ lớn vào nó được mô tả ở trên. Việc bao gồm cation hữu cơ, như 1,4-diamoni butan, vào cấu trúc tinh thể của vật liệu perovskit có thể tạo ra công thức của vật liệu perovskit lệch với hệ số tỷ lệ "lý tưởng" của vật liệu perovskit nêu trong bản mô tả này. Ví dụ, việc bao gồm cation hữu cơ như vậy có thể làm cho vật liệu perovskit có công thức dưới tỷ lệ (substoichiometric) hoặc siêu tỷ lệ

(superstoichiometric) đối với công thức FAPbI_3 . Trong trường hợp này, công thức tổng quát cho vật liệu perovskit có thể được thể hiện là $\text{C}_x\text{M}_y\text{X}_z$, trong đó x , y và z là các số thực.

Theo một phương án, dung dịch muối 1,4-diamoni butan có thể được thêm vào dung dịch mực tiền chất chì halogenua trước khi lắng đọng. Theo các phương án nhất định, muối 1,4-diamoni butan có thể được thêm vào dung dịch mực tiền chất chì halogenua với nồng độ nằm trong khoảng từ 0,001% mol đến 50% mol. Theo một số phương án, muối 1,4-diamoni butan có thể được thêm vào dung dịch mực tiền chất chì halogenua với nồng độ nằm trong khoảng từ 0,1% mol đến 20% mol. Theo các phương án cụ thể, muối 1,4-diamoni butan có thể được thêm vào dung dịch mực tiền chất chì halogenua với nồng độ nằm trong khoảng từ 1% mol đến 10% mol.

Theo phương án khác, muối 1,4-diamoni butan có thể được thêm vào dung dịch muối formamidini trước khi cho dung dịch muối formamidini tiếp xúc với màng mỏng tiền chất chì halogenua như được mô tả ở trên. Theo các phương án nhất định, muối 1,4-diamoni butan có thể được thêm vào dung dịch muối formamidini iodua với nồng độ nằm trong khoảng từ 0,001% mol đến 50% mol. Theo một số phương án, muối 1,4-diamoni butan có thể được thêm vào dung dịch muối formamidini iodua với nồng độ nằm trong khoảng từ 0,1% mol đến 20% mol. Theo các phương án cụ thể, muối 1,4-diamoni butan có thể được thêm vào dung dịch muối formamidini iodua với nồng độ nằm trong khoảng từ 1% mol đến 10% mol.

Theo các phương án khác, dung dịch tiền chất muối 1,4-diamoni butan có thể được lắng đọng lên màng mỏng chì halogenua được tạo thành sau khi lắng đọng mực tiền chất chì halogenua hoặc lên màng mỏng tiền chất perovskit sau khi lắng đọng dung dịch muối formamidini. Theo các phương án nhất định, dung dịch tiền chất muối 1,4-diamoni butan có thể có nồng độ nằm trong khoảng từ 0,001% mol đến 50% mol. Theo một số phương án, dung dịch tiền chất muối 1,4-diamoni butan có thể có nồng độ nằm trong khoảng từ 0,1% mol đến 20% mol. Theo các phương án cụ thể, dung dịch tiền chất muối 1,4-diamoni butan có thể có nồng độ nằm trong khoảng từ 1% mol đến 10% mol.

Phương pháp ví dụ để lắng đọng vật liệu perovskit chứa 1,4-diamoni butan bao gồm bước lắng đọng tiền chất muối chì lên lớp nền để tạo ra màng mỏng muối chì và lắng đọng tiền chất muối cation hữu cơ bao gồm muối cation hữu cơ thứ nhất lên màng mỏng muối chì để tạo ra màng mỏng tiền chất perovskit. Tiền chất muối chì hoặc tiền chất muối cation hữu cơ có thể bao gồm muối 1,4-diamoni butan hoặc tiền chất muối 1,4-diamoni butan có thể được lắng đọng lên màng mỏng muối chì hoặc màng mỏng tiền chất perovskit. Cuối cùng, lớp nền và màng mỏng tiền chất perovskit có thể được tôi ủ để tạo ra vật liệu perovskit có 1,4-diamoni butan. Tiền chất muối chì và tiền chất muối cation hữu cơ có thể bao gồm dung dịch bất kỳ nêu trong bản mô tả này được sử dụng để tạo ra màng mỏng perovskit.

1,4-diamoni butan có chiều dài gần như bằng nhau giữa các nhóm amoni của nó như xuất hiện giữa các cation formamidini trong mạng tinh thể vật liệu perovskit formamidini chì iodua. Theo đó, 1,4-diamoni butan có thể thay thế cho hai ion formamidini trong quá trình tạo ra vật liệu FAPbI₃. Theo các phương án thay thế, các muối alkyl polyamoni khác có thể được thêm vào mực tiền chất chì halogenua trong quá trình tạo ra vật liệu perovskit. Ví dụ, 1,8 diamoni octan, bis(4-aminobutyl)amin và tris(4-aminobutyl)amin có thể được thêm vào. Ngoài ra, các polycation polyamoni, bao gồm 1,4-diamoni butan, có thể mang lại các lợi ích giống như cation hữu cơ cỡ lớn được mô tả ở trên theo các cơ chế tương tự với các cơ chế được mô tả ở trên đối với cation hữu cơ cỡ lớn.

Fig.13 là hình minh họa cách điệu cho tác dụng của việc thêm muối 1,4-diamoni butan trong quá trình tạo ra vật liệu perovskit có thể có đối với perovskit 7000 thu được. Như được minh họa bởi Fig.13, cation 1,4-diamoni butan 7020 có thể thay thế cho hai cation formamidini 7010 trong mạng tinh thể vật liệu perovskit. Trong perovskit FAPbI₃, khoảng cách giữa các cation formamidini là khoảng 6,35 Å. Chiều dài của cation 1,4-diamoni butan là khoảng 6,28 Å, chênh lệch chỉ 0,07 Å. Theo đó, cation 1,4-diamoni butan có thể thay thế vào mạng tinh thể perovskit mà không làm thay đổi đáng kể các tính chất hoặc cấu trúc của mạng tinh thể perovskit này. Theo một số phương án, việc thêm cation 1,4-diamoni butan vào vật liệu perovskit có thể tăng cường các tính chất và độ ổn định của vật liệu perovskit này. Cation 1,4-diamoni butan có thể hoạt động như một cấu trúc cứng trong vật liệu perovskit, làm tăng độ

bền cấu trúc và hóa học của nó. Ví dụ, theo một số phương án, vật liệu perovskit có thêm cation 1,4-diamoni butan có thể thể hiện độ ổn định nhiệt khô tốt hơn so với vật liệu perovskit không có cation 1,4-diamoni butan. Ngoài ra, vật liệu perovskit có thêm cation 1,4-diamoni butan có thể thể hiện sự chuyển dịch màu lam trong phổ phát xạ của vật liệu perovskit. Theo một số phương án, cation 1,4-diamoni butan có thể được thêm với nồng độ nằm trong khoảng từ 0 đến 20% mol vào dung dịch muối formamidini. Theo các phương án khác, cation 1,4-diamoni butan có thể được thêm với nồng độ nằm trong khoảng từ 1 đến 5% mol vào dung dịch muối formamidini. Theo một phương án cụ thể, cation 1,4-diamoni butan được thêm với nồng độ là 5% mol vào dung dịch muối formamidini.

Bằng chứng thực nghiệm cho thấy rằng khi thêm lên tới 20% 1,4-diamoni butan vào vật liệu perovskit, các thông số mạng không thay đổi đáng kể. Fig.14 thể các đỉnh nhiễu xạ tia X (x-ray diffraction, XRD) đối với perovskite có nồng độ 1,4-diamoni butan iodua (“DABI”) là 0 mol%, 5 mol%, 10 mol%, và 20 mol%. Đối với mỗi nồng độ, các đỉnh chính xuất hiện tại các điểm giống nhau, cho thấy rằng các thông số mạng của vật liệu perovskit không thay đổi đáng kể khi thêm 1,4-diamoni butan với nồng độ nằm trong khoảng từ 0% mol đến 20% mol. Việc thêm 1,4-diamoni butan có thể tạo ra các nhiễu xạ mật độ nhỏ tại nhỏ hơn $13^\circ 2\theta$ với bức xạ Cu-K α , là chỉ thị của lượng nhỏ của pha perovskit 2D hoặc phân lớp.

Fig.15 thể hiện hình ảnh của các mẫu perovskit có nồng độ là 0% mol, 1% mol, 2,5% mol và 5% mol được cho tiếp xúc với nhiệt độ là 85°C ở độ ẩm tương đối là 0% trong bảy ngày. Vật liệu perovskit với 0% mol DABI thể hiện sự sáng màu đáng kể sau 1 ngày và thậm chí còn chuyển vàng đáng kể hơn sau 7 ngày. Điều này thể hiện rằng vật liệu perovskit với 0% mol DABI bị phân hủy đáng kể sau 1 ngày tiếp xúc với các điều kiện thử nghiệm. Tất cả các mẫu vật liệu perovskit với 1% mol, 2,5% mol và 5% mol đều vẫn sẫm màu sau 7 ngày, cho thấy rằng việc thêm DABI với nồng độ nhỏ tới mức là 1% làm tăng đáng kể tính chất được gọi là độ ổn định “nhiệt khô” của vật liệu perovskit này.

Ngoài ra, việc thêm 1,4-diamoni butan vào vật liệu perovskit có thể dẫn đến sự chuyển dịch phát quang quang học màu lam nhẹ được nhìn thấy từ vật liệu perovskit

khi so với vật liệu perovskit không có 1,4-diamoni butan. Sự chuyển dịch màu lam này là kết quả của việc làm thụ động hóa trạng thái bẫy trong vật liệu perovskit nhờ việc thêm 1,4-diamoni butan. Sự chuyển dịch màu lam này cho thấy rằng việc thêm 1,4-diamoni butan vào vật liệu perovskit làm giảm mật độ khiếm khuyết trong mạng tinh thể vật liệu perovskit mà không làm thay đổi cấu trúc tinh thể của vật liệu perovskit. Ví dụ, quan sát thấy rằng sự chuyển dịch màu lam thu được được nhận thấy ở vật liệu perovskit FAPbI_3 được thêm 1,4-diamoni butan với nồng độ là 20% mol so với vật liệu perovskit FAPbI_3 không có 1,4-diamoni butan là sự thay đổi 0,014 eV, từ 1,538 eV khi không có 1,4-diamoni butan thành 1,552 eV khi có 1,4-diamoni butan 20% mol.

Theo các phương án khác, các phức chất amoni khác có thể được thêm vào trong quá trình tạo ra vật liệu perovskit. Ví dụ, Fig.16 minh họa ba hợp chất amoni, 1,8-diamoni octan, bis(4-aminobutyl)-amoni và tris(4-aminobutyl)-amoni, mà có thể được thêm vào vật liệu perovskit theo cùng một phương pháp như được mô tả ở trên đối với cation 1,4-diamoni butan. 1,8-diamoni octan có thể chiếm không gian của hai cation formamidini (“vị trí A”) của mạng tinh thể vật liệu perovskit FAPbI_3 khi được đưa vào trong quá trình tạo ra vật liệu perovskit như được mô tả ở trên. Bis(4-aminobutyl)-amoni có thể chiếm không gian của ba vị trí A của mạng tinh thể vật liệu perovskit FAPbI_3 khi được đưa vào trong quá trình tạo ra vật liệu perovskit như được mô tả ở trên. Tris(4-aminobutyl)-amoni có thể chiếm không gian của bốn vị trí A của mạng tinh thể vật liệu perovskit FAPbI_3 khi được đưa vào trong quá trình tạo ra vật liệu perovskit như được mô tả ở trên. Các hình vẽ từ Fig.16A đến Fig.16C thể hiện hình minh họa cách điệu cho việc kết hợp vào mạng tinh thể vật liệu perovskit FAPbI_3 của ba hợp chất amoni được minh họa trên Fig.16. Fig.16A là hình minh họa cách điệu cho việc kết hợp 1,8-diamoni octan vào mạng tinh thể vật liệu perovskit FAPbI_3 7100. Như được minh họa bởi Fig.16A, cation 1,8-diamoni octan 7120 có thể thay thế cho hai cation formamidini 7110 trong mạng tinh thể vật liệu perovskit. Fig.16B là hình minh họa cách điệu cho việc kết hợp bis(4-aminobutyl)-amoni vào mạng tinh thể vật liệu perovskit FAPbI_3 7200. Như được minh họa bởi Fig.16B, cation bis(4-aminobutyl)-amoni 7220 có thể thay thế cho ba cation formamidini 7210 trong mạng tinh thể vật liệu perovskit. Fig.16C là hình minh họa cách điệu cho việc kết hợp tris(4-

aminobutyl)-amoni vào mạng tinh thể vật liệu perovskit FAPbI_3 7300. Như được minh họa bởi Fig.16C, cation tris(4-aminobutyl)-amoni 7320 có thể thay thế cho bốn cation formamidini 7310 trong mạng tinh thể vật liệu perovskit. Theo các phương án khác, các phức chất alkyl diamoni với mạch cacbon có từ 2 đến 20 nguyên tử cacbon có thể được thêm vào vật liệu perovskit. Theo một số phương án, dạng hợp của các phức chất amoni có thể được thêm vào vật liệu perovskit.

Các lớp phân cách liên kết ngang

Theo một số phương án, thiết bị PV có thể bao gồm một hoặc nhiều lớp phân cách liên kết ngang. Các lớp phân cách liên kết ngang có thể mạnh hơn về mặt vật lý và hóa học so với các lớp phân cách không liên kết ngang. Ví dụ, các lớp phân cách liên kết ngang may bền cứng hơn, dai hơn, đặc hơn, ít thấm chất lỏng và/ hoặc chất khí hơn, và ít phản ứng hơn các lớp phân cách mà không liên kết ngang. Ngoài ra, các lớp phân cách liên kết ngang có thể có các đặc tính điện khác so với các lớp phân cách không liên kết ngang. Các lớp phân cách liên kết ngang có thể bao gồm các polyme điện môi, polyme liên kết ngang, các fulleren liên kết ngang, và các composit với các fulleren và các hạt nano. Theo các phương án cụ thể, các lớp phân cách liên kết ngang có thể được lắng đọng dưới dạng IFL giữa lớp quang hoạt và điện cực, như IFL 1030 và IFL 1050 trên Fig.1.

Các lớp phân cách liên kết ngang có thể bao gồm một hoặc nhiều polyme và fulleren và các dẫn xuất fulleren.

Các ví dụ về polyme bao gồm:

Các polyvinylaren bao gồm các đồng phân *ortho*, *para*, hoặc *meta* và các dẫn xuất di, tri, tetra, và penta-phần tử thế như: Polystyren, Polyvinylnaptalen, Polyvinylphenol (ví dụ Poly(4-vinylphenol), Polyvinylanilin, Axit polyvinylbenzoic, Polyvinylhaloaren (ví dụ Poly(4-clostyren)), Polyvinylpyridin (ví dụ Poly(4-vinylpyridin)), Polyvinylthiophen, Polyvinylpyrol, Polyvinylfuran, và Polyvinylpyrolidon.

Các Polyaren bao gồm Polyaxenaphtylen, Polyphenylen oxit, Polyphenylen Sulfua, Polyanilin, Polyfuran, Polythiophen, và Polypyrol.

Các Polyvinylalkan bao gồm, các Polyolefin (ví dụ Polyetylen, Polypropylen, Polyaxetylen), Polyvinylalcohol, Polyvinylaxetat, Polyvinylhalogenua, Axit polyacrylic, Polymetacrylat, Polymetylmetacrylat, Polyacrylonitril, Polyvinylxyclohexan, Polyvinylamin, và Polyvinylthiol.

Các ví dụ về fulleren bao gồm: C_{60} , C_{70} và C_{84} , cũng như:

Các fulleren được thể bao gồm: Azafulleren ($C_{60-n}nN$), Borafulleren ($C_{60-n}nB$), Azaborafulleren ($C_{60-(n+m)}nN_mB_m$).

Các fulleren nội chất (endofulleren) bao gồm Metallofulleren ($M@C_{60}$ trong đó M là bất kỳ kim loại chuyển tiếp nào), các vật liệu nano cacbon trimetaspere ($M_3N@C_{80}$ trong đó M là bất kỳ lantanit hoặc kim loại chuyển tiếp), và $M_2@C_{80}$ trong đó M là bất kỳ kim loại chuyển tiếp nào; và các fulleren pha tạp phi kim loại (ví dụ $Ng@C_{60}$ trong đó $Ng = He, Ne, Ar, Kr, Xe$ (các khí hiếm) và $H_2@C_{60}$)

Các fulleren ngoại chất (exofulleren) bao gồm Fullerenol (ví dụ $C_{60}(OH)_n$ trong đó $n = 1$ đến 60), Alkylfulleren (ví dụ $C_{60}R_n$ trong đó $n = 1$ đến 60), Halofulleren: (ví dụ $C_{60}X_n$ trong đó $X = F, Cl, Br$, hoặc I và $n = 1$ đến 60), Hydrofulleren: (ví dụ $C_{60}H_n$ trong đó $n = 1$ đến 60), các dẫn xuất Metanofulleren (ví dụ các dẫn xuất bingel bao gồm các Dialkylestermetanofulleren: $(C_{60}C(CO_2R)_2$ trong đó $R =$ nhóm alkyl hoặc aryl), các Dialkynylmetanofulleren ($C_{60}C(C_2R)_2$) Fulleren dihydrophyrrrol ($C_{60}CR_2NCCO_2R$); các dẫn xuất prato: $C_{60}C_2NR$ trong đó $R =$ nhóm alkyl hoặc aryl Phenyl- C_{61} -butyric axit metyl este (Phenyl- C_{61} -butyric acid methyl ester, PCMA), Phenyl- C_{61} -butyric axit metyl este (Phenyl- C_{61} -butyric acid methyl este, PCMB)), các phức chất fulleren kim loại chuyển tiếp, và Fullerioid (metanoannulen) (các dẫn xuất fulleren mở vòng).

Theo một phương án, lớp phân cách liên kết ngang có thể bao gồm các fulleren được liên kết ngang bởi một hoặc nhiều polyme. Các polyme liên kết ngang có thể bao gồm polystyren, metyl este của axit [6,6]-phenyl- C_{61} -butyric ([6,6]-phenyl- C_{61} -butyric acid methyl ester, PCBM); poly(4-vinylphenol); axit [6,6]-phenyl- C_{61} -butyric ([6,6]-phenyl- C_{61} -butyric acid, PCBA) hoặc poly(3-vinylphenol), poly(2-vinylphenol), poly(3,5-dihydroxystyren), poly(3,4-dihydroxystyren), và poly(3,4,5-trihydroxystyren) khác được thay thế cho poly(4-vinylphenol), polyvinylaryl.

Theo một phương án, lớp phân cách liên kết ngang có thể bao gồm hỗn hợp của polystyren và monome silan. Như được mô tả ở đây, silan có thể bao gồm bất kỳ silan hydro-, hydroxy-, halo-, alkyl-, alkenyl-, alkynyl-, xyclo-, aromatic-, alkoxyalkyl-, alkoxyalkenyl-, alkoxyaromatic-, haloalkyl-, haloalkenyl-, haloalkynyl-, và haloaromatic- nào. Theo các phương án khác, boran, amin, photphin, dicarboxylic axit, liên kết disulfua, và các dẫn xuất xyclophan và xyclophan có thể được sử dụng trong liên kết ngang các IFL thay cho silan. Fig.37 minh họa cấu trúc của lớp phân cách liên kết ngang được tạo thành từ polystyren và halosilylalkan trước và sau khi liên kết ngang. Theo phương án được minh họa trên Fig.37, 1,6-*bis*-(triclosilyl)hexan có tác dụng liên kết ngang các phân tử polyme polystyren trong lớp phân cách. Tuy nhiên, theo các phương án khác, bất kỳ alkan hoặc aren nào (ví dụ benzen) có thể được thay thế cho hexan được minh họa và bất kỳ nhóm halogen hoặc alkoxy nào (ví dụ metoxy, etoxy) có thể được thay thế cho các nhóm clo.

Theo phương án khác, lớp phân cách liên kết ngang có thể bao gồm hỗn hợp của polystyren, silan, và metyl este của axit [6,6]-phenyl-C61-butyric ([6,6]-phenyl-C61-butyric acid methyl ester, PCBM). Theo các phương án khác, boran, amin, photphin, dicarboxylic axit, liên kết disulfua, và các dẫn xuất xyclophan và xyclophan có thể được sử dụng trong liên kết ngang các IFL thay cho các silan. Fig.38 minh họa cấu trúc của lớp phân cách liên kết ngang được tạo thành từ PCBM, polystyren, và halosilylalkan trước và sau khi liên kết ngang. Fig.38 minh họa alkyl silan hoạt động để liên kết ngang các phân tử polyme polystyren trong lớp phân cách, đồng thời cố định các phân tử PCBM bên trong lớp phân cách polyme liên kết ngang.

Theo một phương án, lớp phân cách liên kết ngang có thể bao gồm hỗn hợp của poly(4-vinylphenol) và monome silan. Theo các phương án khác, boran, amin, photphin, dicarboxylic axit, liên kết disulfua, và các dẫn xuất xyclophan và xyclophan có thể được sử dụng trong liên kết ngang các IFL thay cho các silan. Theo các phương án khác, poly(3-vinylphenol), poly(2-vinylphenol), poly(3,5-dihydroxystyren), poly(3,4-dihydroxystyren), và poly(3,4,5-trihydroxystyren) được thay thế ở vị trí của poly(4-vinylphenol). Fig.39 minh họa cấu trúc của lớp phân cách liên kết ngang được tạo thành từ poly(4-vinylphenol) và halosilylalkan trước và sau khi liên kết ngang.

Fig.39 minh họa halosilylalkan hoạt động để liên kết ngang các phân tử polyme poly(4-vinylphenol) trong lớp phân cách.

Theo phương án khác, lớp phân cách liên kết ngang có thể bao gồm hỗn hợp của poly(4-vinylphenol), silan, và PCBM. Theo các phương án khác, boran, amin, photphin, dicarboxylic axit, liên kết disulfua, và các dẫn xuất xyclophan và xyclophan có thể được sử dụng trong liên kết ngang các IFL thay cho các silan. Theo các phương án khác, poly(3-vinylphenol), poly(2-vinylphenol), poly(3,5-dihydroxystyren), poly(3,4-dihydroxystyren), và poly(3,4,5-trihydroxystyren) được thay thế ở vị trí của poly(4-vinylphenol). Fig.40 minh họa cấu trúc của lớp phân cách liên kết ngang được tạo thành từ PCBM, poly(4-vinylphenol), và halosilylalkan trước và sau khi liên kết ngang. Fig.40 minh họa halosilylalkan hoạt động để liên kết ngang các phân tử polyme poly(4-vinylphenol) trong lớp phân cách, đồng thời cố định các phân tử PCBM bên trong lớp phân cách polyme liên kết ngang.

Theo phương án khác, lớp phân cách liên kết ngang có thể bao gồm hỗn hợp của polystyren, silan, và axit [6,6]-phenyl-C61-butyric ([6,6]-phenyl-C61-butyric acid, PCBA). Theo các phương án khác, boran, amin, photphin, dicarboxylic axit, liên kết disulfua, và các dẫn xuất xyclophan và xyclophan có thể được sử dụng trong liên kết ngang các IFL thay cho các silan. Fig.41 minh họa cấu trúc của lớp phân cách liên kết ngang được làm từ PCBA, polystyren, và halosilylalkan trước và sau khi liên kết ngang. Fig.41 minh họa halosilylalkan hoạt động để liên kết ngang các phân tử polyme polystyren và các phân tử PCBA trong lớp phân cách.

Theo phương án khác, lớp phân cách liên kết ngang có thể bao gồm hỗn hợp của poly(4-vinylphenol), silan, và PCBA. Theo các phương án khác, boran, amin, photphin, dicarboxylic axit, liên kết disulfua, và các dẫn xuất xyclophan và xyclophan có thể được sử dụng trong liên kết ngang các IFL thay cho các silan. Theo các phương án khác, poly(3-vinylphenol), poly(2-vinylphenol), poly(3,5-dihydroxystyren), poly(3,4-dihydroxystyren), và poly(3,4,5-trihydroxystyren) được thay thế ở vị trí của poly(4-vinylphenol). Fig.42 minh họa cấu trúc của lớp phân cách liên kết ngang được làm từ PCBA, poly(4-vinylphenol), và halosilylalkan trước và sau khi liên kết ngang. Fig.42 minh họa halosilylalkan hoạt động để liên kết ngang các phân tử polyme

poly(4-vinylphenol) và các phân tử PCBA trong lớp phân cách. Như được minh họa trên Fig.42 các phân tử PCBA được cố định hoàn toàn bên trong lớp phân cách polyme liên kết ngang bằng cách liên kết với các nhóm silan của hợp chất halosilylalkan.

Phương pháp để lắng đọng lớp phân cách fullerene liên kết ngang được mô tả dưới đây. Trước tiên xyclophan được chuyển đổi thành gốc dimethylbenzen. Tiếp theo, gốc dimethyl benzen được lắng đọng lên lớp nền cùng với các fullerene, dẫn đến lớp phân cách liên kết ngang với các fullerene được liên kết ngang bởi một hoặc nhiều phân tử dimethylbenzen. Theo các phương án cụ thể, các fullerene và gốc dimethyl benzen có thể được lắng đọng bằng phương pháp lắng đọng hơi hóa học, bốc bay, hoặc lắng đọng plasma. Nếu được lắng đọng lên lớp perovskit, thì lớp phân cách được lắng đọng bằng phương pháp này có thể tạo thành lớp phủ bảo vệ dọc theo bề mặt của vật liệu perovskit. Các fullerene và polyme dimethyl benzen liên kết ngang có thể lấp đầy các chỗ không đều trên bề mặt của perovskit, nhờ đó tăng cường mức độ tiếp xúc giữa lớp phân cách và lớp perovskit.

Phương pháp thay thế để lắng đọng lớp phân cách fullerene liên kết ngang được mô tả dưới đây. Trước tiên các fullerene được tạo chức thành nhóm alkyl hydroxit lên bề mặt của các fullerene. Tiếp theo, các fullerene được tạo chức được lắng đọng lên lớp nền. Theo các phương án cụ thể các fullerene được tạo chức có thể được lắng đọng lên lớp perovskit của thiết bị quang điện. Các fullerene được tạo chức có thể được lắng đọng bằng các phương pháp bao gồm nhưng không bị giới hạn ở phủ quay, in với đầu tạo hình khe hẹp, lắng đọng hơi hóa học, bốc bay nhiệt, phún xạ, lắng đọng lớp nguyên tử, ép dùn, và in lõm. Tiếp theo, lớp phủ fullerene có thể được xử lý bằng hợp chất silan để tạo thành lớp phân cách silicon-fullerene liên kết ngang. Hợp chất silan có thể bao gồm bất kỳ silan hydro-, hydroxy-, halo-, alkyl-, alkenyl-, alkynyl-, xyclo-, aromatic-, alkoxyalkyl-, alkoxyalkenyl-, alkoxyaromatic-, haloalkyl-, haloalkenyl-, haloalkynyl-, và haloaromatic- nào. Theo các phương án khác, boran, amin, photphin, dicarboxylic axit, liên kết disulfua, và các dẫn xuất xyclophan và xyclophan có thể được sử dụng trong liên kết ngang các IFL thay cho các silan. Theo một số phương án, hợp chất silan có thể là halosilylalkan. Halosilylalkan có thể là 1,6-bis(triclosilyl)hexan, theo các phương án cụ thể. Lớp phân cách liên kết ngang

silicon-fulleren này có thể có các đặc tính điện thuận lợi của các fulleren được tăng cường bởi các đặc tính vật lý của silicon. Ví dụ, lớp phân cách silicon-fulleren có thể chống nước và linh hoạt trong khi duy trì các đặc tính điện mong muốn của các fulleren.

Phương pháp khác để lắng đọng lớp phân cách fulleren liên kết ngang được mô tả dưới đây. Trước tiên, polyme được hòa tan vào dung môi để tạo thành dung dịch polyme. Theo các phương án cụ thể, dung môi được sử dụng để hòa tan polyme có thể bao gồm các rượu, dung dịch aryl, dung dịch được clo hóa, xeton, nitril, dung dịch alkan, focmamit, este, và dạng kết hợp của chúng. Nồng độ của polyme trong dung dịch có thể nằm trong phạm vi từ khoảng 1 uM đến khoảng 1M. Theo một số phương án, nồng độ của polyme trong dung dịch có thể nằm trong phạm vi từ khoảng 1 mM đến khoảng 10 M. Sau đó, fulleren được thêm vào dung dịch polyme. Theo các phương án cụ thể, fulleren có thể được thêm trực tiếp dưới dạng chất rắn vào dung dịch polyme hoặc trước tiên được hòa tan trong dung môi (ví dụ, benzen, clobenzen, diclobenzen, toluen, clorofom) và sau đó được thêm vào dung dịch polyme. Theo các phương án cụ thể, nồng độ fulleren sau khi thêm vào có thể nằm trong phạm vi từ khoảng 1 uM đến khoảng 10M. Theo một số phương án, nồng độ fulleren trong dung dịch có thể nằm trong phạm vi từ khoảng 1 mM đến khoảng 1 M. Sau đó, chất liên kết ngang được thêm vào dung dịch polyme trực tiếp dưới dạng chất lỏng hoặc chất rắn. Theo các phương án cụ thể, chất liên kết ngang có thể được hòa tan trong dung môi và sau đó được thêm vào dung dịch polyme. Dung môi được sử dụng để hòa tan chất liên kết ngang có thể bao gồm các rượu, dung dịch aryl, dung dịch được clo hóa, axeton, axetonitril, dung dịch alkyl, focmamit, este, và dạng kết hợp của chúng. Theo một số phương án, chất liên kết ngang có thể được thêm vào dung dịch polyme trước trước khi thêm fulleren. Nồng độ chất liên kết ngang sau khi thêm vào dung dịch fulleren và polyme có thể nằm trong phạm vi từ khoảng 1 uM đến khoảng 10M. Theo một số phương án, nồng độ chất liên kết ngang trong dung dịch có thể nằm trong phạm vi từ khoảng 1 mM đến khoảng 1 M. Theo các phương án cụ thể, dung dịch này có thể được chuẩn bị trong môi trường gần như không có không khí (tức là, không có oxy hoặc nước, điều này có thể tránh được sự liên kết ngang và đông đặc sớm của mực lớp phân cách liên kết ngang. Theo các phương án cụ thể, chất liên kết ngang có

thể được thêm ngay trước khi áp dụng mực lớp phân cách liên kết ngang. Polyme được mô tả ở đây có thể bao gồm bất kỳ polyme nào được bộc lộ trong sáng chế này và fulleren có thể bao gồm bất kỳ fulleren hoặc dẫn xuất fulleren nào được bộc lộ trong sáng chế. Ngoài ra, polyme có thể được thêm vào dung dịch fulleren và/hoặc chất liên kết ngang, như được mô tả ở trên.

Mực lớp phân cách liên kết ngang theo sáng chế có thể được lắng đọng bằng phương pháp phủ bằng dao, phủ quay, in với đầu tạo hình khe hẹp, in phun mực, in lốm, in lưới, phún xạ, phủ phun, đúc nhỏ giọt, hoặc bất kỳ công nghệ lắng đọng dựa trên dung dịch nào khác được mô tả trong sáng chế. Theo các phương án cụ thể, sự lắng đọng có thể xảy ra trong môi trường khí quyển, môi trường khí quyển có kiểm soát, và/hoặc khí quyển hầu như không có nước, cacbon dioxit, và oxy. Lớp ướt có thể được phép sấy khô trong môi trường xung quanh hoặc có thể được phép sấy khô ở nhiệt độ cao (ví dụ, từ 0 đến 250°C). Lớp ướt hoặc khô có thể được tiếp xúc với bức xạ UV để thúc đẩy liên kết ngang. Theo các phương án cụ thể, chất liên kết ngang có thể yêu cầu bức xạ UV để liên kết ngang.

Lớp phân cách liên kết ngang có thể được lắng đọng trực tiếp lên lớp vật liệu perovskit, lên lớp được lắng đọng trước đó lên lớp perovskit (ví dụ, các fulleren, các vật liệu điện môi, các vật liệu bán dẫn, bất kỳ lớp phân cách được mô tả trong sáng chế), hoặc lên lớp nền dẫn điện theo sáng chế. Khi lớp phân cách liên kết ngang được lắng đọng lên lớp nền dẫn điện, thì vật liệu perovskit có thể được lắng đọng trực tiếp lên lớp phân cách liên kết ngang, hoặc một hoặc nhiều lớp phân cách bổ sung có thể được lắng đọng lên lớp phân cách liên kết ngang trước khi vật liệu perovskit được lắng đọng bởi bất kỳ công nghệ nào được mô tả ở đây.

Theo các phương án khác, các fulleren, polyme, và các chất liên kết ngang khác nhau có thể được sử dụng để thay thế cho các chất đã được mô tả ở trên. Ví dụ, Fig.43 minh họa ví dụ với polyhydroxylfulleren là fulleren, Fig.44 minh họa ví dụ với formaldehyt là chất liên kết ngang, và Fig.45 minh họa ví dụ với poly(4-clostyren) là polyme và natri sulfua là chất liên kết ngang.

Do đó, sáng chế được điều chỉnh dễ dàng để đạt được các mục đích và ưu điểm đã được đề cập cũng như các mục đích và ưu điểm vốn có trong đó. Các phương án

cụ thể được mô tả ở trên chỉ mang tính minh họa, vì sáng chế có thể được sửa đổi và được thực hiện theo các cách khác nhưng tương đương mà sẽ được hiểu bởi người có hiểu biết trung bình về lĩnh vực kỹ thuật liên quan với sự trợ giúp của bản mô tả này. Ngoài ra, không dự định là có bất kỳ giới hạn nào đối với các mô tả chi tiết về cấu trúc và thiết kế được thể hiện trong bản mô tả này, ngoài các nội dung như được nêu trong các yêu cầu bảo hộ dưới đây. Do đó, rõ ràng là các phương án minh họa cụ thể được mô tả ở trên có thể được thay đổi hoặc được sửa đổi và tất cả các biến đổi như vậy đều được coi là thuộc bản chất và phạm vi của sáng chế. Cụ thể, mọi khoảng giá trị (ở dạng “từ khoảng a đến khoảng b” hoặc tương đương, “từ khoảng a đến b” hoặc tương đương, “từ khoảng a-b”) nêu trong bản mô tả này cần được hiểu là đề cập đến tập hợp lũy thừa (power set, tập hợp của tất cả các tập con) của khoảng giá trị tương ứng, và đề cập đến mọi khoảng được bao hàm trong khoảng giá trị rộng hơn này. Ngoài ra, các thuật ngữ trong các yêu cầu bảo hộ đều mang nghĩa thông thường, đơn giản của chúng, trừ khi được định nghĩa rõ ràng và chắc chắn theo cách khác bởi Người nộp đơn.

YÊU CẦU BẢO HỘ

1. Chế phẩm lớp phân cách liên kết ngang bao gồm:

fulleren hoặc dẫn xuất fulleren;

chất liên kết ngang, trong đó chất liên kết ngang này bao gồm silan, trong đó silan là halosilylalkan; và

một hoặc nhiều polyme.

2. Chế phẩm lớp phân cách liên kết ngang theo điểm 1, trong đó fulleren hoặc dẫn xuất fulleren được chọn từ nhóm bao gồm: fulleren thông dụng, fulleren được thể, fulleren nội chất, fulleren ngoại chất, và dạng kết hợp bất kỳ của chúng.

3. Chế phẩm lớp phân cách liên kết ngang theo điểm 1, trong đó fulleren hoặc dẫn xuất fulleren được chọn từ nhóm bao gồm: metyl este của axit [6,6]-phenyl-C61-butyric, axit [6,6]-phenyl-C61-butyric, polyhydroxylfulleren, và dạng kết hợp bất kỳ của chúng.

4. Chế phẩm lớp phân cách liên kết ngang theo điểm 1, trong đó một hoặc nhiều polyme bao gồm polyvinylaryl.

5. Chế phẩm lớp phân cách liên kết ngang theo điểm 1, trong đó một hoặc nhiều polyme được chọn từ nhóm bao gồm: 4-(polyvinylphenol), poly(3-vinylphenol), poly(2-vinylphenol), poly(3,5-dihydroxystyren), poly(3,4-dihydroxystyren), poly(3,4,5-trihydroxystyren), poly(4-clostyren), và dạng kết hợp bất kỳ của chúng.

6. Chế phẩm lớp phân cách liên kết ngang theo điểm 1, trong đó một hoặc nhiều polyme được chọn từ nhóm bao gồm: polystyren, polyvinylnaptalen, polyvinylphenol, polyvinylanilin, axit polyvinylbenzoic, polyvinylhaloaren, polyvinylpyridin, polyvinylthiophen, polyvinylpyrol, polyvinylfuran, polyvinylpyrolidon, và dạng kết hợp bất kỳ của chúng.

7. Chế phẩm lớp phân cách liên kết ngang theo điểm 1, trong đó một hoặc nhiều polyme được chọn từ nhóm bao gồm: polyaxenaphtylen, polyphenylen oxit, polyphenylen sulfua, polyanilin, polyfuran, polythiophen, polypyrol, và dạng kết hợp bất kỳ của chúng.

8. Chế phẩm lớp phân cách liên kết ngang theo điểm 1, trong đó một hoặc nhiều polyme được chọn từ nhóm bao gồm: polyolefin, rượu polyvinyllic, polyvinylaxetat, polyvinylhalogenua, axit polyacrylic, polymetacrylat, polymetylmecacrylat, polyacrylonitril, polyvinylxyclohexan, polyvinylamin, polyvinylthiol, và dạng kết hợp bất kỳ của chúng.

9. Thiết bị quang điện bao gồm:

vật liệu quang hoạt bao gồm vật liệu perovskit; và

lớp phân cách bao gồm polyme liên kết ngang bao gồm:

fulleren hoặc dẫn xuất fulleren;

chất liên kết ngang; và

một hoặc nhiều polyme.

10. Thiết bị quang điện theo điểm 9, trong đó fulleren hoặc dẫn xuất fulleren được chọn từ nhóm bao gồm: metyl este của axit [6,6]-phenyl-C61-butyric, axit [6,6]-phenyl-C61-butyric, polyhydroxylfulleren, và dạng kết hợp bất kỳ của chúng.

11. Thiết bị quang điện theo điểm 9, trong đó fulleren hoặc dẫn xuất fulleren được chọn từ nhóm bao gồm: fulleren thông dụng, fulleren được thể, fulleren nội chất, fulleren ngoại chất, và dạng kết hợp bất kỳ của chúng.

12. Thiết bị quang điện theo điểm 9, trong đó chất liên kết ngang gồm có silan.

13. Thiết bị quang điện theo điểm 12, trong đó silan là halosilylalkan.

14. Thiết bị quang điện theo điểm 9, trong đó một hoặc nhiều polyme bao gồm polyvinylaryl.

15. Thiết bị quang điện theo điểm 9, trong đó một hoặc nhiều polyme được chọn từ nhóm bao gồm: 4-(polyvinylphenol), poly(3-vinylphenol), poly(2-vinylphenol), poly(3,5-dihydroxystyren), poly(3,4-dihydroxystyren), poly(3,4,5-trihydroxystyren), poly(4-clostyren), và dạng kết hợp bất kỳ của chúng.

16. Thiết bị quang điện theo điểm 9, trong đó một hoặc nhiều polyme được chọn từ nhóm bao gồm: polystyren, polyvinylnaptalen, polyvinylphenol, polyvinylanilin, axit polyvinylbenzoic, polyvinylhaloaren, polyvinylpyridin, polyvinylthiophen,

polyvinylpyrrol, polyvinylfuran, polyvinylpyrrolidon, và dạng kết hợp bất kỳ của chúng.

17. Thiết bị quang điện theo điểm 9, trong đó một hoặc nhiều polyme được chọn từ nhóm bao gồm: polyaxenaphtylen, polyphenylen oxit, polyphenylen sulfua, polyanilin, polyfuran, polythiophen, polypyrrol, và dạng kết hợp bất kỳ của chúng.

18. Thiết bị quang điện theo điểm 9, trong đó một hoặc nhiều polyme được chọn từ nhóm bao gồm: polyolefin, rượu polyvinyllic, polyvinylaxetat, polyvinylhalogenua, axit polyacrylic, polymetacrylat, polymetylmecacrylat, polyacrylonitril, polyvinylxyclohexan, polyvinylamin, polyvinylthiol, và dạng kết hợp bất kỳ của chúng.

19. Phương pháp sản xuất thiết bị quang điện chứa vật liệu perovskit bao gồm bước:

lắng đọng fullerene hoặc dẫn xuất fullerene, chất liên kết ngang, và một hoặc nhiều polyme lên vật liệu perovskit để tạo thành lớp phân cách fullerene liên kết ngang trên vật liệu perovskit,

trong đó chất liên kết ngang bao gồm silan, và trong đó silan là halosilylalkan.

20. Phương pháp theo điểm 19, trong đó phương pháp này còn bao gồm bước chức hóa fullerene hoặc dẫn xuất fullerene với alkyl hydroxit.

21. Phương pháp theo điểm 19, trong đó một hoặc nhiều polyme bao gồm polyvinylaryl.

22. Phương pháp theo điểm 19, trong đó một hoặc nhiều polyme được chọn từ nhóm bao gồm: 4-(polyvinylphenol), poly(3-vinylphenol), poly(2-vinylphenol), poly(3,5-dihydroxy styren), poly(3,4-dihydroxy styren), poly(3,4,5-trihydroxystyren), poly(4-clostyren), và dạng kết hợp bất kỳ của chúng.

23. Phương pháp theo điểm 19, trong đó fullerene hoặc dẫn xuất fullerene được chọn từ nhóm bao gồm: methyl este của axit [6,6]-phenyl-C61-butyric, axit [6,6]-phenyl-C61-butyric, polyhydroxylfullerene, và dạng kết hợp bất kỳ của chúng.

24. Phương pháp theo điểm 19, trong đó fulleren hoặc dẫn xuất fulleren được chọn từ nhóm bao gồm: fulleren không được thế, fulleren được thế, fulleren nội chất, fulleren ngoại chất, và dạng kết hợp bất kỳ của chúng.

25. Phương pháp theo điểm 19, trong đó một hoặc nhiều polyme được chọn từ nhóm bao gồm: polystyren, polyvinylnaptalen, polyvinylphenol, polyvinylanilin, axit polyvinylbenzoic, polyvinylhaloaren, polyvinylpyridin, polyvinylthiophen, polyvinylpyrol, polyvinylfuran, polyvinylpyrolidon, và dạng kết hợp bất kỳ của chúng.

26. Phương pháp theo điểm 19, trong đó một hoặc nhiều polyme được chọn từ nhóm bao gồm: polyolefin, rượu polyvinyl, polyvinylaxetat, polyvinylhalogenua, axit polyacrylic, polymetacrylat, polymetylmetacrylat, polyacrylonitril, polyvinylxyclohexan, polyvinylamin, polyvinylthiol, và dạng kết hợp bất kỳ của chúng.

27. Phương pháp theo điểm 19, trong đó trong lớp phân cách fulleren liên kết ngang, một hoặc nhiều polyme được liên kết ngang bởi chất liên kết ngang.

28. Phương pháp theo điểm 19, trong đó trong lớp phân cách fulleren liên kết ngang, một hoặc nhiều polyme và fulleren hoặc dẫn xuất fulleren được liên kết ngang bởi chất liên kết ngang.

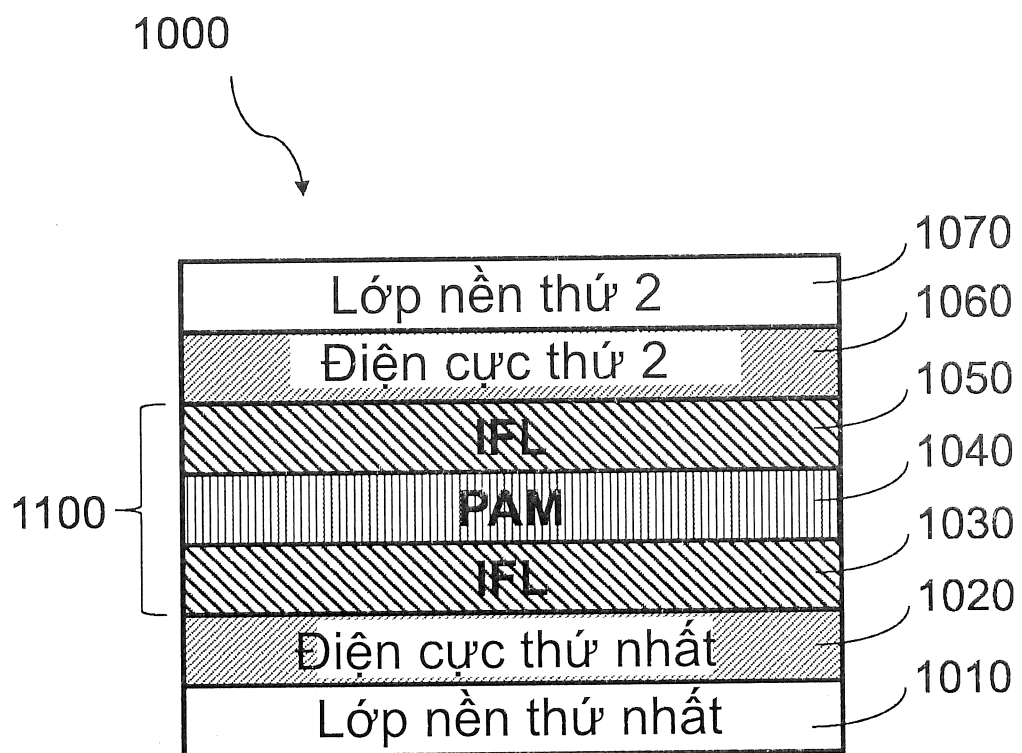


FIG. 1

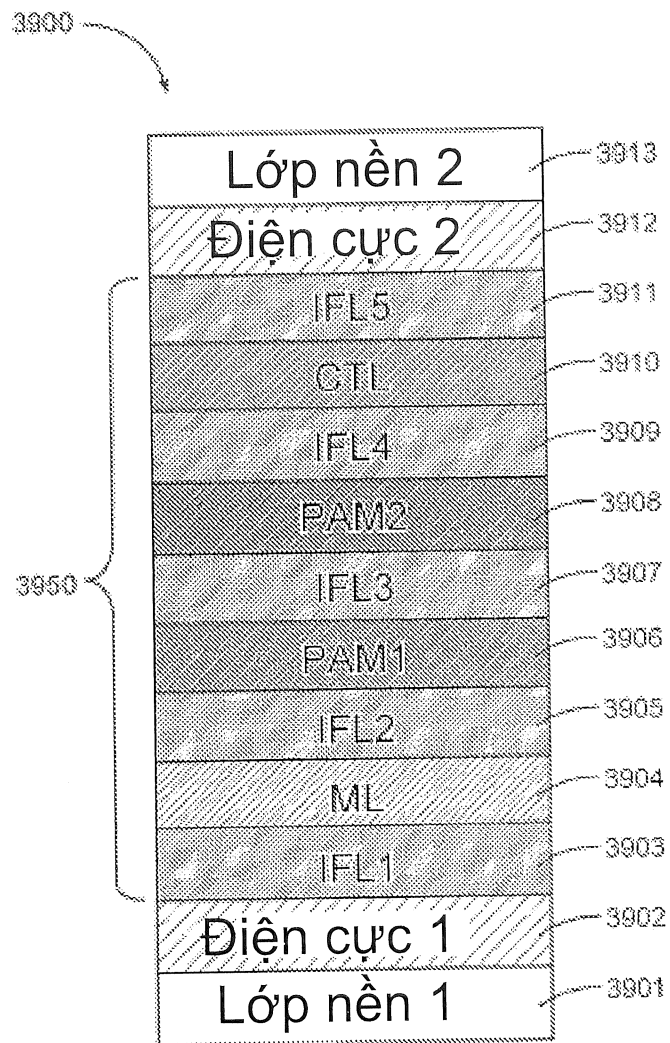


FIG. 2

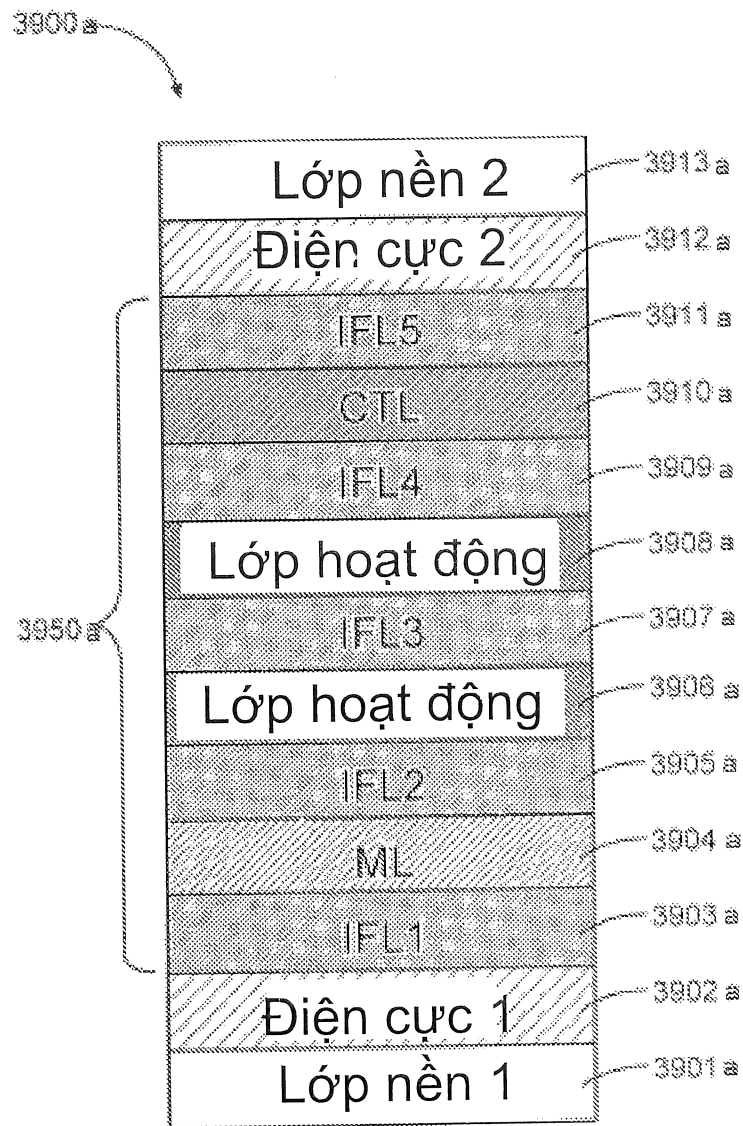


FIG. 3

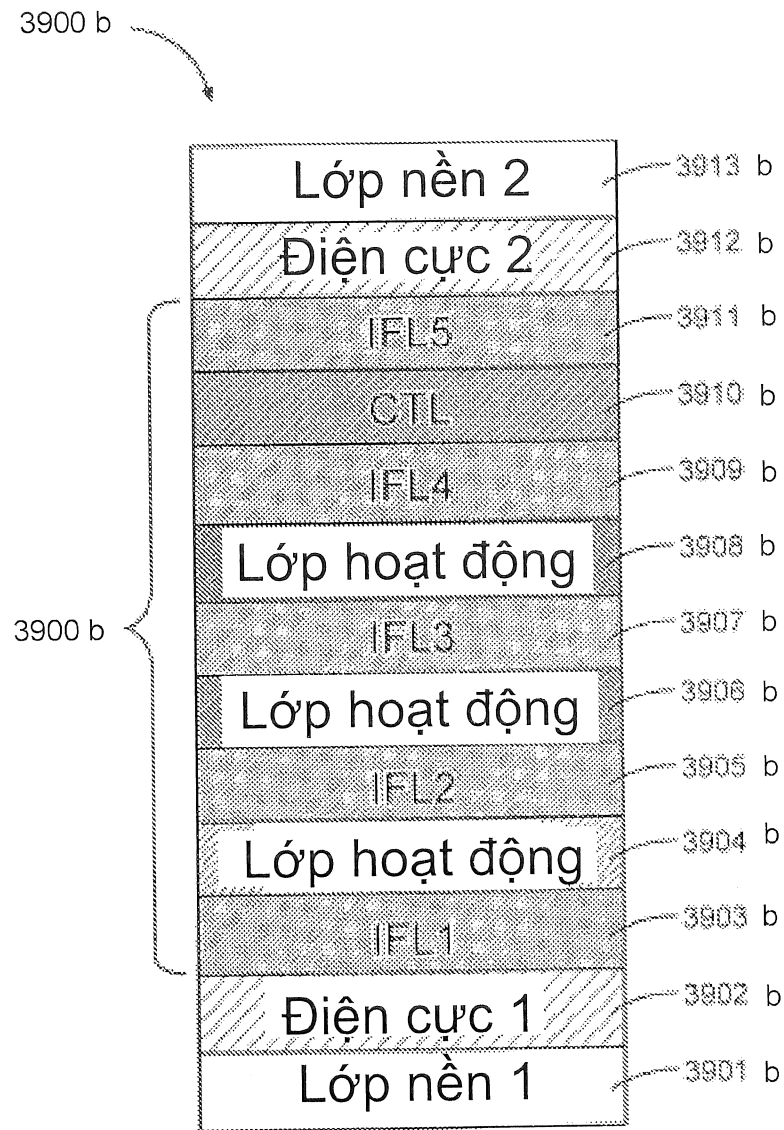


FIG. 4

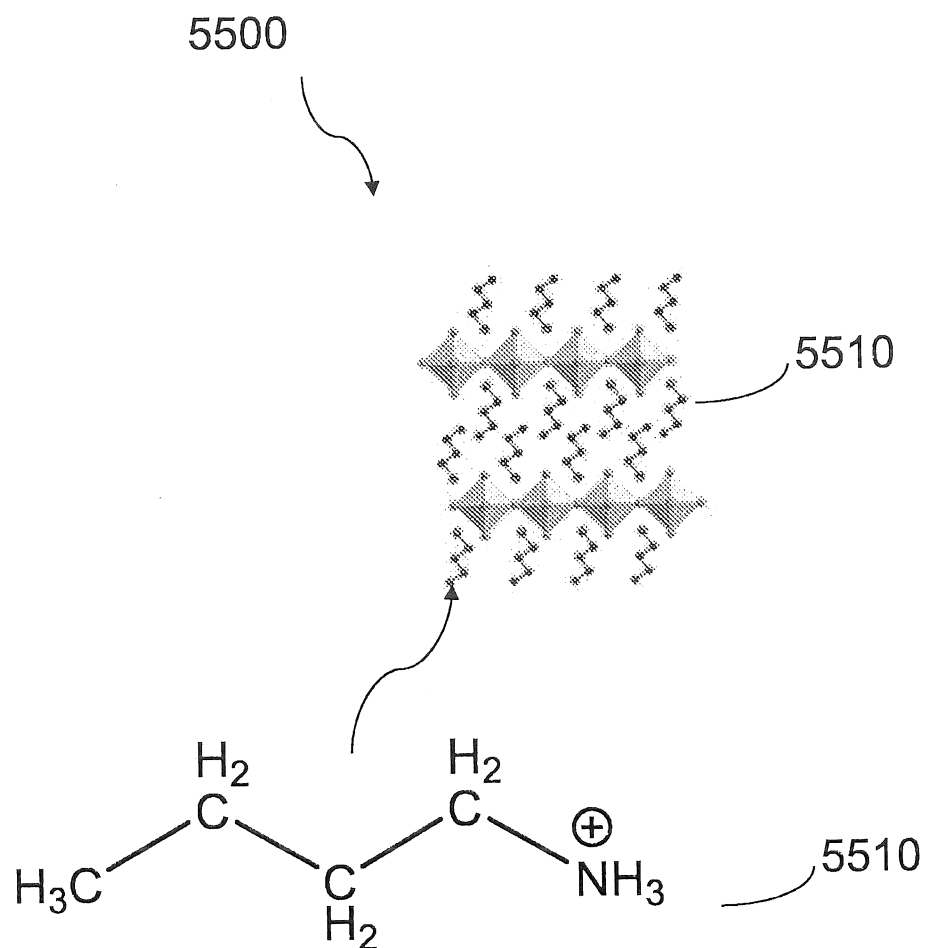


FIG. 5

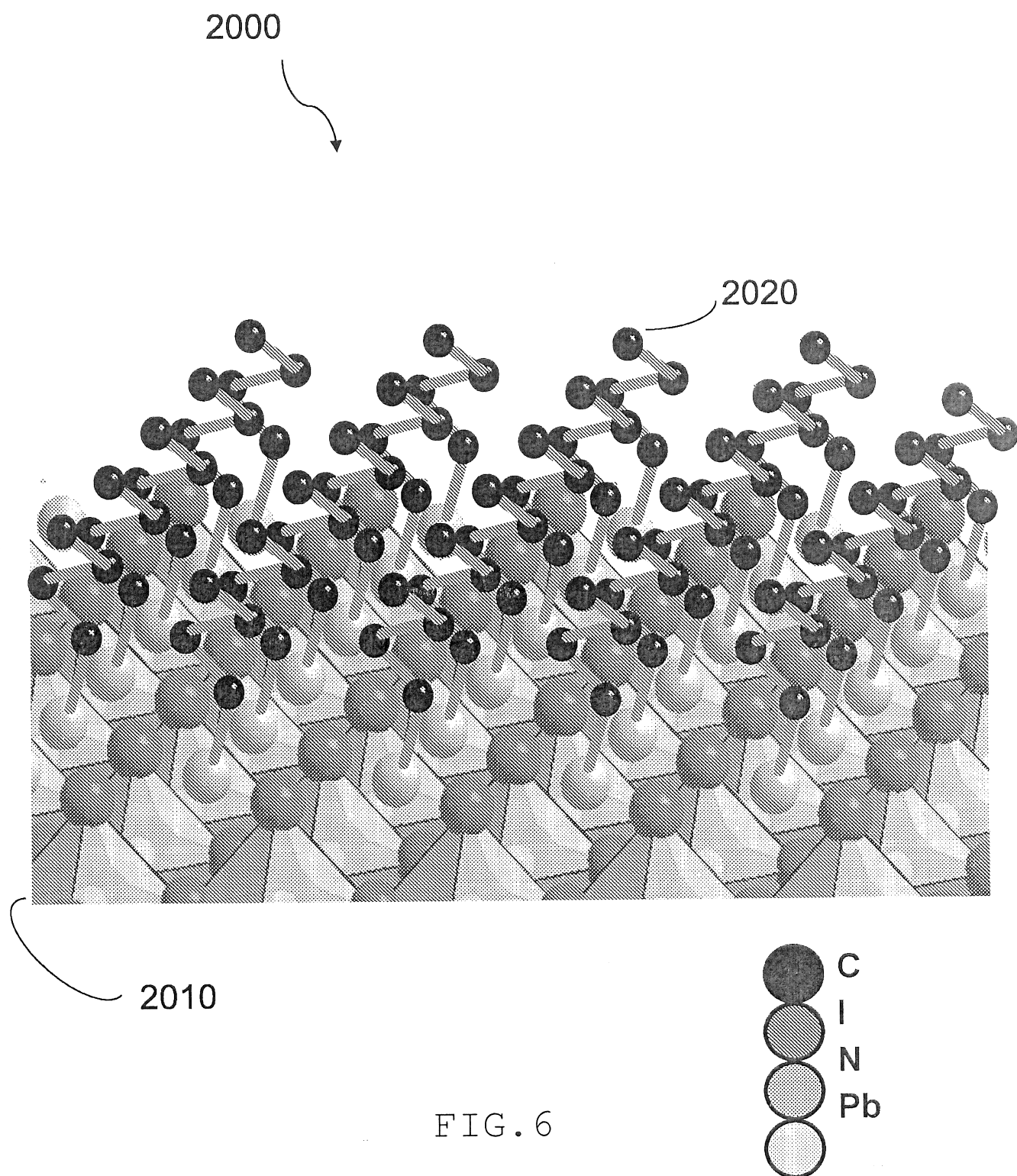


FIG. 6

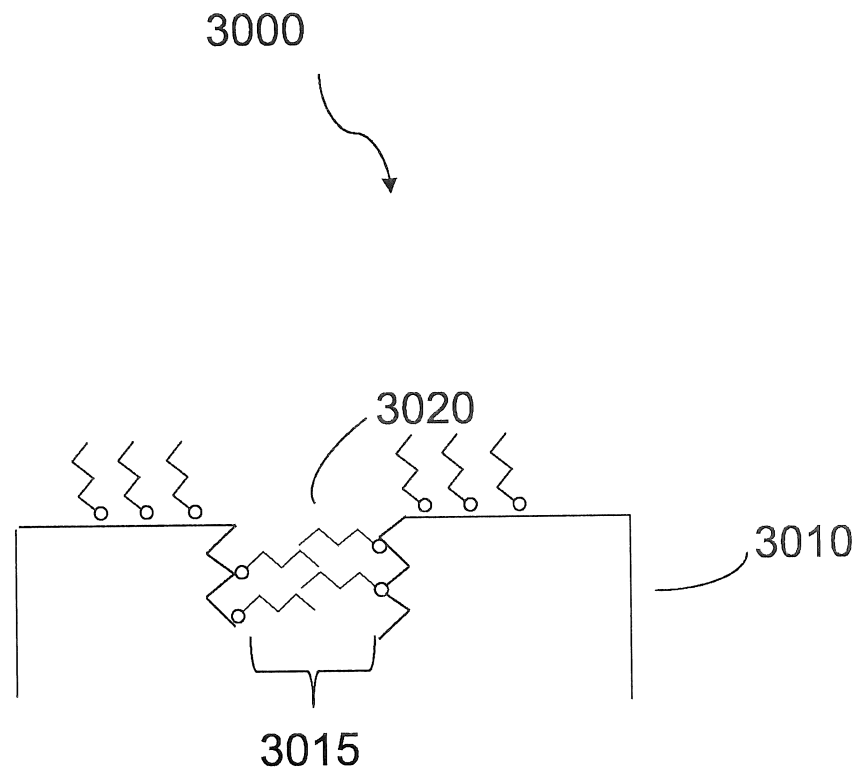


FIG. 7

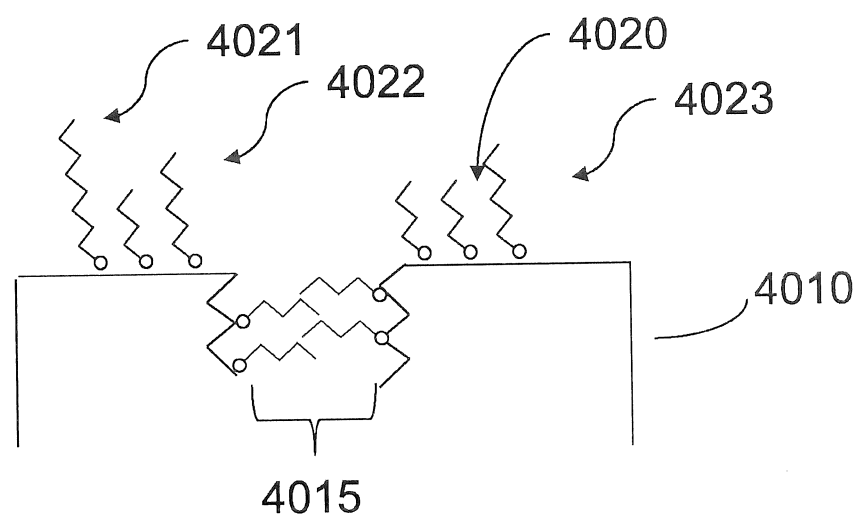


FIG. 8

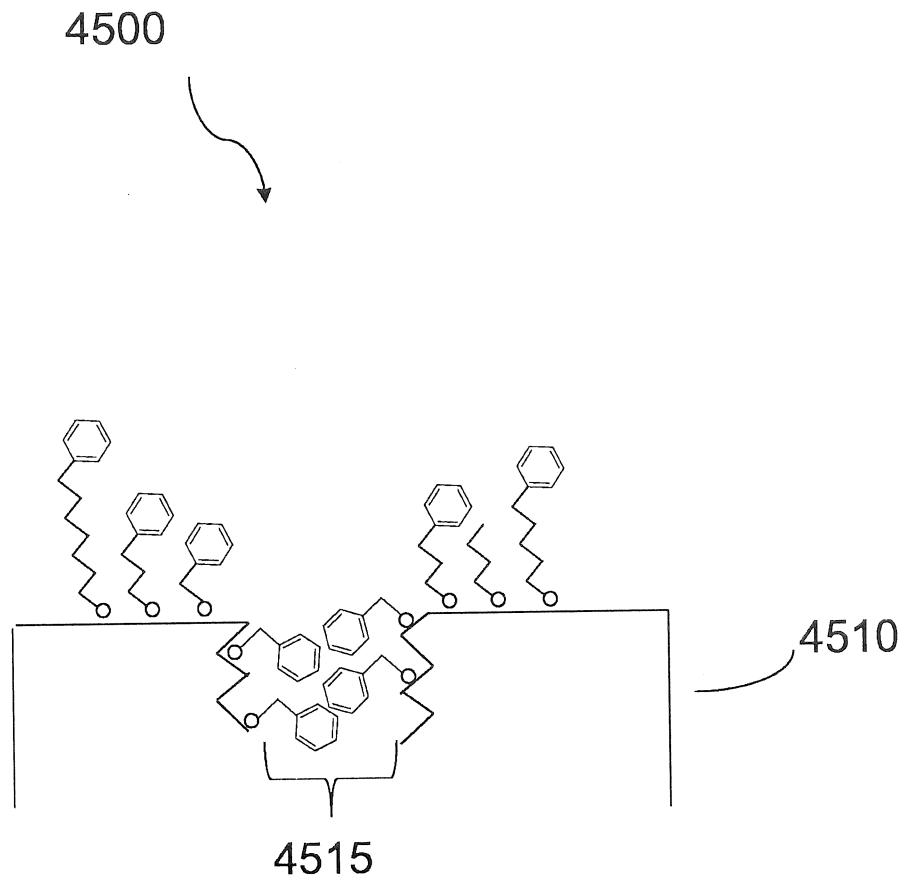


FIG. 8A

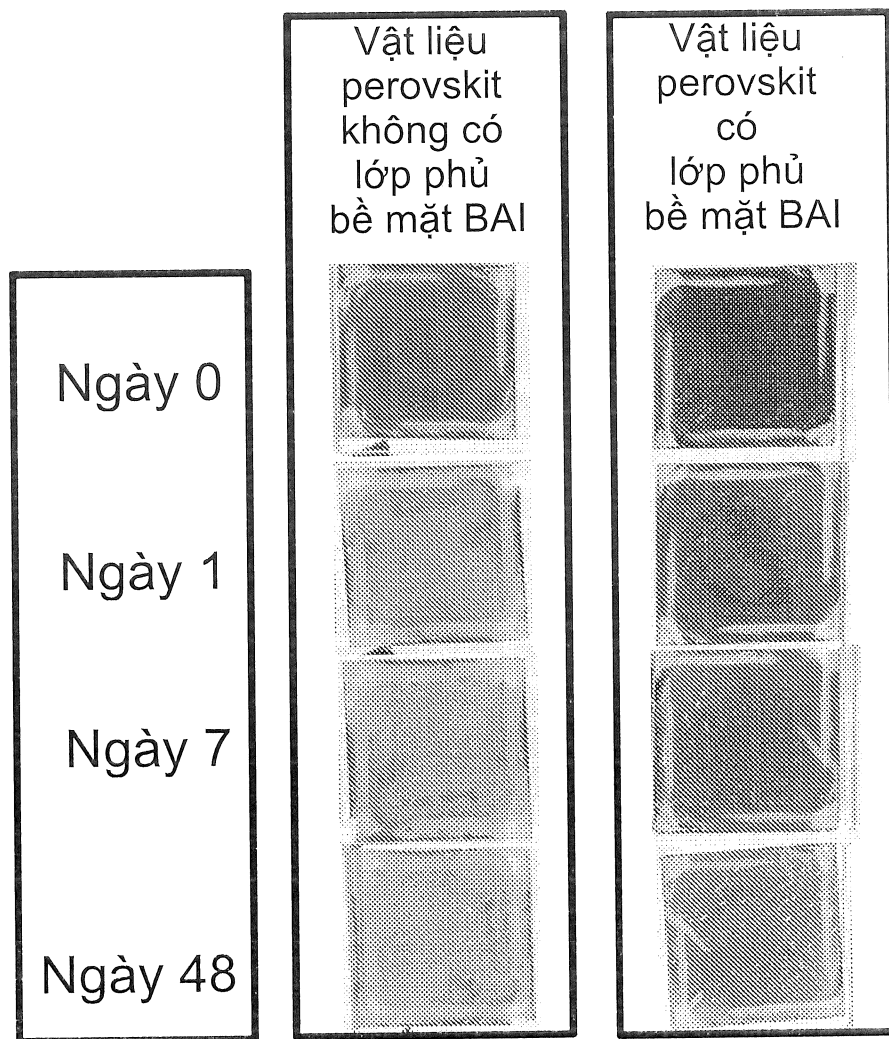


FIG. 9

11/52

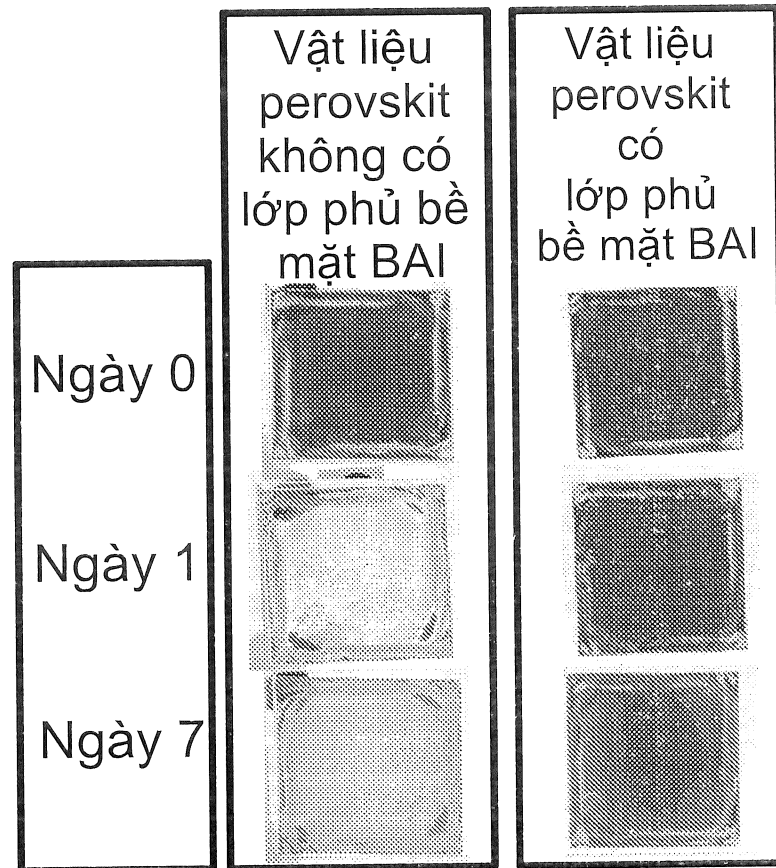


FIG.10

12/52

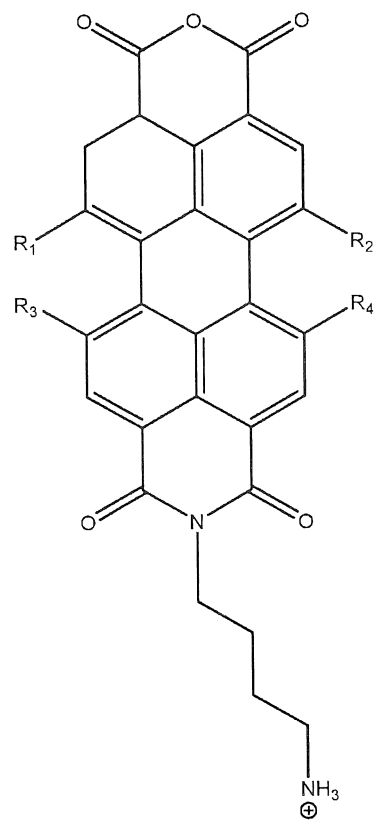


FIG. 11A

13/52

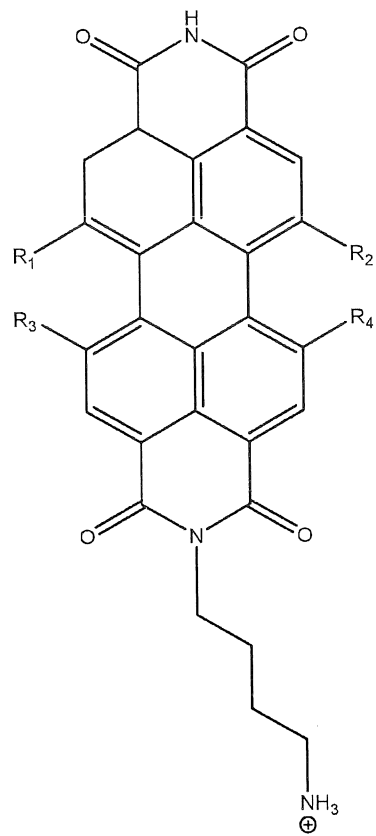


FIG. 11B

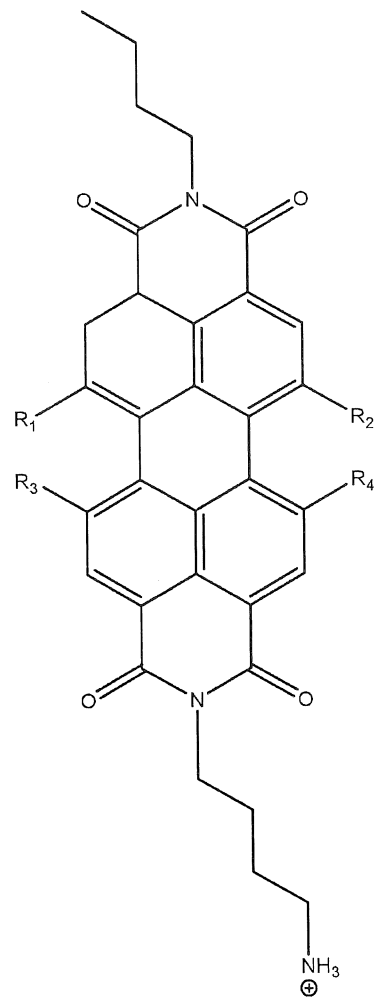


FIG. 11C

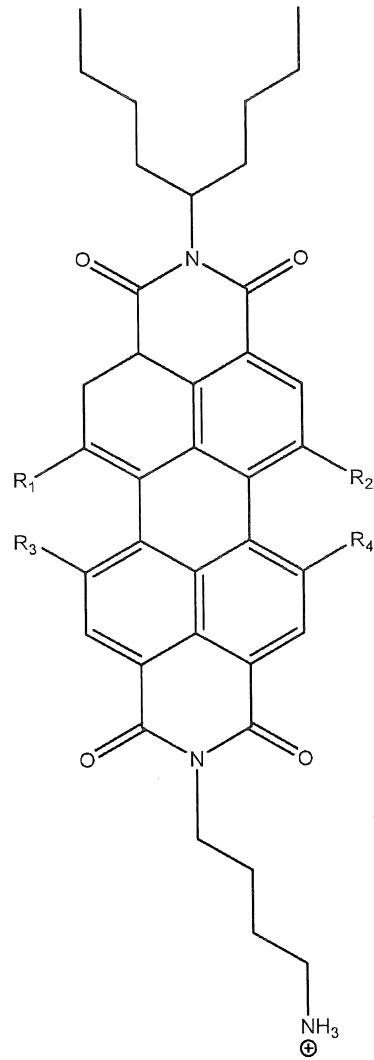
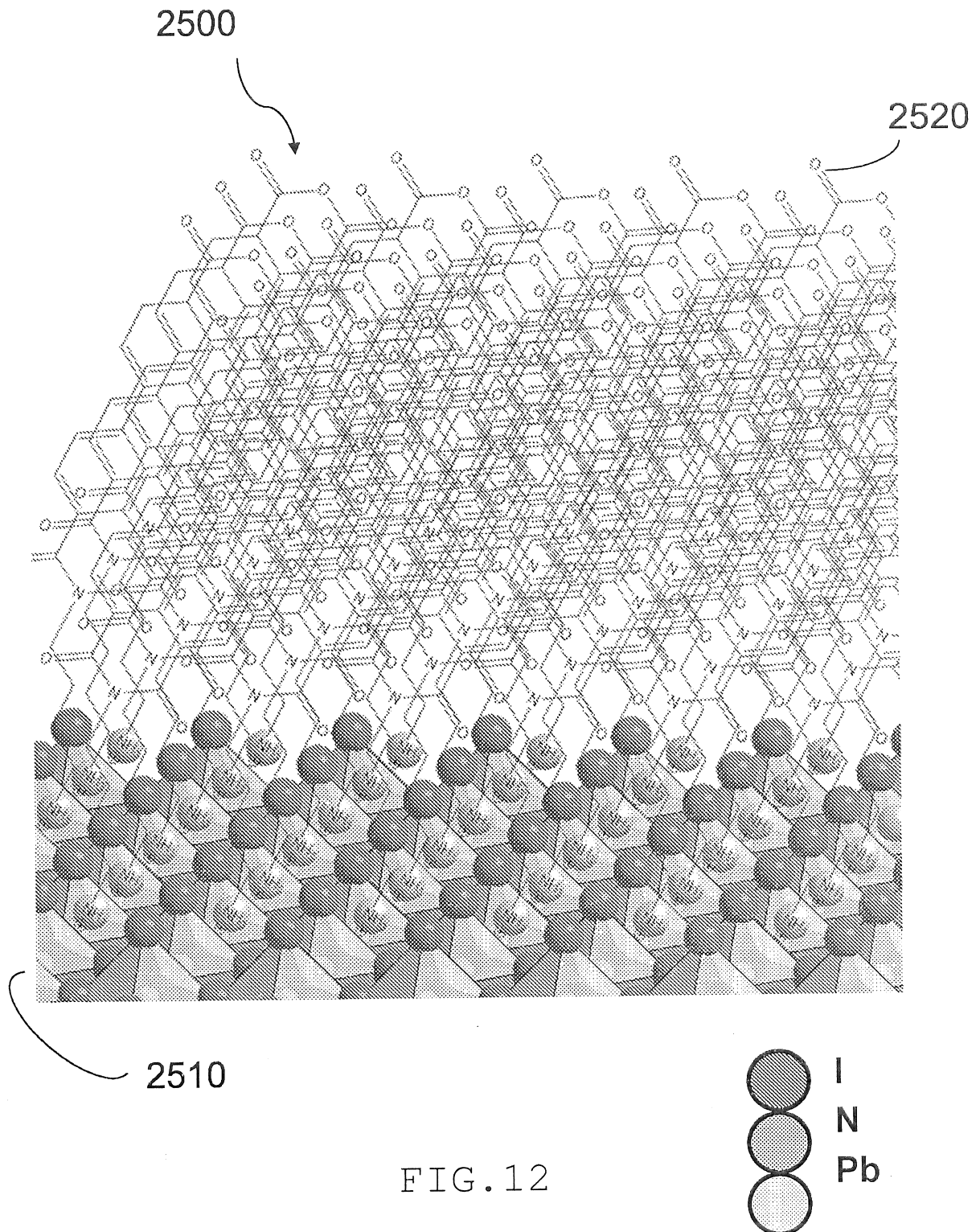


FIG. 11D



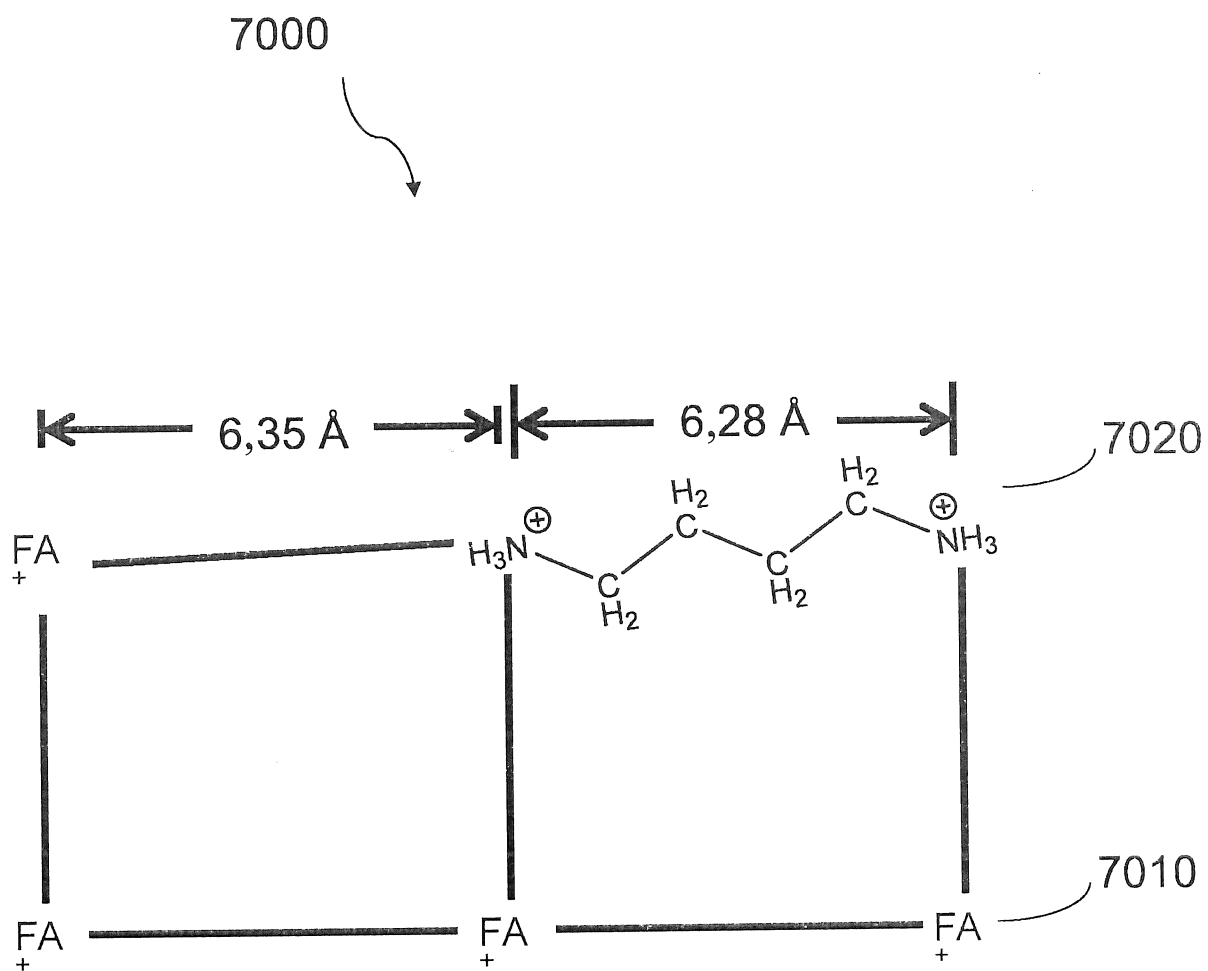


FIG. 13

0 %mol DABI
5 %mol DABI
10 %mol DABI
20 %mol DABI

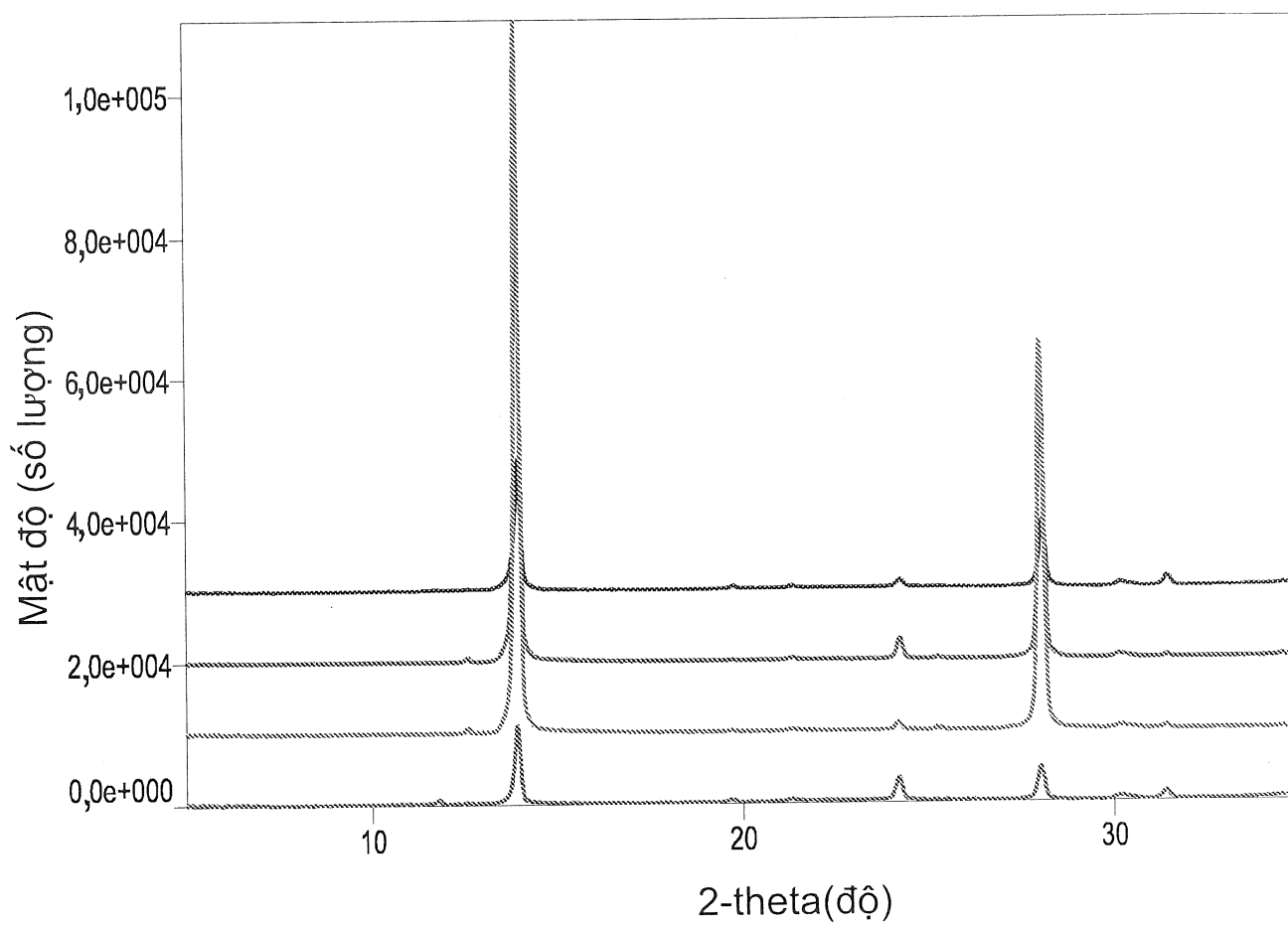


FIG. 14

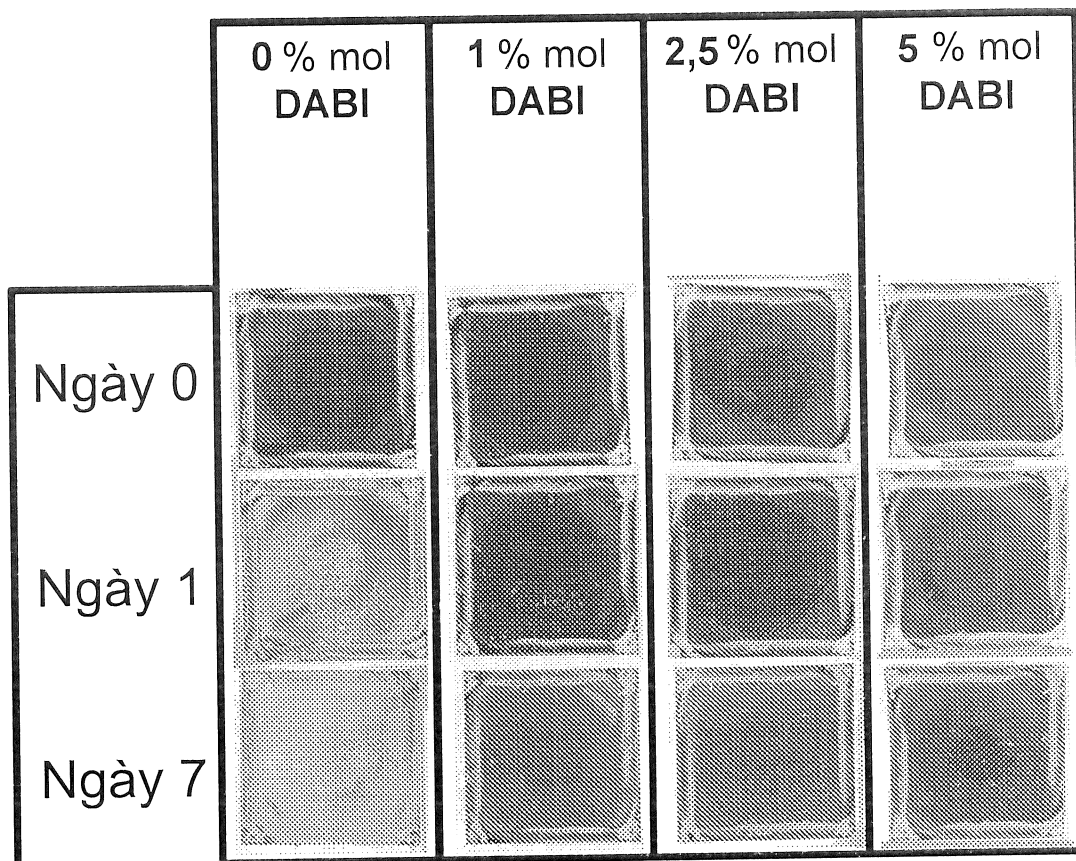
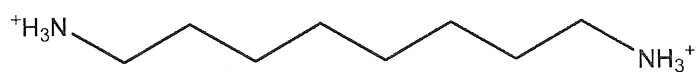
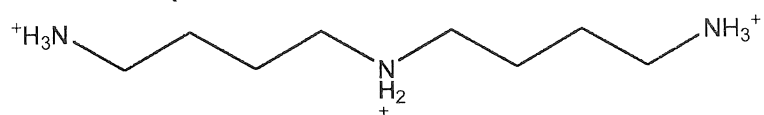


FIG.15

1,8-Diamoni Octan



Bis(4-aminobutyl)-amoni



Tris(4-aminobutyl)-amoni

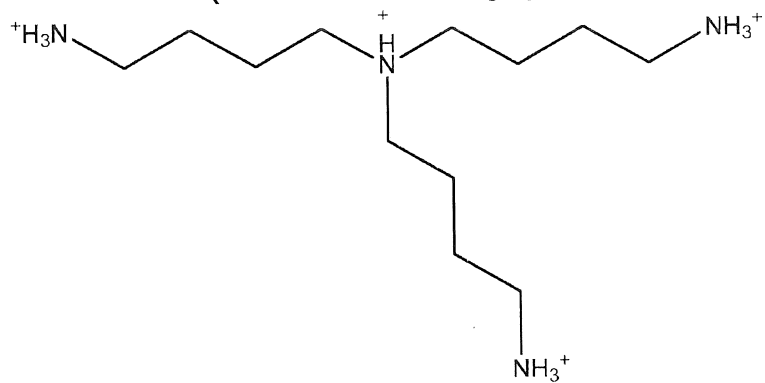


FIG. 16

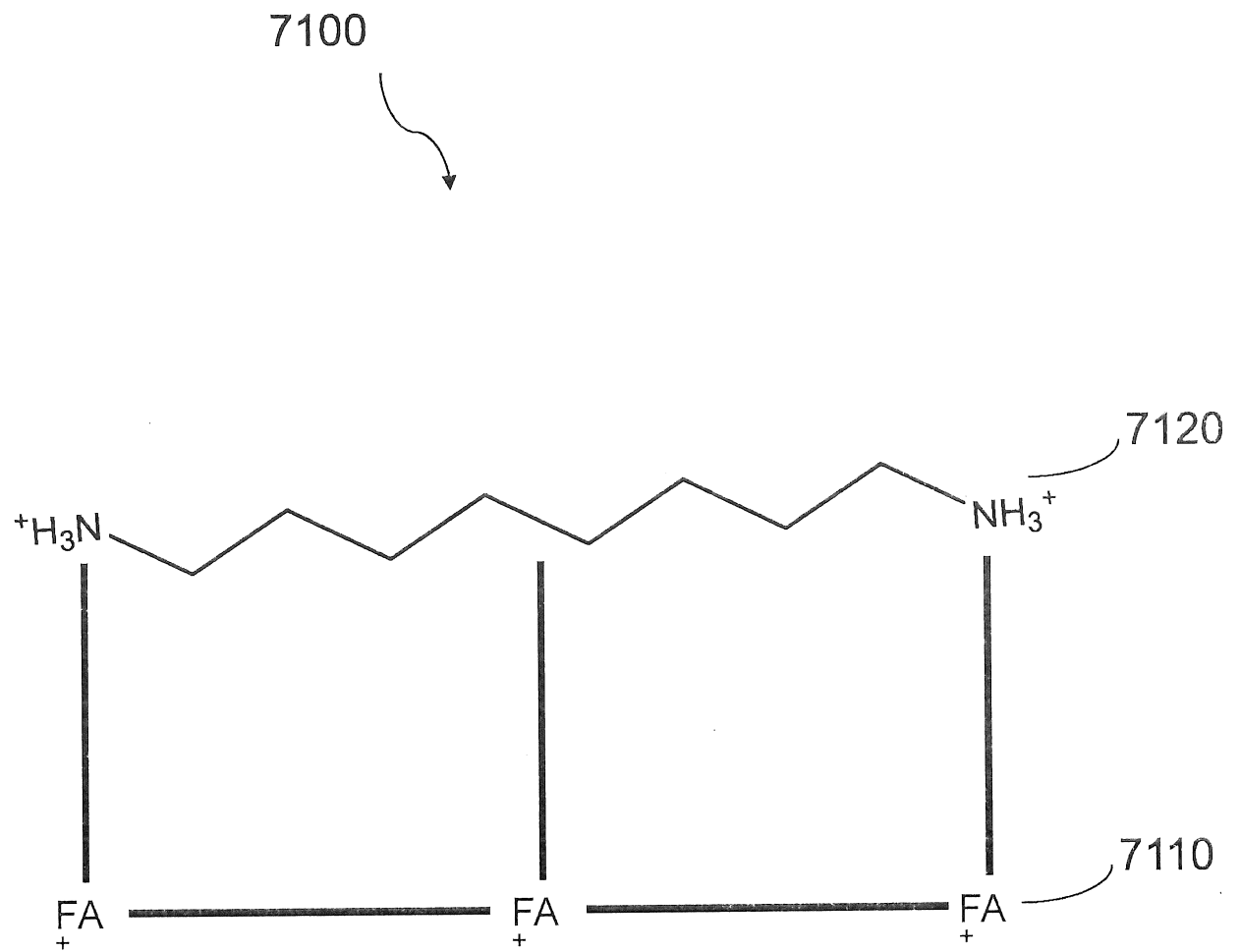


FIG. 16A

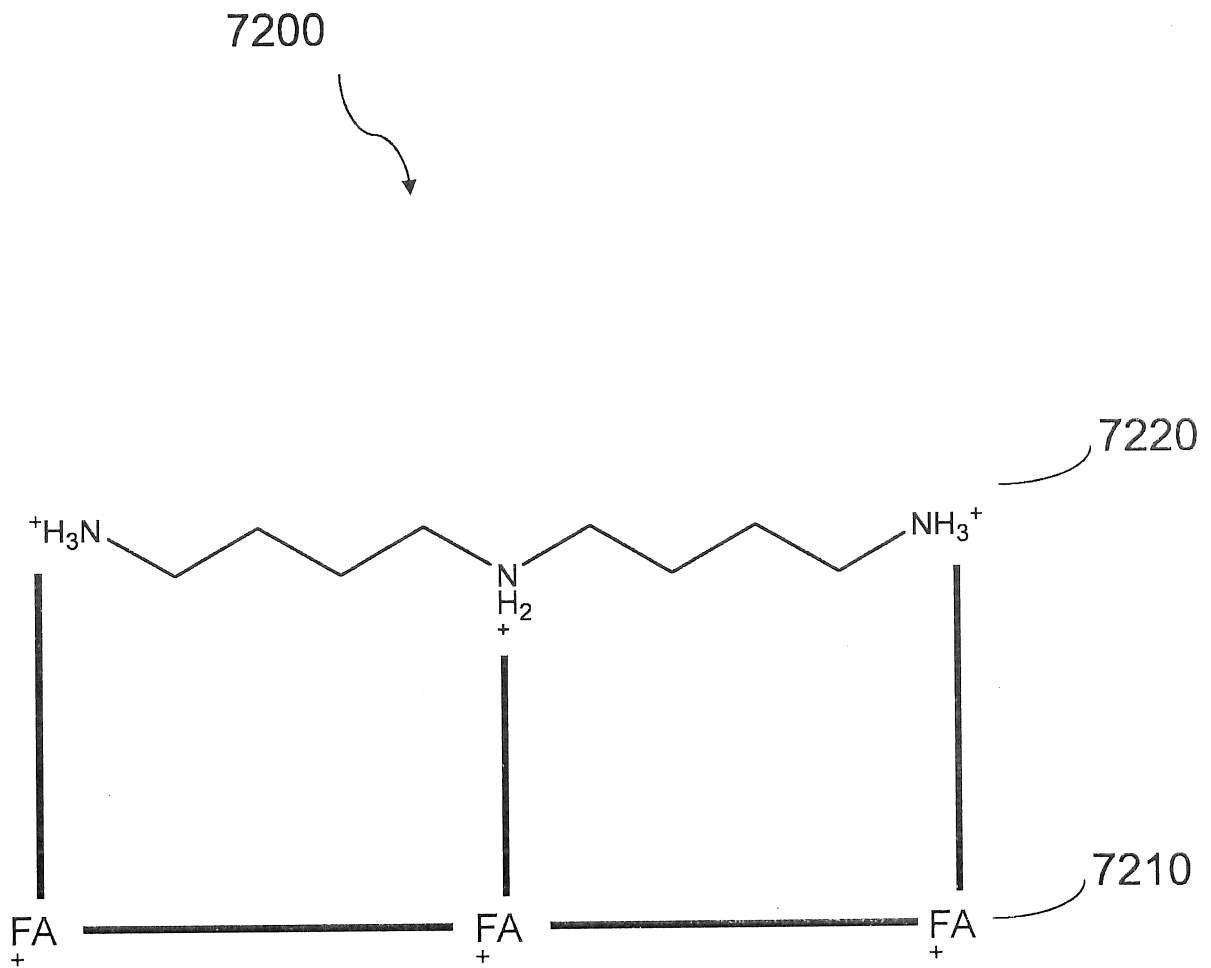


FIG. 16B

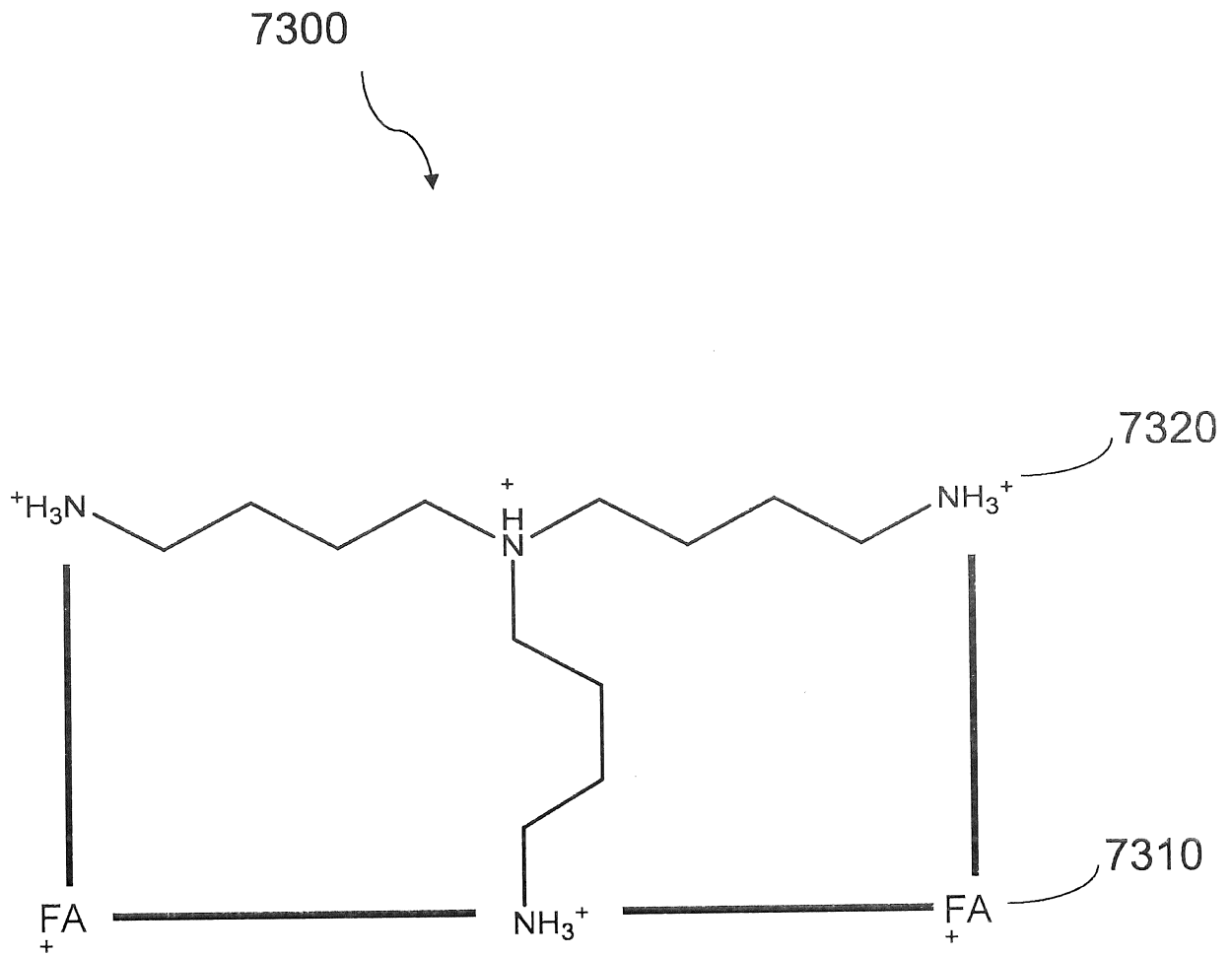


FIG. 16C

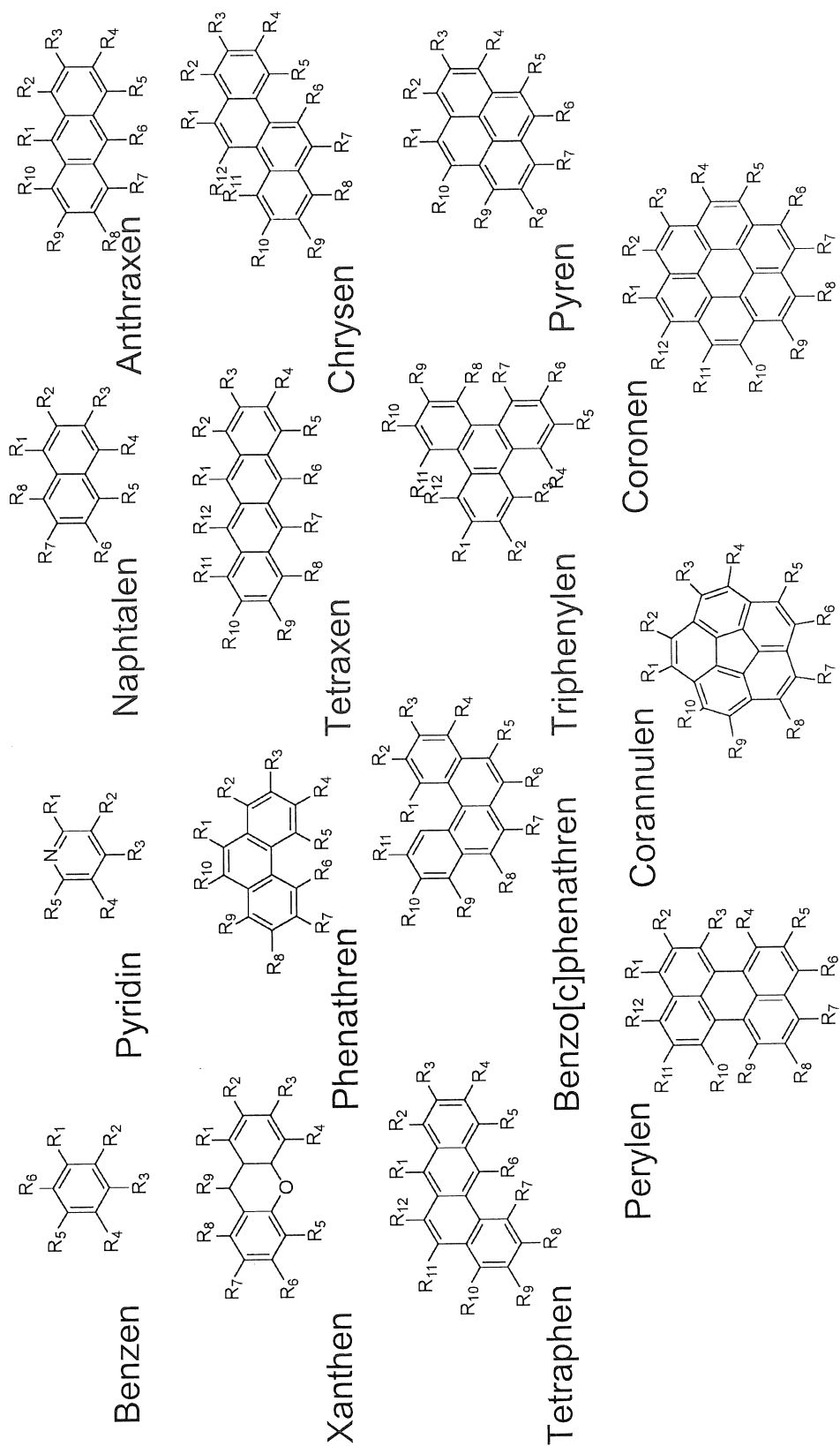


FIG.17

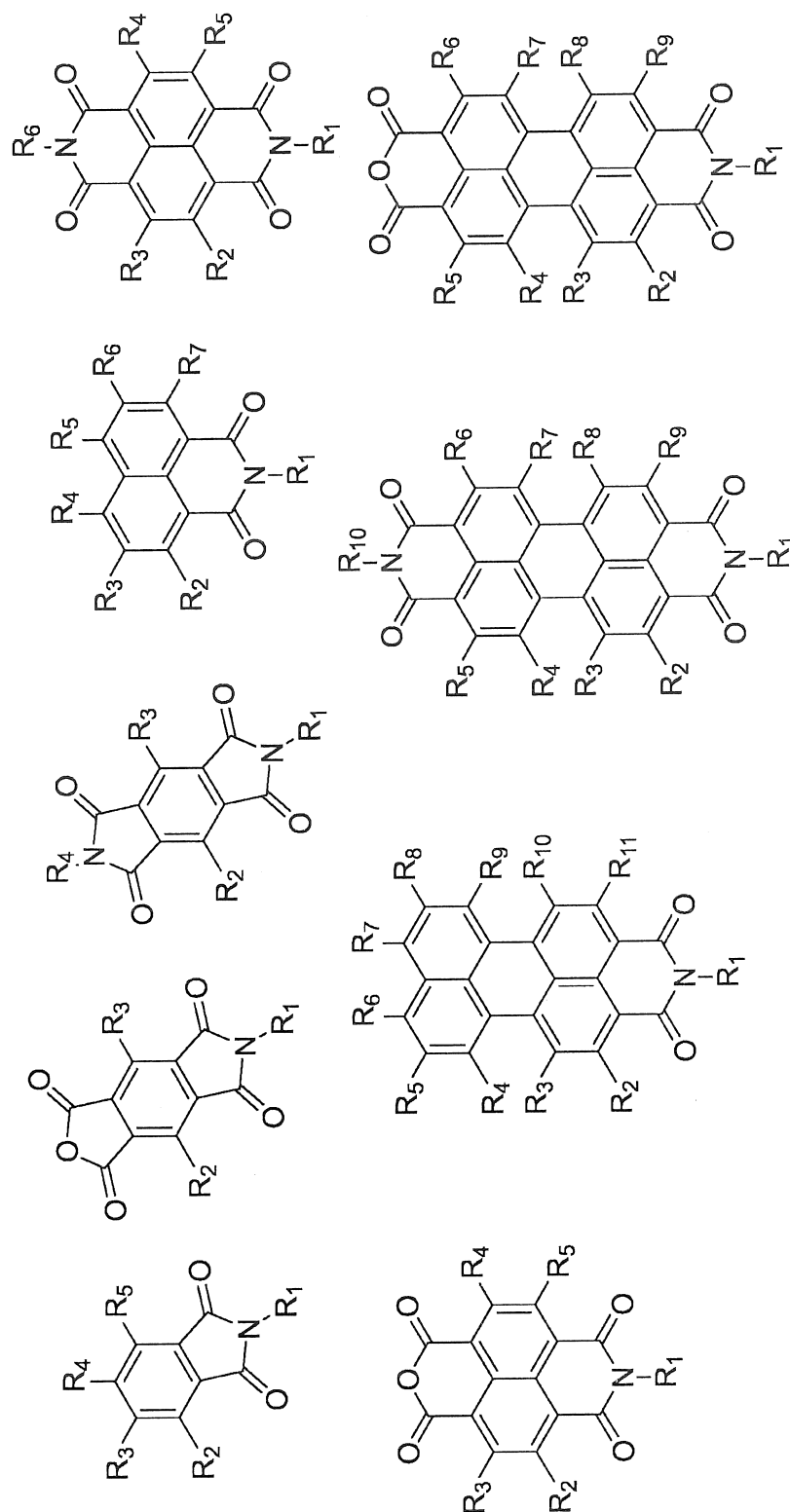


FIG. 18

26/52

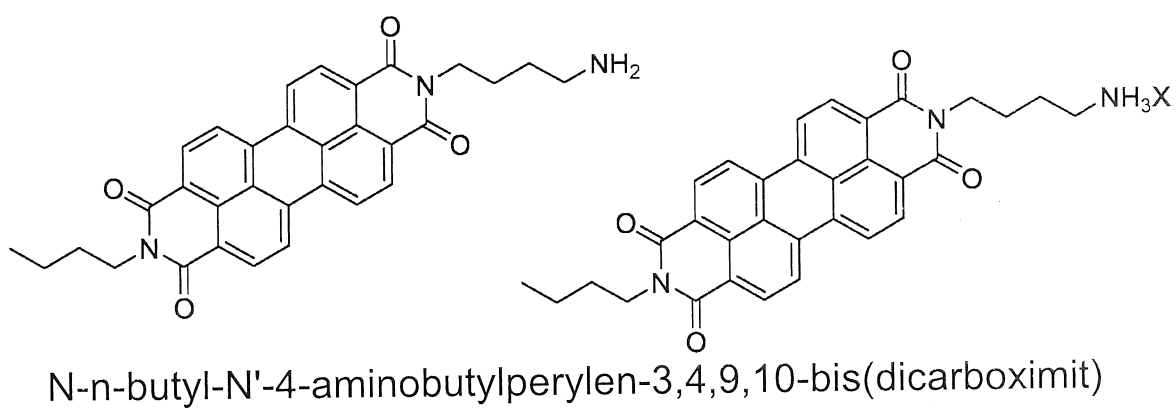
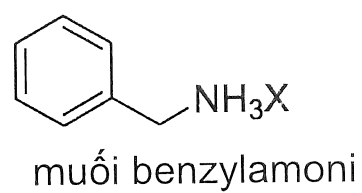
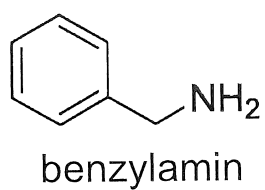
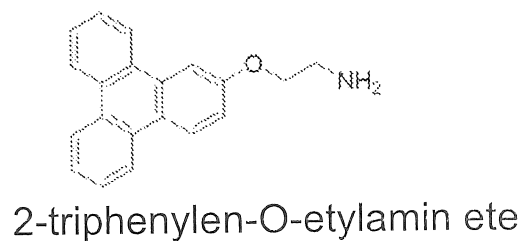
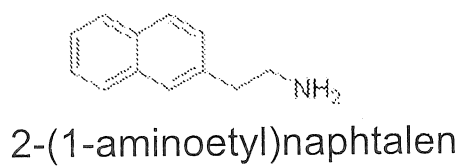
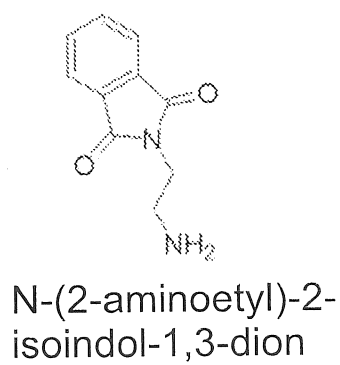
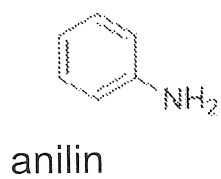
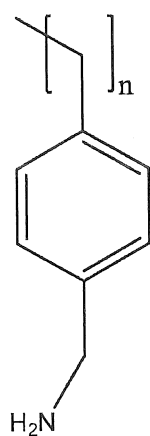


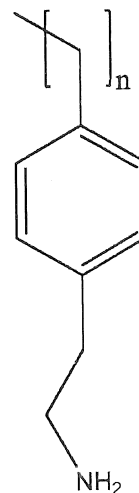
FIG. 19

27/52

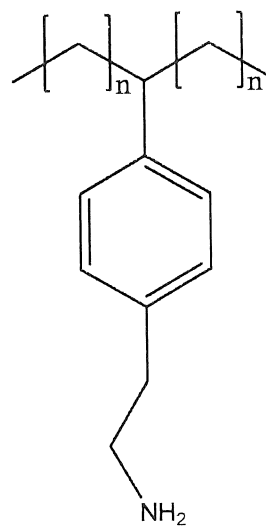
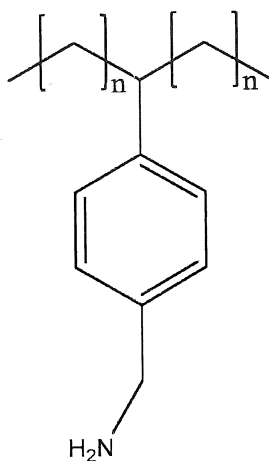
1-(4-alkylphenyl)metanamin



1-(4-alkyl-2-phenyl)etanamin

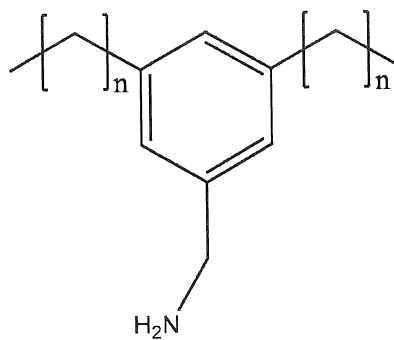


1-(4-alkylphenyl)metanamin

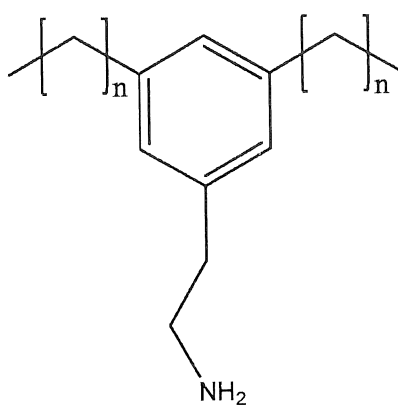


1-(4-alkyl-2-phenyl)etanamin

FIG. 20



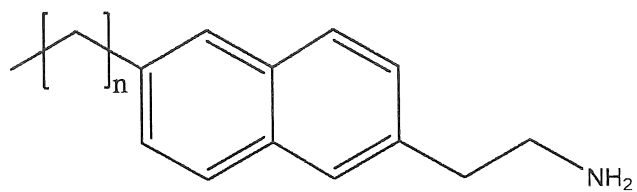
1-(3-alkyl-5-alkylphenyl)metanamin



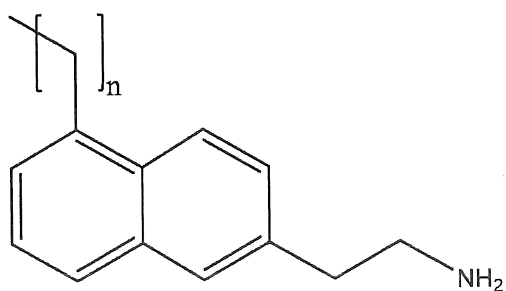
1-(3-alkyl-5-alkyl-2-phenyl)etanamin

FIG. 21

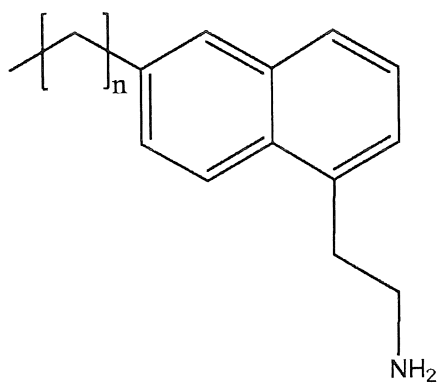
29/52



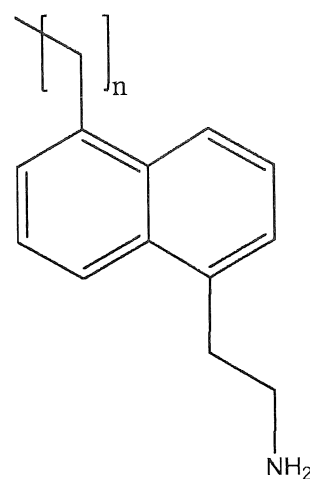
2-Ethylamin-7-alkyl-Naphtalen



2-Ethylamin-6-alkyl-Naphtalen



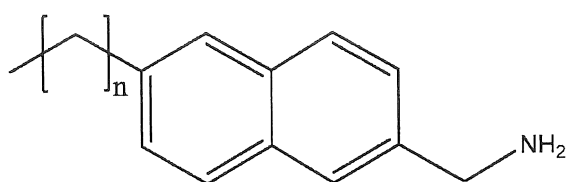
1-Ethylamin-7-alkyl-Naphtalen



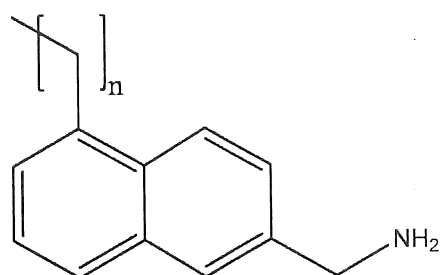
1-Ethylamin-6-alkyl-Naphtalen

FIG. 22

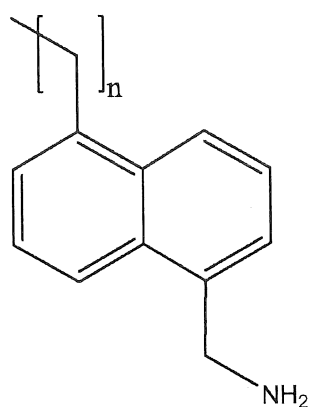
30/52



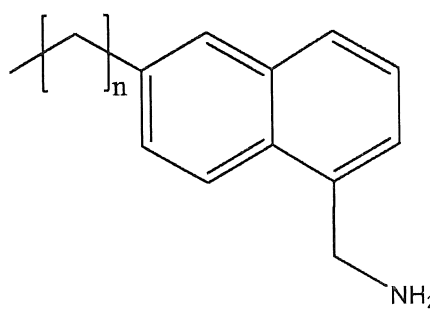
2-Metylamin-7-alkyl-Naphtalen



2-Metylamin-6-alkyl-Naphtalen

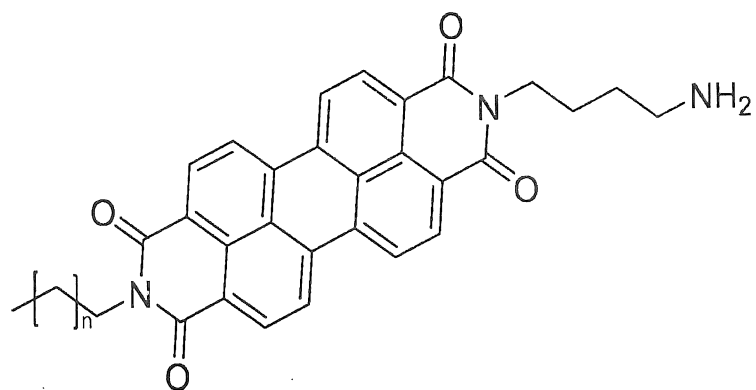


1-Metylamin-6-alkyl-Naphtalen



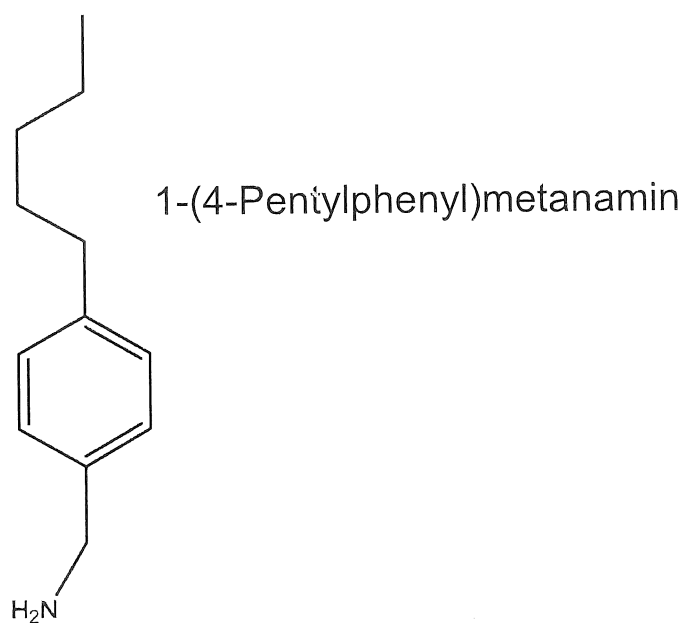
1-Metylamin-7-alkyl-Naphtalen

FIG. 23



N-n-aminoalkyl-N'-4-aminobutylperylene-3,4,9,10-bis(dicarboximide)

FIG. 24



1-(3-Butyl-5-methoxybutylphenyl)metanamin

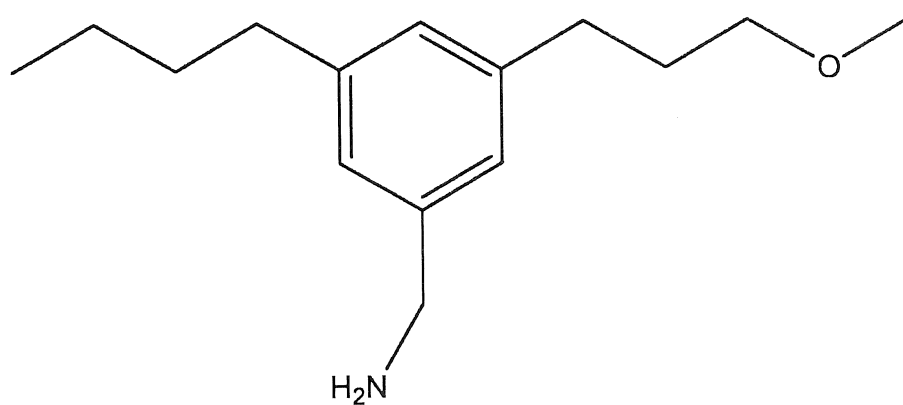
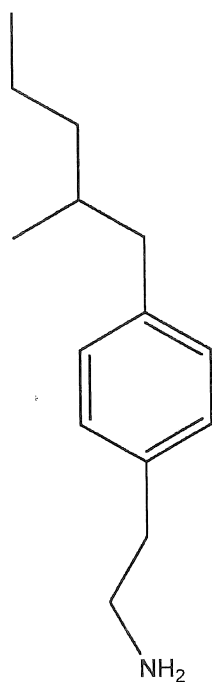
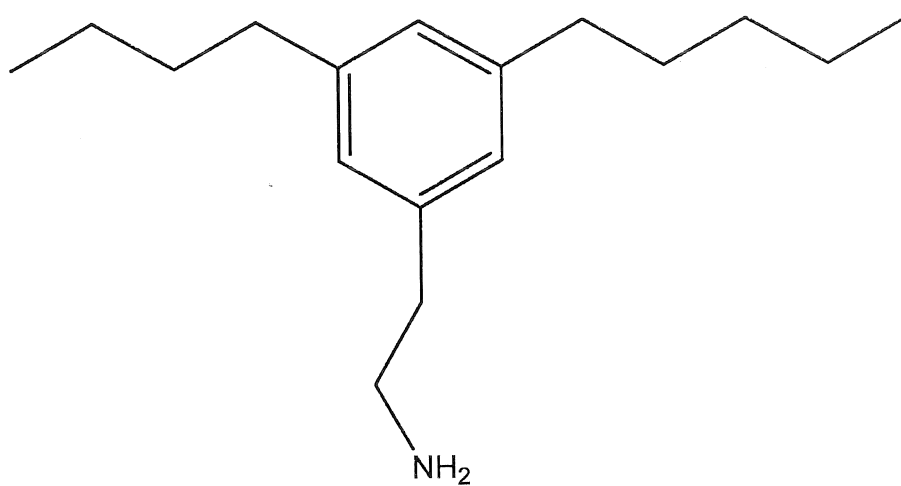


FIG. 25

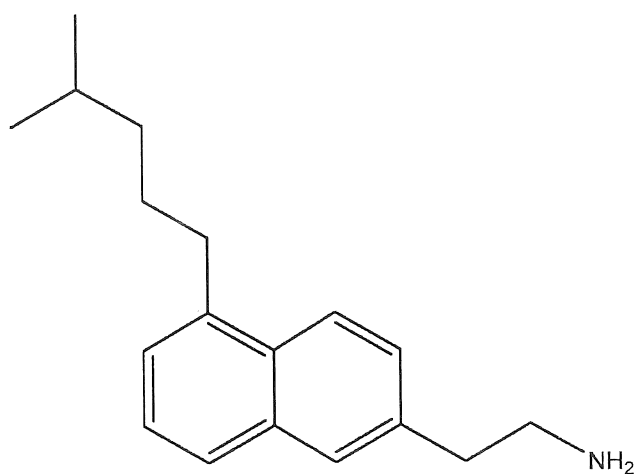


1-[4-(2-Methylpentyl)-2-phenyl]etanamin

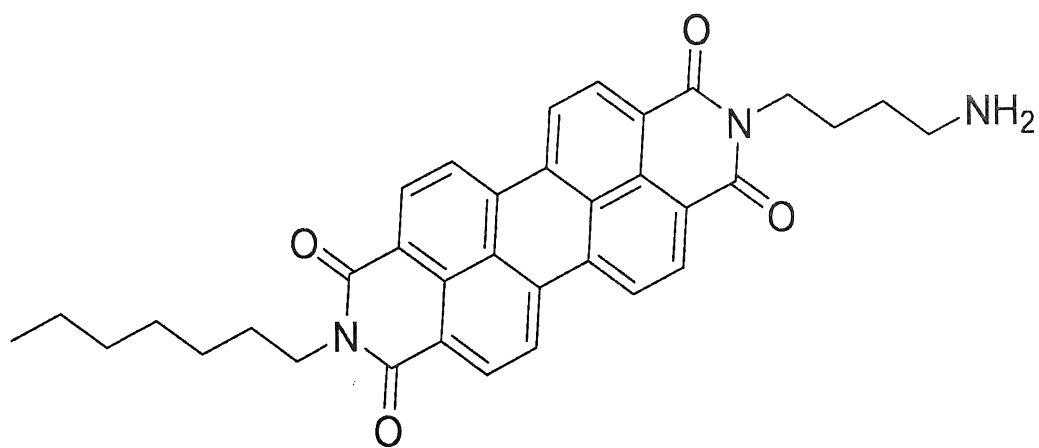


1-(3-Butyl-5-pentyl-2-phenyl)etanamin

FIG. 26



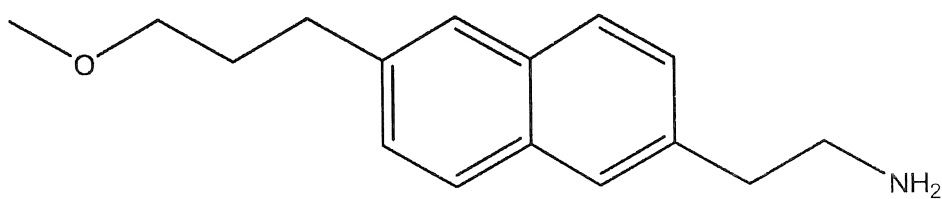
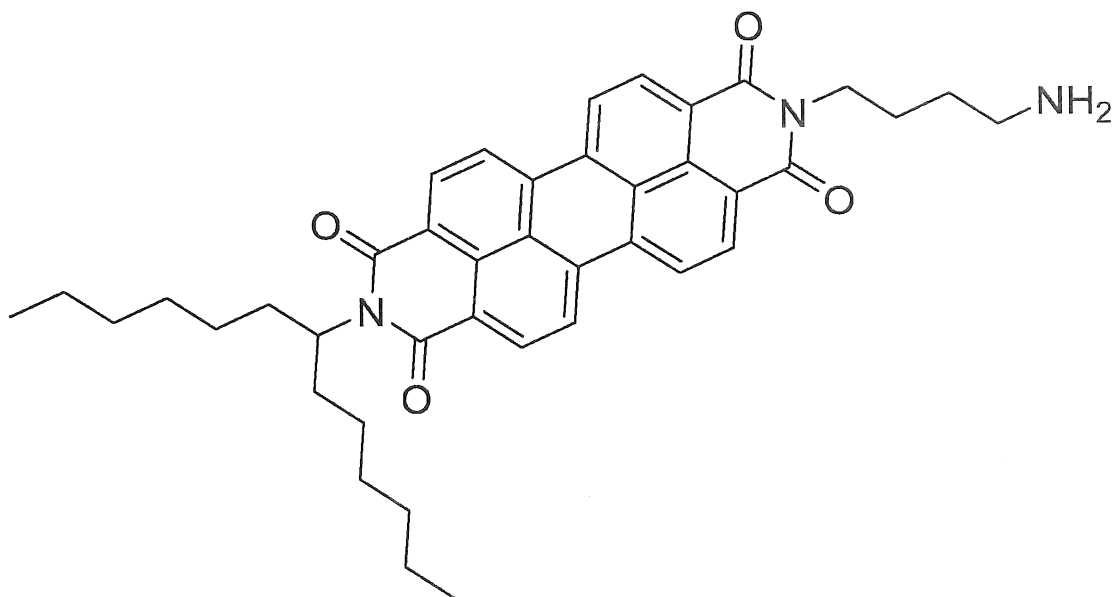
2-(5-[4-Methylpentyl]-2-naphthyl)etanamin



N-n-heptyl-N'-4-aminobutylperylene-3,4,9,10-bis(dicarboximide)

FIG. 27

N-7-tridexyl-N'-4-aminobutylperylene-3,4,9,10-bis(dicarboximit)



2-(6-[3-Metoxylpropyl]-2-naphtyl)etanamin

FIG. 28

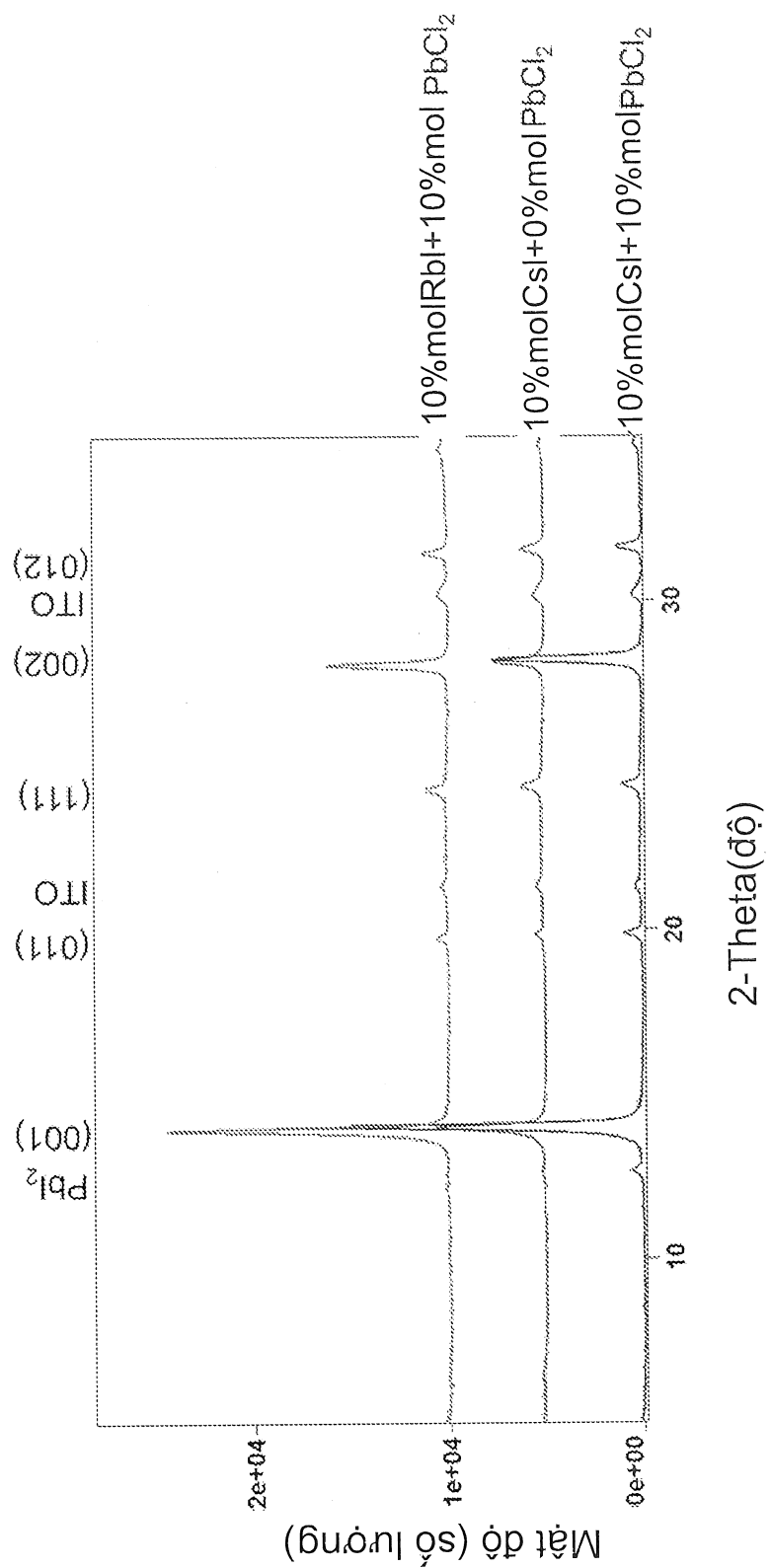


FIG. 29

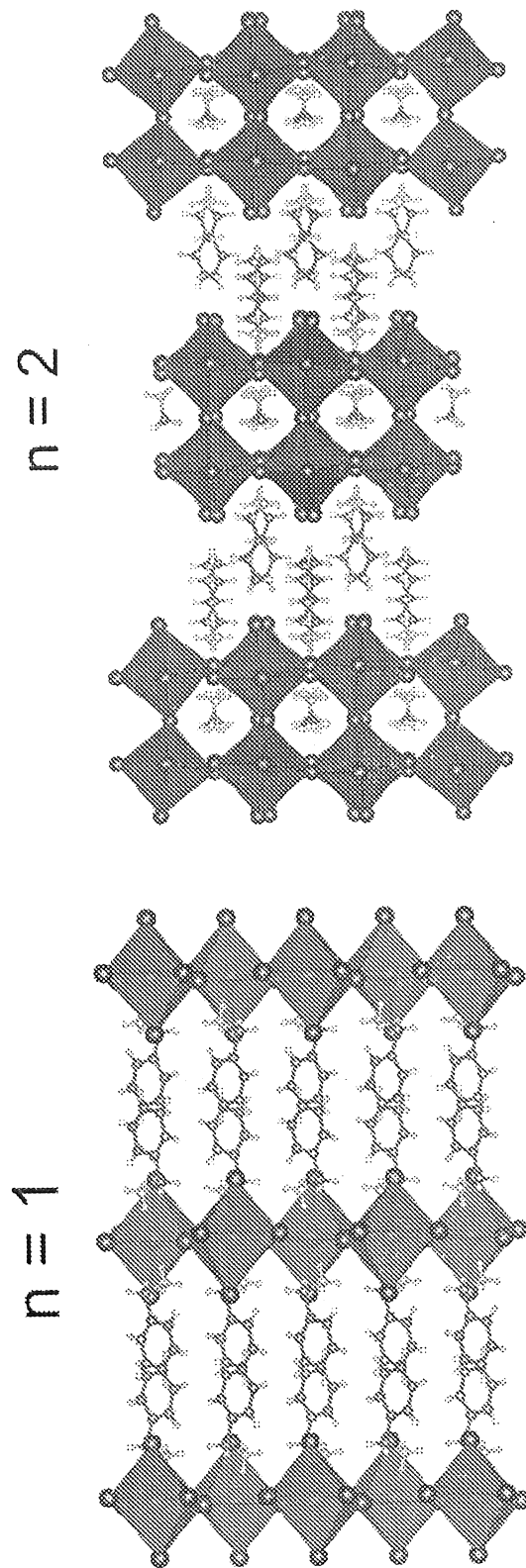
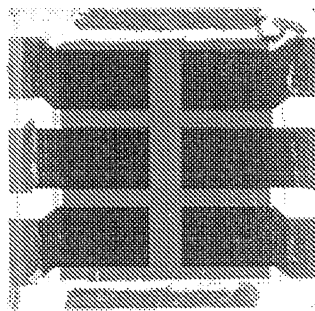


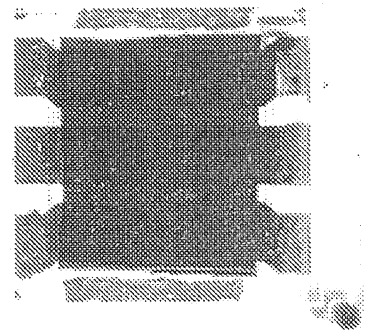
FIG. 30

Hình ảnh quang học

3105
w/o BzAl



3110
w/ BzAl



Hình ảnh phát quang

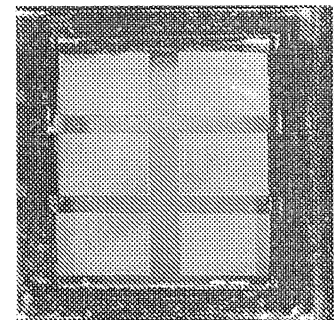
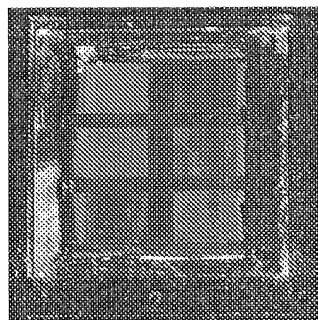
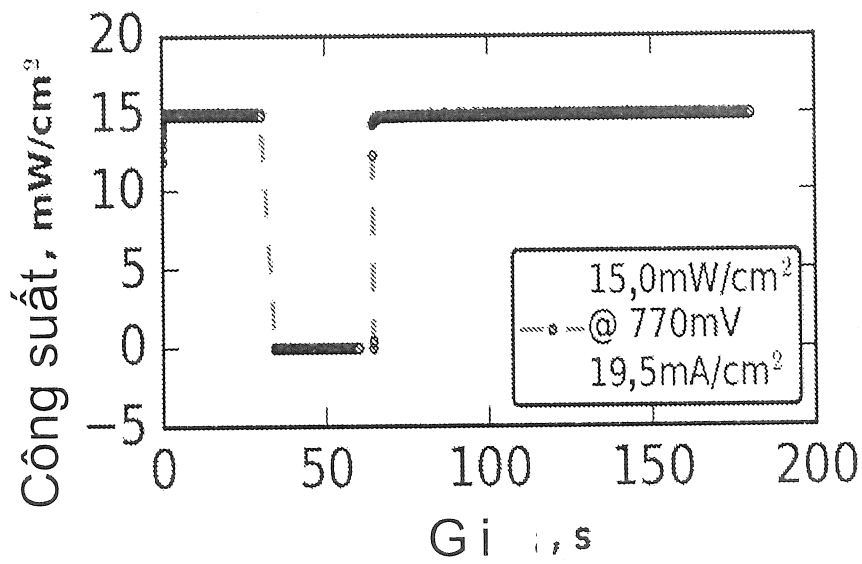


FIG. 31

3205 w/o BzAl



3210 w/ BzAl

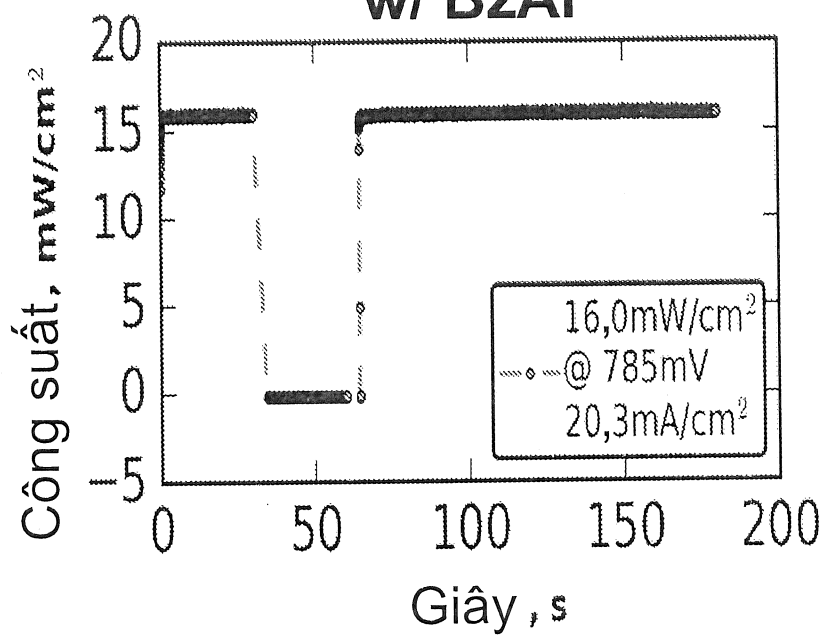


FIG. 32

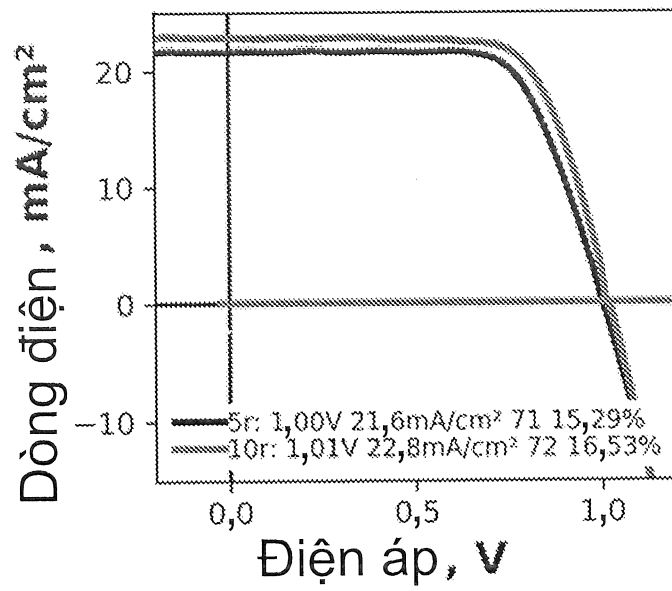
**3320**

FIG. 33

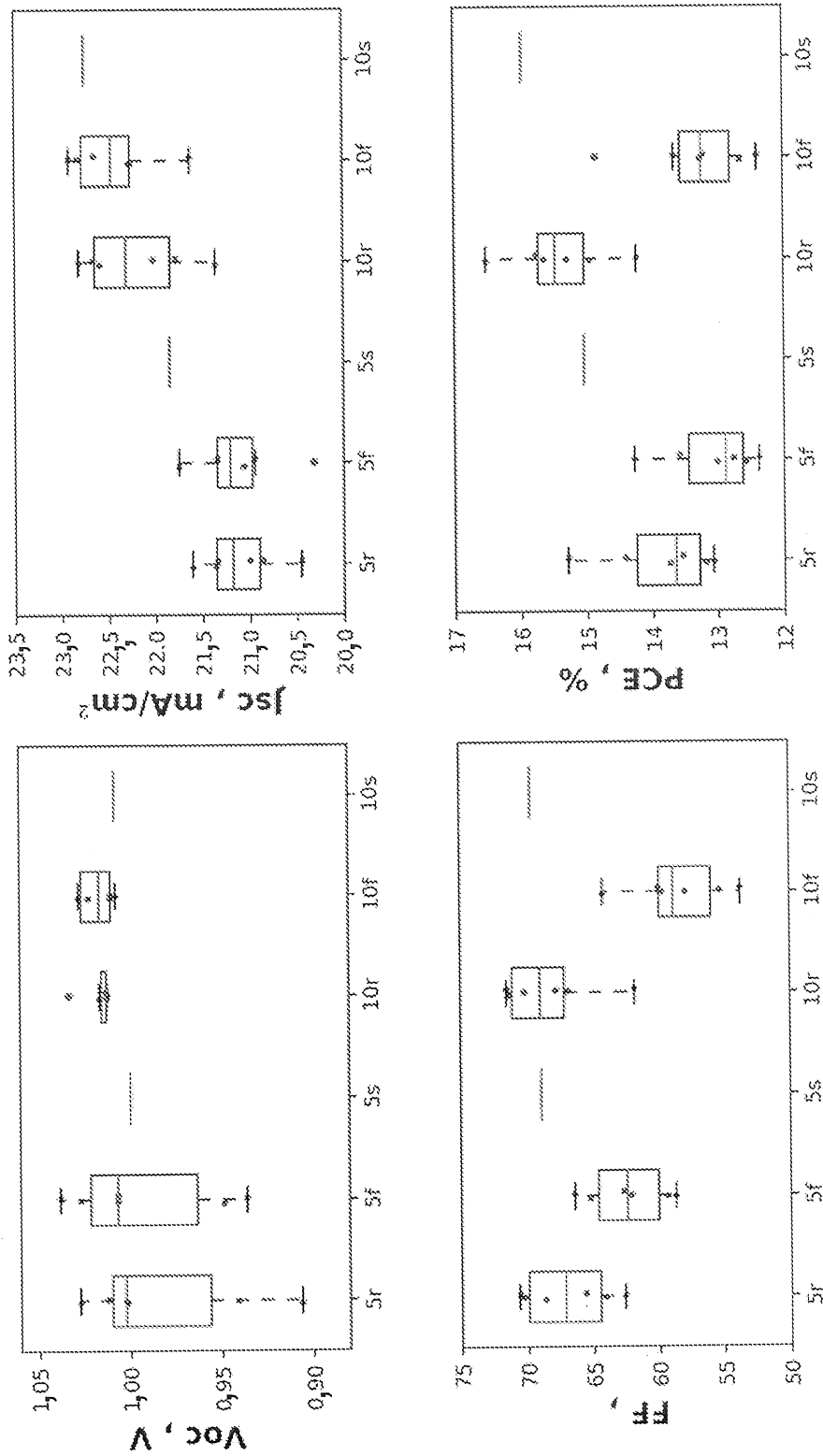


FIG. 34

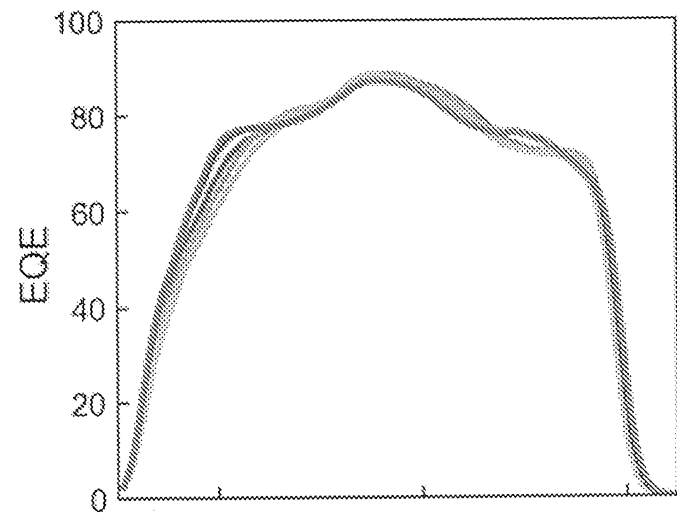
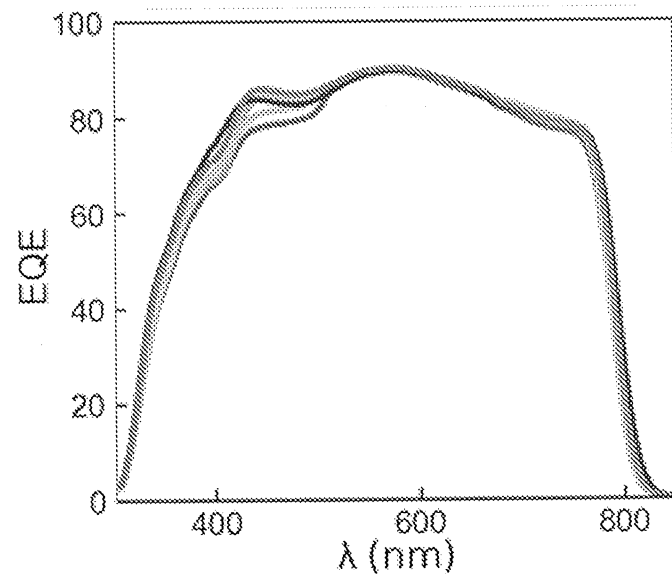
**3505****3510**

FIG. 35

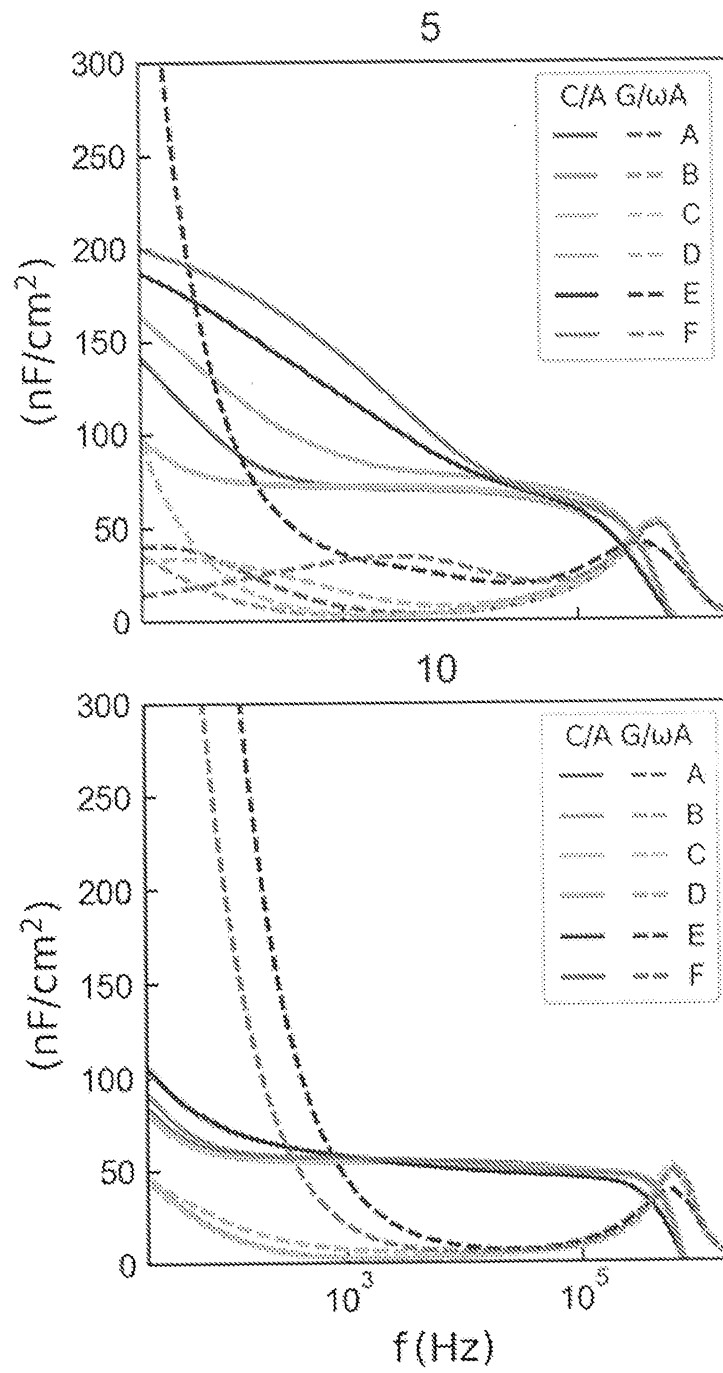


FIG. 36

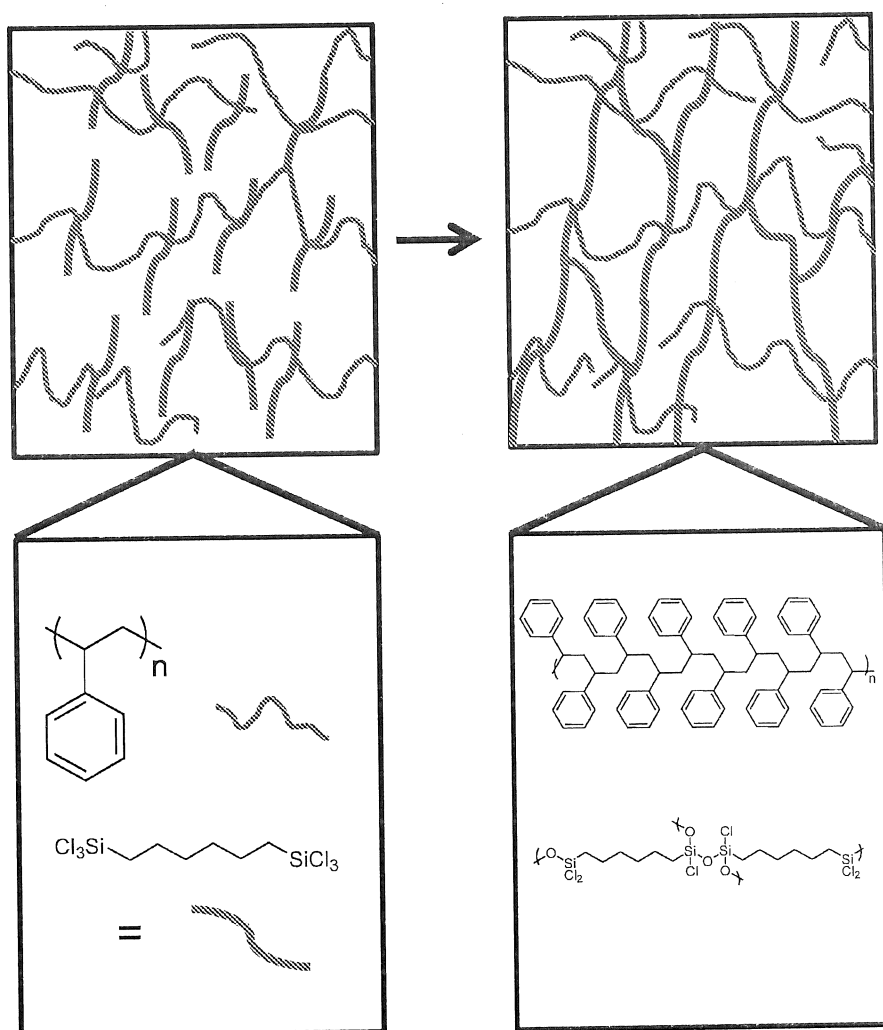


FIG. 37

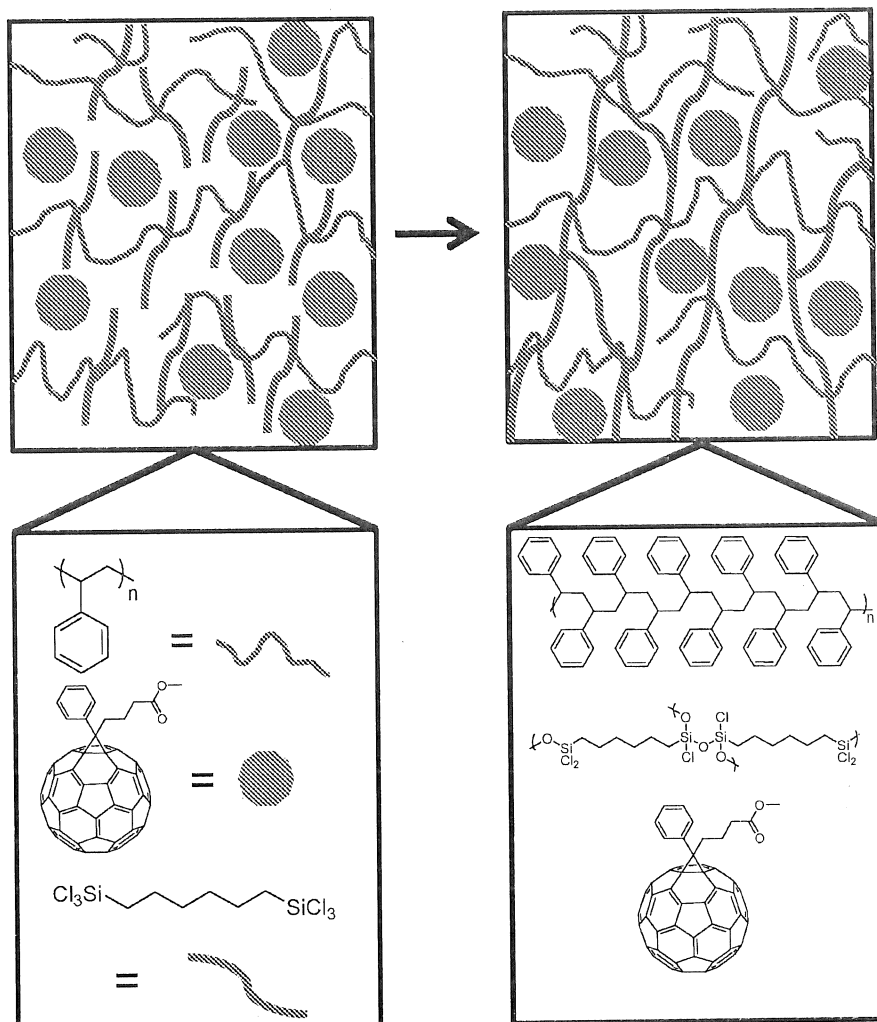


FIG. 38

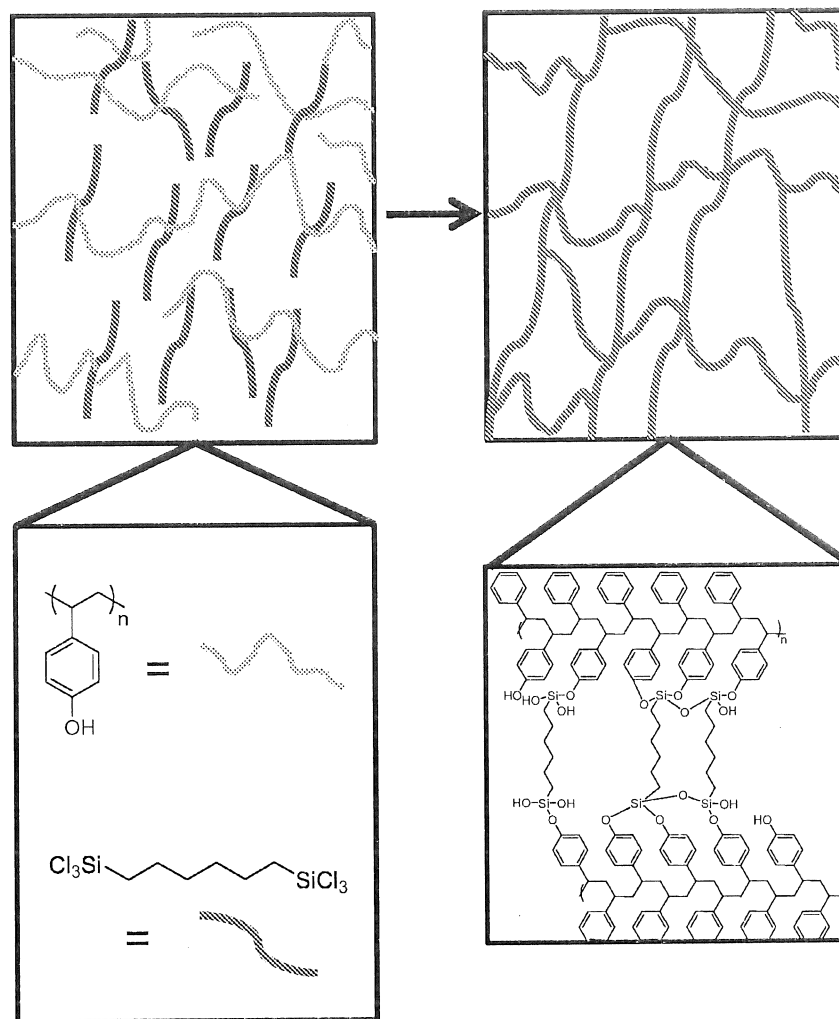


FIG. 39

FIG. 40

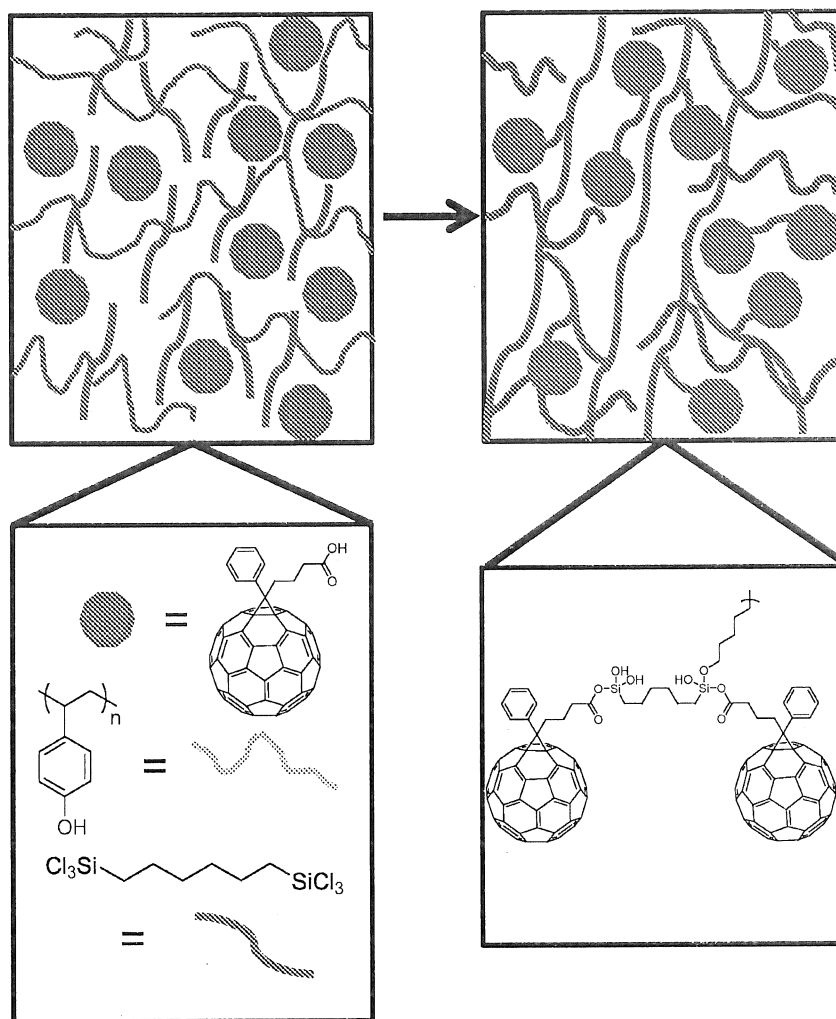


FIG. 41

49/52

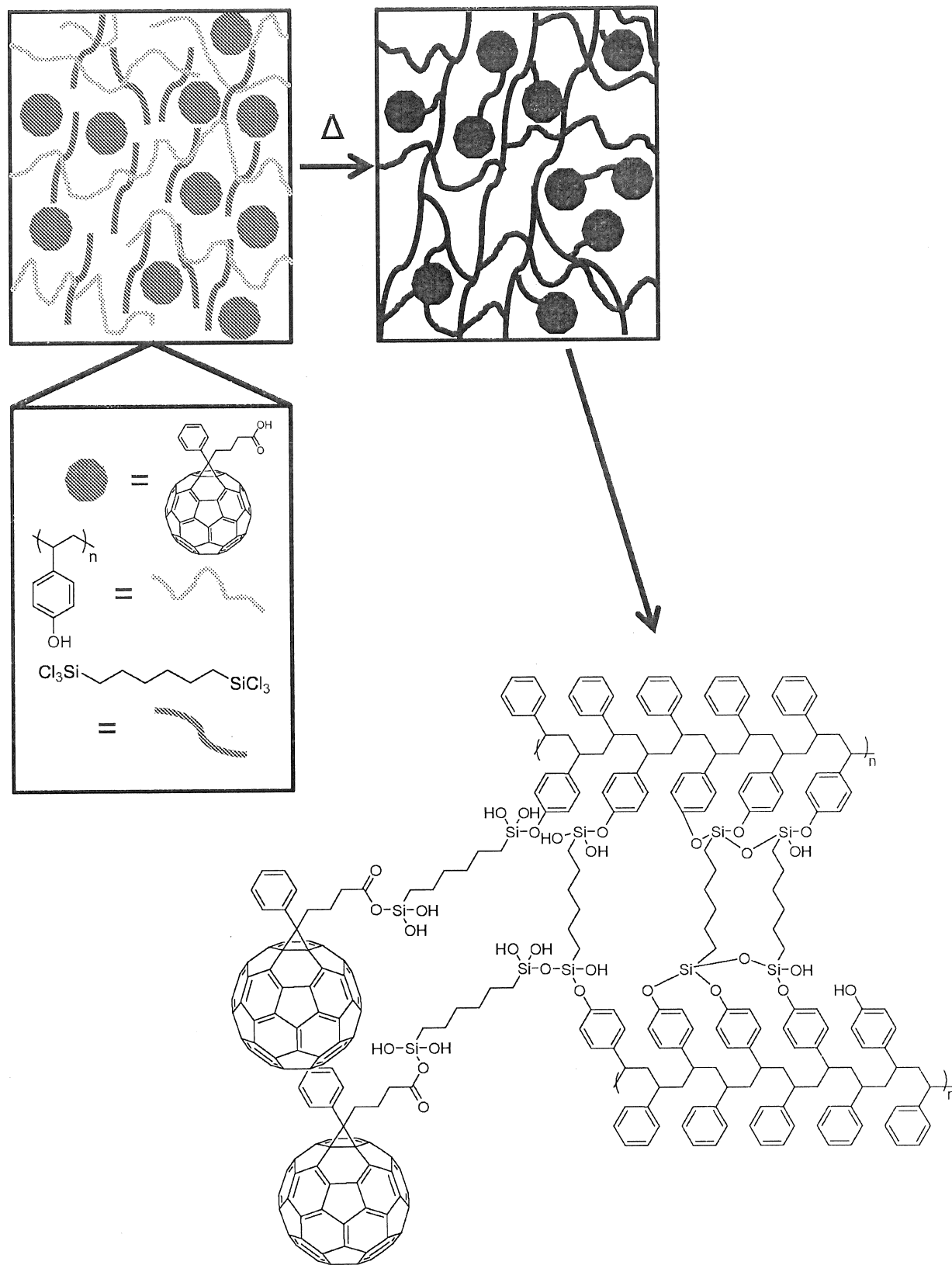


FIG. 42

50/52

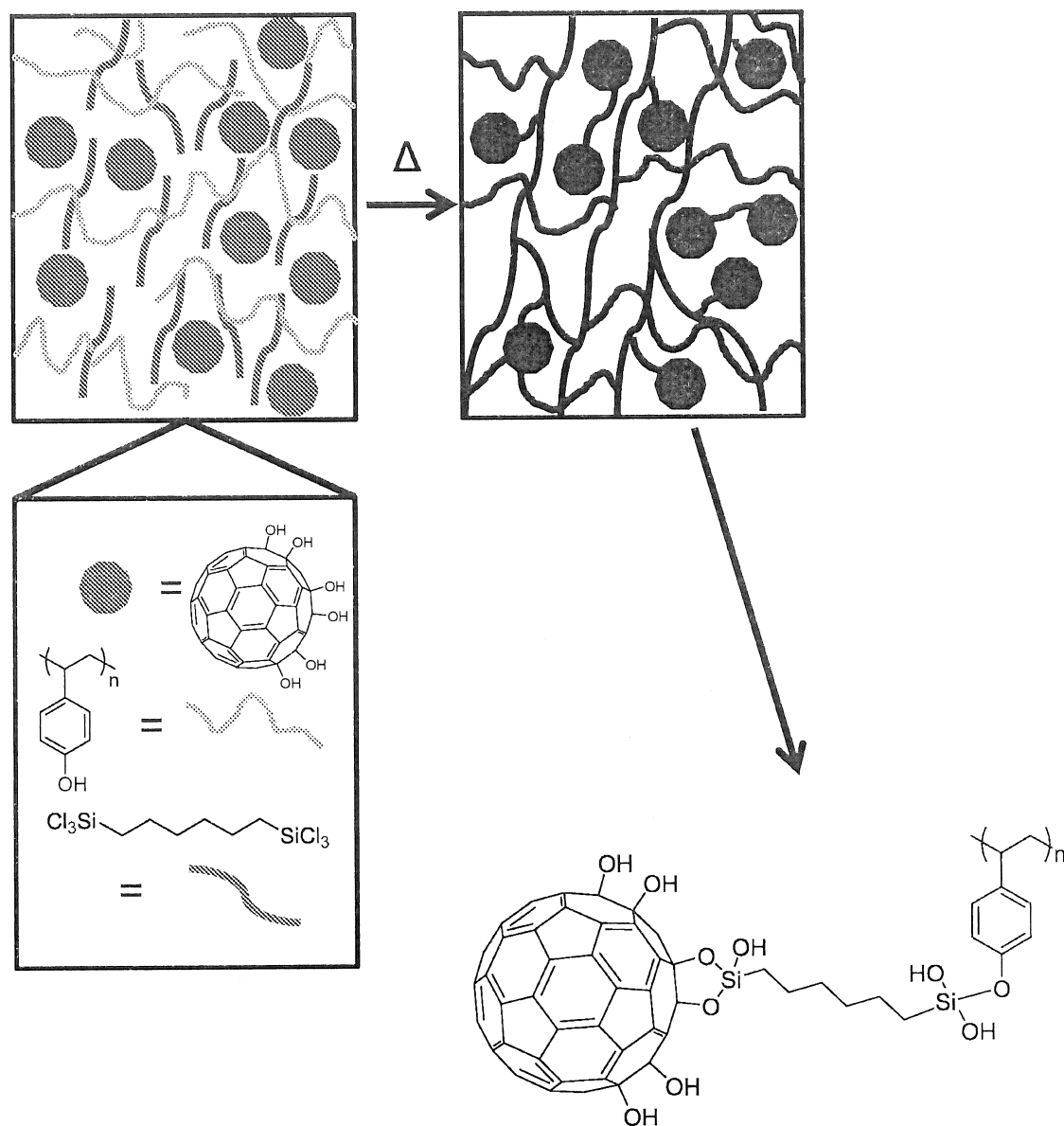


FIG. 43

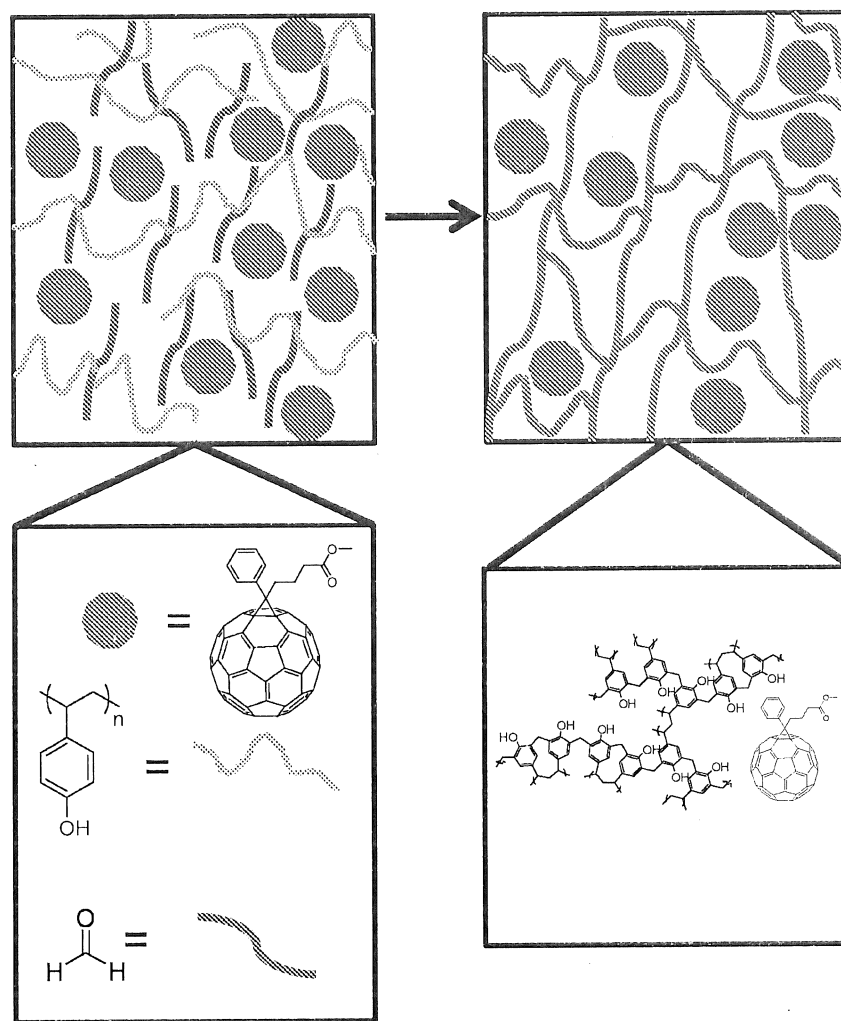


FIG. 44

