

以低毒性溶劑與銅電極策略提升鈣鈦礦太陽能電池穩定性

Improving the Stability of Perovskite Solar Cells through Low-Toxicity Solvents and Copper Electrodes

黃詩翰	李玟葶	鄒騫德	查厚錦	劉舜維*	黃裕清*
明志科大	明志科大	明志科大	明志科大	明志科大	明志科大
有機研究中心	有機研究中心	有機研究中心	有機研究中心	有機研究中心	有機研究中心
					明志科大
					材料工程系

摘要

鈣鈦礦太陽能電池因兼具高光電轉換效率(PCE)及可利用溶液製程製備等優勢，被視為次世代光伏技術中極具潛力。然而，製程安全性與元件長期穩定性仍是其實際應用的主要瓶頸。在製程安全性方面，傳統製程多採用高致癌性的 N,N-二甲基甲醯胺(DMF)，不利於進行工業化生產；在穩定性方面，銀(Ag)電極易與鈣鈦礦材料發生界面反應，並在高溫或高濕條件下產生金屬擴散與腐蝕現象，導致元件性能劣化。本研究採用二甲基亞砜(DMSO)溶劑系統減少傳統有毒溶劑使用，提升製程安全性並優化薄膜成形品質；同時，採用銅(Cu)取代銀作為金屬電極，探討其蒸鍍速率對元件光電性能與長期穩定性的影響。研究結果顯示，銅電極元件在高溫高濕環境下表現出卓越的穩定性，其 PCE 僅下降約0.2%。此外，經紫外光固化樹脂封裝後，元件在 65°C/65% RH 的嚴苛條件下進行熱老化測試，持續80小時仍能維持初始效率。結果證實，結合綠色溶劑與銅電極製程，能有效提升鈣鈦礦太陽能電池的熱穩定性與操作可靠度。

關鍵詞：鈣鈦礦太陽能電池、銅電極、穩定性、綠色製程

Abstract

Perovskite solar cells (PSCs) are considered a highly promising next-generation photovoltaic technology due to their high power conversion efficiency (PCE) and solution-processability. However, process safety and long-term device stability remain critical bottlenecks for their commercialization and mass production. Regarding process safety, traditional fabrication relies heavily on N,N-dimethylformamide (DMF), which is highly carcinogenic and poses risks to industrial-scale application. In terms of stability, silver (Ag) electrodes tend to undergo interfacial reactions with perovskite materials, leading to metal diffusion and corrosion under high-temperature and high-humidity conditions, which significantly degrades device performance. This study employs a pure dimethyl sulfoxide (DMSO) single-solvent system to replace conventional toxic solvents, thereby enhancing process safety and film formation stability. Furthermore, copper (Cu) is introduced as the metal electrode to replace silver, and the impact of its evaporation rate on photovoltaic performance and long-term stability is investigated. The results indicate that PSCs with Cu electrodes exhibit exceptional stability under high-temperature and high-humidity environments, with a PCE decrease of only approximately 0.2%. Moreover, after encapsulation with UV-curable resin, the devices were subjected to thermal aging tests at 65°C and 65% relative humidity (RH). Even after 80 hours of continuous aging, the Cu-electrode devices effectively maintained their initial PCE performance. This study demonstrates that the combination of a green solvent system and copper electrodes offers distinct

advantages in enhancing the thermal stability and operational reliability of perovskite solar cells.

Keywords: perovskite solar cells, copper electrode, stability, green solvent

1. 前言

近年來，隨著全球能源需求持續成長以及淨零碳排目標的推動，開發高效率、低成本且具環境永續性的太陽能技術已成為材料科學與能源工程領域的重要研究方向。在眾多新興光伏技術中，鈣鈦礦太陽能電池(Perovskite Solar Cells, PSCs)因具備高光吸收係數、長載子擴散長度、能隙可調性高以及可採用低溫溶液製程等優勢，其功率轉換效率短短時間由 3.8% 提升至超過 27%，展現出足以與傳統矽晶電池競爭的潛力。[1-5]由於鈣鈦礦薄膜的成膜品質對元件效率與穩定性具有決定性影響，製程方法的選擇成為研究核心。目前常見的一步法(One-step method)雖製程簡便，但高度依賴抗溶劑滴加時機，在大氣環境下極易因環境波動導致薄膜出現針孔缺陷或覆蓋性不足，且其晶體成核與成長過程高度耦合，限制了其在大面積製程與產業化應用中的重現性。[6-9]

相較之下，兩步法(Two-step method)製程透過先沉積無機金屬鹵化物層，再引入有機鹵化物進行轉化反應，成功實現了成核與成長過程的分離控制。[10-12]此策略能精確調控基層的厚度與形貌，在薄膜均勻性與結晶一致性方面具備顯著優勢，能有效抑制未反應殘留相及晶界缺陷，被公認為在大面積元件製作與產業化連續製程中更具應用潛力。隨著二步法的技術成長，其光電轉換效率已經可以達到25%，與一步法相近。[13]除此之外，也被證實在大面積與疊層元件的應用領域上。[14, 15]然而，兩步法的成膜品質高度依賴溶劑系統對前驅物的溶解動力學控制。傳統製程多採用 N,N-二甲基甲醯胺(DMF)或其混合溶劑，雖然能有效調控薄膜成形，但 DMF 的高致癌性與揮發性不符合大規模生產的環保趨勢，且混合溶劑在非均勻蒸發過程中容易導致局部過飽和，進而造成晶粒尺寸分佈不均或表面粗糙等結構缺陷。[16-19]

除了製程安全性外，長期操作穩定性仍是限制 PSCs 商業化的主要瓶頸。[20-22]除了鈣鈦礦吸收

層本身的劣化，貴金屬電極的界面穩定性亦是關鍵。金(Au)與銀(Ag)電極極易與從鈣鈦礦層遷移出的鹵離子發生界面反應，例如銀電極會反應生成碘化銀(AgI)，導致界面退化與元件性能劇降。[23]此外，在潮濕或光照條件下，金屬原子的擴散會進一步加速吸收層分解，導致功率轉換效率迅速衰減。這些限制突顯了開發低成本、高穩定性之替代金屬電極與綠色溶劑製程的迫切需求。[24]基於上述研究背景，本研究聚焦於開發在大氣環境下製備的高穩定性鈣鈦礦太陽能電池。研究核心在於採用低毒性之單一溶劑系統取代傳統的 DMF 基溶劑，以降低製程風險並提升操作環境下的成膜穩定性。此外，本研究亦進一步探討不同金屬電極材料(Ag 與 Cu)及其蒸鍍沉積條件對元件光電性能與長期穩定性的影響，旨在透過溶劑改良與電極材料優化，解決鈣鈦礦電池在熱老化與濕熱環境下的退化問題，提升其產業應用的可靠度。

2. 實驗步驟:元件製備流程

首先使用超音波清洗器依序以玻璃清潔劑對摻氟氧化錫基板(Fluorine-doped Tin Oxide, FTO)進行擦拭後，進行30分鐘紫外線臭氧處理以提升親水性。接著製備溶膠-凝膠法氧化鎳前驅溶液(Nickel Oxide, NiO_x)，將 0.124 mg 醋酸鎳溶解於 1 ml 乙醇中，並加入磁石攪拌，等至完全溶解後加入 30 μ l 乙醇胺(Ethanolamine, MEA)至乙醇中，並預熱試片使用加熱板至150 °C，以 4000 rpm 旋塗 20 秒進行沉積，形成均勻的 NiO_x 前驅物薄膜，隨後以甲醇擦邊並於 320 °C 下進行退火處理30分鐘，得到 NiO_x 的薄膜。接著配置介面修飾層的羧基化聚三己基噻吩(P3HT-COOH)溶液，使用1m 8wt% 的 P3HT-COOH，並加入 1ml 二甲基亞砜(DMSO)，以4000 rpm 20 sec 進行旋轉塗佈。接下來製備無機層溶液分別為 1M 與1.3M，將5mol% 碘化銫(Cesium Iodide, CsI) 與 碘化鉛(Lead Iodide, PbI₂) 混合溶解於 DMF 與 DMSO 的混合溶劑中(體積比 9:1)。將基板預熱至 70° C 後，以3000 rpm 旋塗並退火 1 分鐘。接著配製有機層溶液，將10

mg 甲胺鹽酸鹽 (Methylammonium Chloride, MACl) 與 90 mg 甲脒碘鹽 (Formamidinium Iodide, FAI) 溶解於 1.428 ml 異丙醇 (Isopropanol, IPA) 中，並在旋塗過程中滴入該溶液以完成晶相轉化。隨後進行表面鈍化，將 26 mg 四乙基氯化銨 (Tetraethylammonium Chloride, TEACl) 的 4 ml 的 IPA 作為原液，再取 100 μ l 原液與 900 μ l IPA 混和為稀釋液，旋塗於試片上，並在手套箱中進行 150 $^{\circ}$ C 退火處理 40 秒。配置電子傳輸層溶液 20 mg 苯基-C61-丁酸甲酯 ([6,6]-Phenyl-C61-butyrac acid methyl ester, PCBM) 分散至 1 ml 氯苯 (Chlorobenzene, CB) 中，並以超音波震盪機震盪 30 分鐘，並在手套箱中，以轉速 1000 rpm 旋塗 20 秒，配置功函數層溶液 3 mg 浴銅靈 (Bathocuproine, BCP) 分散至 6 ml 2,2,2-三氟乙醇 (2,2,2-Trifluoroethanol, TFE) 溶液中，並在手套箱中，以轉速 3000 rpm 旋塗 20 秒。最後，於功函數層上依序熱蒸鍍 Ag 或 Cu 金屬電極，完成元件製作。完整的元件製作流程示意圖，如圖 1 所示。

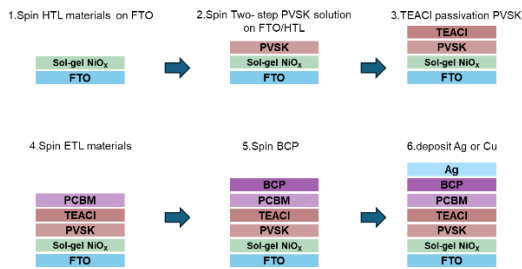


圖 1、元件製作流程圖。

3. 結果與討論

為降低鈣鈦礦前驅液中常用且具毒性的 DMF 之使用量，本研究以 DMSO 作為替代溶劑，系統性比較 DMF:DMSO(9:1) 混合溶劑與純 DMSO 系統對鈣鈦礦薄膜成長行為及元件表現的影響，其化學結構如圖 2 所示。

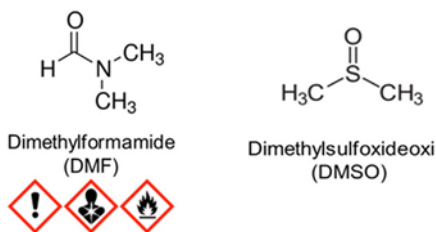


圖 2、DMF 與 DMSO 之化學結構式與危害圖示比較。

由於 DMSO 具有顯著較高的動力黏度 (1.996 mPa·s)，相較於 DMF (0.802 mPa·s)，其溶劑揮發速率與結晶動力學預期將對成膜過程產生明顯影響。首先，以 FTO / NiO_x / P3HT-COOH / Perovskite / TEACl / PCBM / BCP / Ag 作為標準元件結構，在相同旋塗轉速條件 3000 rpm 下比較不同溶劑系統的元件表現。如圖 3 及表 1 結果顯示，採用 1.0 M 純 DMSO (無機層溶劑) 前驅液所製備之元件 PCE 可達 12.40%，其開路電壓 (V_{oc}) 為 1.00 V，短路電流密度 (J_{sc}) 為 19.96 mA cm⁻²，整體表現與 DMF:DMSO(9:1) 混合溶系統相當，甚至略有提升。

表 1、不同溶劑系統之鈣鈦礦元件表現

Solvent	V _{oc} (V)	J _{sc} (mA/cm ²)	FF (%)	PCE (%)
DMF:DMSO (9:1)	1.00±0.04	19.00±0.60	61.64±1.18	11.67±0.90
DMSO	1.00 ± 0.06	19.96±1.28	61.78±6.56	12.40±1.99

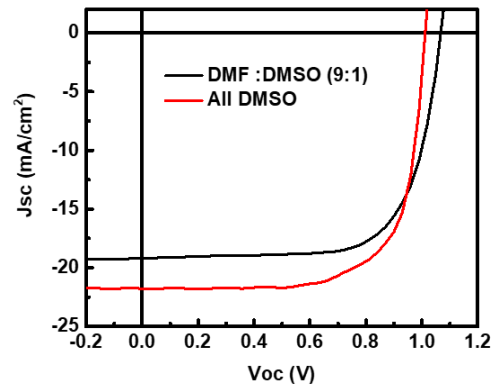


圖 3、不同溶劑系統下其元件的 J-V 曲線圖。

值得注意的是，儘管 DMSO 具有較高黏度，在高旋塗轉速條件下，純 DMSO 系統仍可形成較薄且均勻的薄膜。所形成之鈣鈦礦層厚度分別約為 424 nm 與 569 nm，此結果顯示，在高轉速條件下，高黏度 DMSO 仍可藉由形成穩定的中間相，促進溶劑的均勻移除，進而有利於致密且均勻之薄膜生長。為進一步探討溶劑對結晶行為的

影響，如附圖4之 X 光繞射(XRD)結果顯示，使用不同前驅物濃度和溶劑系統製備的鈣鈦礦 (PVSK) 薄膜的 XRD 圖譜，為 1.0 M PVSK 的 DMSO 溶液、1.3 M PVSK 的 DMSO 溶液以及 1.3 M PVSK 的 DMF:DMSO (9:1) 混合溶液。與 1.0 M DMSO 溶液中的薄膜相比，1.3 M PVSK 的 DMSO 溶液中的薄膜的衍射峰強度顯著增強，然而，當旋塗轉速降低至 1000 rpm 時，純 DMSO 系統所製備之元件效率出現明顯下降，在低轉速條件下薄膜邊緣出現鋪展不完全與厚度不均的現象。此現象推測源於高黏度 DMSO 在溶劑移除速率不足時限制了前驅液流動性，導致局部溶液堆積與非均勻結晶，進而劣化界面品質與載子傳輸行為，使 V_{oc} 與 J_{sc} 顯著降低。

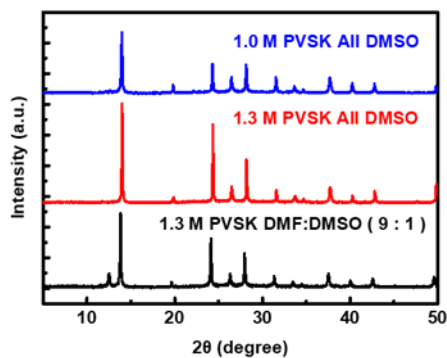


圖4、不同溶劑系統下的鈣鈦礦晶體結構 X 光繞射圖。

綜合以上結果可知，DMSO 作為 DMF 的低毒性替代溶劑，在適當的旋塗轉速條件下，能成功製備具高效率之鈣鈦礦太陽能電池。然而，後續針對探討電極置換的可行性。表2為評估以 Cu 作為金屬電極應用於鈣鈦礦太陽能電池的可行性，首先比較在相同鍍膜速率下，不同金屬電極對元件性能的影響。當蒸發速率為 1.5 \AA s^{-1} 時，採用銀電極的元件可達到 $12.62 \pm 0.91\%$ 的轉換效率，其 V_{oc} 、 J_{sc} 與 FF 皆維持良好表現；相較之下，使用 Cu 電極的元件效率明顯下降至 $7.88 \pm 2.84\%$ ，根據上述結果，我們推測 Cu 電極在高沉積速率下所需的較大蒸鍍電流，導致腔體內部溫度上升，進而對下層鈣鈦礦材料造成熱損傷或界面劣化，最終反映在 V_{oc} 與 FF 的降低。為驗證此假設，本研究進一步降低 Cu 電極的沉積速率至

0.3 \AA s^{-1} ，以減少蒸鍍過程中所產生的高溫。結果顯示，在較低鍍率條件下，Cu 電極元件的性能明顯提升，其 V_{oc} 提升至 $0.99 \pm 0.02 \text{ V}$ ， J_{sc} 達 $20.88 \pm 0.93 \text{ mA cm}^{-2}$ ，FF 提升至 $58.88 \pm 5.73\%$ ，最終效率達 $12.16 \pm 1.62\%$ 。

表2、銅電極以不同沉積條件對於鈣鈦礦元件之表現。

Rate of electrode (Å/s)	V_{oc} (V)	J_{sc} (mA/cm^2)	FF (%)	PCE (%)
1.5-Ag	0.99 ± 0.03	20.15 ± 1.10	63.33 ± 3.55	12.62 ± 0.91
1.5-Cu	0.80 ± 0.15	19.96 ± 2.64	47.84 ± 10.87	7.88 ± 2.84
0.3-Cu	0.99 ± 0.02	20.88 ± 0.93	58.88 ± 5.73	12.16 ± 1.62

為進一步探討蒸發速率對 Cu 電極形貌的影響，我們利用 AFM 分析不同沉積速率下之 Cu 薄膜的表面粗糙度。圖5顯示， 0.3 \AA/sec 與 1.5 \AA/sec 所製備之 Cu 電極儘管 AFM 結果顯示兩者均方根粗糙度 (RMS) 分別為 28.47 nm 與 33.73 nm ，差異尚在合理範圍內，暗示單純的形貌特徵是會影響的。然而，此粗糙度的形成源於高熔點材料在蒸鍍過程中，為達到目標鍍率需施加較高能量，進而產生明顯的熱效應。這種熱損傷除了造成銅電極表面粗糙化外，更可能誘發界面間的原子互擴散或產生熱誘發缺陷。因此，研究證實導致高沉積速率下 Cu 電極元件劣化的關鍵因素為熱效應而非表面粗糙度。實驗結果顯示，透過精確調控沉積速率，Cu 電極可有效避免熱誘發的界面損傷，使其初始 PCE 達到與 Ag 電極相當之水平。這證實了在低沉積速率條件下，Cu 電極具備取代傳統 Ag 電極並維持優異元件效能的潛力。

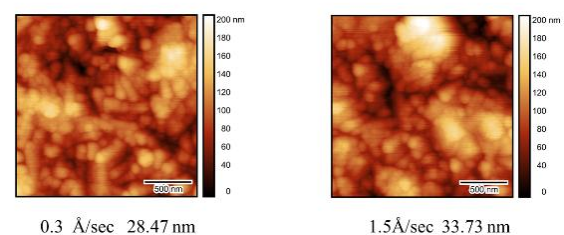


圖5、不同蒸鍍速率之銅(Cu)電極表面粗糙度分析。

為進一步驗證 Cu 電極於 PSCs 的應用潛力，本研究針對元件在長效操作及濕熱環境下的穩定性進行評估。測試結果顯示，如圖6a 與圖6b 所示，在多種加速老化條件下，Cu 電極元件的效率保持率均優於傳統 Ag 電極元件。在 65°C 的氮氣

環境中持續老化80小時後，BCP/Cu 元件仍能維持約90%的初始 PCE；相比之下，BCP/Ag 元件的效率則迅速衰減至初始值的75%以下。這顯示 Cu 電極在長期熱應力下具有更佳的結構穩定性。在更為嚴苛的濕熱環境中(65 °C / 65% RH)，BCP/Cu 元件在80小時後依然展現出卓越的耐受性，效率保持在初始值的85%以上。然而，BCP/Ag 元件在相同條件下效率降幅顯著，最終僅剩約 70% 的初始效能。特別是在嚴苛的熱應力與濕熱環境中，Cu 電極元件展現出明顯緩和的效率衰減，證實其具備優異的耐熱性與抗濕氣劣化能力。此穩定性的提升可歸因於 Cu 與鈣鈦礦材料間較低的金屬離子遷移傾向(Metal ion migration tendency)，以及優於 Ag 的抗鹵化物腐蝕能力。傳統 Ag 電極在熱或操作應力下，極易與鈣鈦礦層擴散出的鹵素離子反應生成 AgI 等非導電副產物，導致界面劣化與元件失效。相對而言，在 BCP 緩衝層的保護下，Cu 電極能有效抑制金屬原子擴散與界面副反應，從而提升長期操作可靠度。因此，銅電極在鈣鈦礦太陽能電池領域中，已經逐漸被重視且有機會取代傳統的金屬銀電極，大幅降低了鈣鈦礦元件的製造成本，以利後續的商業化。[25]綜合初始效能與穩定性表現，透過優化蒸鍍速率以規避熱效應損傷，Cu 電極不僅能達成與 Ag 電極相當的 PCE，更在環境耐受性上展現顯著優勢，證實其作為低成本、高穩定性替代電極在規模化製程中的高度可行性。

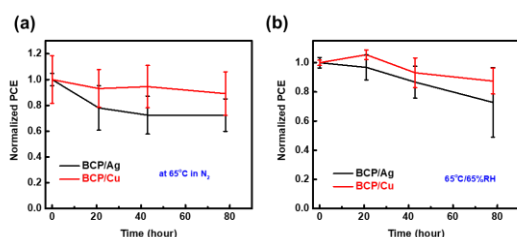


圖6、不同金屬電極材料所製備的封裝元件 (a) 熱應力(65°C) (b) 高溫高濕 (65°C/65%RH)老化測試。

結論

本研究證實採用低毒性 二甲基亞砜(DMSO) 單一溶劑系統取代傳統 DMF 之可行性，並深入解析銅(Cu)電極蒸鍍速率對鈣鈦礦太陽能電池(PSCs)性能與穩定性的影響。結果顯示，以 1.0 M DMSO 前驅液製備之鈣鈦礦薄膜具備優異的形貌

品質與覆蓋率，其功率轉換效率(PCE)可與傳統 DMF:DMSO (9:1) 系統相媲美。在電極製程方面，研究發現高蒸鍍速率引發的熱效應是導致元件劣化的關鍵。透過降低蒸鍍速率，可有效抑制高蒸發電流產生的熱量對有機層與鈣鈦礦界面造成的熱致損傷，進而顯著提升光電性能。穩定性測試進一步證實，相較於銀(Ag)電極，經 BCP 緩衝層保護的 Cu 電極 元件表現出卓越的環境耐受性。在 65 °C 及 65% RH 的加速老化測試中，Cu 電極元件歷經80小時仍能維持約85-90% 的初始效率，明顯優於 Ag 元件(約70-75%)。此穩定性優勢源於 Cu 較低的離子遷移傾向及優異的抗鹵化物腐蝕能力。綜上所述，結合綠色溶劑與優化之銅電極製程，本研究為開發兼具環保安全性、高效率與工業應用潛力的鈣鈦礦光伏技術提供了具體的實踐方案。

參考文獻

1. A. Kojima, K. Teshima, Y. Shirai, T. Miyasaka, Organometal halide perovskites as visible-light sensitizers for photovoltaic cells, *Journal of the american chemical society* 131(17) (2009) 6050-6051.
2. J.-H. Im, C.-R. Lee, J.-W. Lee, S.-W. Park, N.-G. Park, 6.5% efficient perovskite quantum-dot-sensitized solar cell, *Nanoscale* 3(10) (2011) 4088-4093.
3. N.-G. Park, Organometal Perovskite Light Absorbers Toward a 20% Efficiency Low-Cost Solid-State Mesoscopic Solar Cell, *J. Phys. Chem. Lett.* 4(15) (2013) 2423-2429.
4. C.O. Ramírez Quiroz, Y. Shen, M. Salvador, K. Forberich, N. Schrenker, G.D. Spyropoulos, T. Heumüller, B. Wilkinson, T. Kirchartz, E. Spiecker, P.J. Verlinden, X. Zhang, M.A. Green, A. Ho-Baillie, C.J. Brabec, Balancing electrical and optical losses for efficient 4-terminal Si-perovskite solar cells with solution processed percolation

- electrodes, *Journal of Materials Chemistry A* 6(8) (2018) 3583-3592.
5. R. Mishima, W. Yoshida, H. Ishibashi, H. Tanaka, K. Kishimoto, M. Hino, M. Kanematsu, S. Okamoto, T. Fujimoto, G. Koizumi, H. Uzu, D. Adachi, K. Yamamoto, Luminescence coupling in 28.4%-efficient tandem solar cell utilizing 20.8%-efficient perovskite minimodule stacked on silicon cell, *Applied Physics Letters* 123(26) (2023).
 6. J.J. Jeronimo-Rendon, S.-H. Turren-Cruz, J. Pascual, D.D. Girolamo, M.A. Flatken, H. Köbler, W. Hempel, M. Li, A.D. Carlo, P.P. Boix, I. Mora-Seró, A. Abate, M. Saliba, Robust Multi-Halide Methylammonium-Free Perovskite Solar Cells on an Inverted Architecture, *Adv. Funct. Mater.* 34(26) (2024) 2313928.
 7. Y.-C. Huang, S.-W. Huang, C.-F. Li, S.-H. Huang, F.-Y. Tsai, W.-F. Su, A comprehensive optimization of highly efficient MA-Free wide-bandgap perovskites for 4-T Perovskite/Silicon tandem solar cells, *Chemical Engineering Journal* 503 (2025) 158272.
 8. W.S. Yang, J.H. Noh, N.J. Jeon, Y.C. Kim, S. Ryu, J. Seo, S.I. Seok, High-performance photovoltaic perovskite layers fabricated through intramolecular exchange, *Science* 348(6240) (2015) 1234.
 9. X. Zhang, X. Li, L. Tao, Z. Zhang, H. Ling, X. Fu, S. Wang, M.J. Ko, J. Luo, J. Chen, Y. Li, Precise Control of Crystallization and Phase-Transition with Green Anti-Solvent in Wide-Bandgap Perovskite Solar Cells with Open-Circuit Voltage Exceeding 1.25 V, *Small* 19(22) (2023) 2208289.
 10. Y. Han, H. Xie, E.L. Lim, D. Bi, Review of Two-Step Method for Lead Halide Perovskite Solar Cells, *Solar RRL* 6(6) (2022) 2101007.
 11. H. Chen, Two-Step Sequential Deposition of Organometal Halide Perovskite for Photovoltaic Application, *Adv. Funct. Mater.* 27(8) (2017) 1605654.
 12. S.-H. Huang, C.-T. Tsou, Y.-H. Hsiao, C.-F. Li, Y.-R. Chen, W.-F. Su, Y.-C. Huang, High-Efficiency Perovskite Solar Cell with an Air-Processable Active Layer via Sequential Deposition, *Materials and Sustainability* 1(1) (2025) 3.
 13. G. Wu, J. Wang, X. Fang, J. Xu, X. Xia, J. Zhao, L. Zheng, M. Zhang, Z. Chen, H. Chen, L. Wang, W.W. Yu, Two-Step Inverted Perovskite Solar Cells with > 25% Efficiency Fabricated in Ambient Air, *Advanced Energy Materials* 15(27) (2025) 2500830.
 14. W. Zhou, H. Liu, H. Li, W. Zhang, H. Li, X. Zhou, R. Chen, W. Zhang, T. Shi, A. Abate, H.-L. Wang, Vertical Interfacial Engineering in Two-Step-Processed Perovskite Films Enabled by Dual-Interface Modification for High-Efficiency p-i-n Solar Cells, *Nano-Micro Letters* 18(1) (2026) 157.
 15. C.-F. Li, S.-H. Huang, Y.-R. Chen, H.-C. Cha, S.-Y. Chung, Y.-H. Hsiao, F.-Y. Tsai, Y.-C. Huang, Sequential slot-die coating of perovskite solar cell modules under ambient conditions with precise phase-transition control, *Chemical Engineering Journal* 517 (2025) 164194.
 16. J. Wang, F. Di Giacomo, J. Bröls, H. Gortler, I. Katsouras, P. Groen, R.A.J. Janssen, R. Andriessen, Y. Galagan, Highly Efficient Perovskite Solar Cells Using Non-Toxic Industry Compatible Solvent System, *Solar RRL* 1(11) (2017) 1700091.

17. S.-H. Huang, K.-Y. Tian, H.-C. Huang, C.-F. Li, W.-C. Chu, K.-M. Lee, Y.-C. Huang, W.-F. Su, Controlling the Morphology and Interface of the Perovskite Layer for Scalable High-Efficiency Solar Cells Fabricated Using Green Solvents and Blade Coating in an Ambient Environment, *ACS Appl. Mater. Interfaces* 12(23) (2020) 26041-26049.
18. K.L. Gardner, J.G. Tait, T. Merckx, W. Qiu, U.W. Paetzold, L. Kootstra, M. Jaysankar, R. Gehlhaar, D. Cheyns, P. Heremans, J. Poortmans, Nonhazardous Solvent Systems for Processing Perovskite Photovoltaics, *Adv. Energy Mater.* 6(14) (2016) 1600386.
19. M. Yavari, M. Mazloum-Ardakani, S. Gholipour, M.M. Tavakoli, S.-H. Turren-Cruz, N. Taghavinia, M. Grätzel, A. Hagfeldt, M. Saliba, Greener, Nonhalogenated Solvent Systems for Highly Efficient Perovskite Solar Cells, *Adv. Energy Mater.* 8(21) (2018) 1800177.
20. P.J. Holliman, E.W. Jones, A. Connell, S. Ghosh, L. Furnell, R.J. Hobbs, Solvent issues during processing and device lifetime for perovskite solar cells, *Mater. Res. Innovations* 19(7) (2015) 508-511.
21. J. Ciro, S. Mesa, J.I. Uribe, M.A. Mejía-Escobar, D. Ramirez, J.F. Montoya, R. Betancur, H.-S. Yoo, N.-G. Park, F. Jaramillo, Optimization of the Ag/PCBM interface by a rhodamine interlayer to enhance the efficiency and stability of perovskite solar cells, *Nanoscale* 9(27) (2017) 9440-9446.
22. L. Liu, B. Farhadi, J. Li, S. Liu, L. Lu, H. Wang, M. Du, L. Yang, S. Bao, X. Jiang, X. Dong, Q. Miao, D. Li, K. Wang, S.F. Liu, Hydrophobic Hydrogen-Bonded Polymer Network for Efficient and Stable Perovskite/Si Tandem Solar Cells, *Angewandte Chemie International Edition* 63(8) (2024) e202317972.
23. A. Liu, X. Li, W. Zhang, H. Yang, X. Guo, C. Lu, H. Yuan, W. Ou-Yang, J. Fang, Ag Electrode Anticorrosion in Inverted Perovskite Solar Cells, *Adv. Funct. Mater.* 34(1) (2024) 2307310.
24. Y. Deng, X. Zheng, Y. Bai, Q. Wang, J. Zhao, J. Huang, Surfactant-controlled ink drying enables high-speed deposition of perovskite films for efficient photovoltaic modules, *Nature Energy* 3(7) (2018) 560-566.
25. S. Cao, J. Han, X. Zhao, Y. Yu, P. Gao, Copper Contact for Perovskite Solar Cells: Properties, Interfaces, and Scalable Integration, *Advanced Energy and Sustainability Research* 7(3) (2026) e202500380.