


# 페로브스카이트 기반 청색 발광 소자의 정공수송층 계면 연구 동향

백승민<sup>1</sup>, 윤동환<sup>1</sup>, 신광용<sup>2</sup>, 조영채<sup>1</sup>, 신혜선<sup>1</sup>, 김미현<sup>1</sup>, 김하린<sup>1</sup>, 김기환<sup>1</sup> 

<sup>1</sup> 경상국립대학교 나노신소재융합공학과

<sup>2</sup> 경상국립대학교 분자제어연구소

**초록:** 페로브스카이트 기반 발광 소자는 발광 스펙트럼의 반치폭이 좁고, 용액 공정이 가능하여 제조 비용이 저렴하다는 점에서 차세대 디스플레이 소재로 주목받고 있다. 색의 구현을 위해서 필수적인 요소 중 하나인 청색 발광 소자는 낮은 효율과 짧은 수명으로 인해 상용화되지 못하고 있다. 소자 성능의 주된 장애물은 발광층과 전하수송층의 계면에서 발생하는 다양한 문제점들이다. 본 리뷰에서는 페로브스카이트 기반의 청색 발광 소자의 효율과 수명을 저해하는 주요 계면 문제들을 정리하고, 이를 해결하기 위해 제시된 연구 및 전략을 검토한다. 정공수송층과 페로브스카이트의 계면 엔지니어링을 중심으로 여러 방법론을 비교하며, 결과적으로 고성능의 청색 발광 소자 개발을 위한 연구 방향을 제시한다.

**키워드:** 페로브스카이트, 발광 다이오드, 계면 엔지니어링, 정공수송층

## Research Trends on the Hole Transport Layer Interface in Blue Perovskite Light-Emitting Diodes

Seungmin Baek<sup>1</sup>, Donghwan Yun<sup>1</sup>, Gwang Yong Shin<sup>2</sup>, Youngchae Cho<sup>1</sup>,  
Hyeseon Shin<sup>1</sup>, Mihyun Kim<sup>1</sup>, Harin Kim<sup>1</sup>, and Gi-Hwan Kim<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Department of Materials Engineering and Convergence Technology, Gyeongsang National University, Jinju 52828, Korea

<sup>2</sup> Research Institute of Molecular Alchemy, Gyeongsang National University, Jinju 52828, Korea

(Received July 31, 2025; Revised September 11, 2025; Accepted September 12, 2025)

**Abstract:** Perovskite light-emitting diodes (PELEDs) are emerging as promising candidates for next-generation displays, thanks to their narrow full width at half maximum and low-cost solution processing capabilities. Blue PeLEDs are essential for achieving a full-color gamut; however, efficiency and stability challenges limit their practical use. A primary bottleneck arises from interfacial issues between the perovskite emissive and charge transport layers. This review summarizes the key interfacial challenges hindering the performance of blue PeLEDs and highlights recent advances in interfacial engineering strategies. By focusing on interfacial engineering between the hole-transport layer and perovskite, this review compares different strategies and outlines future directions for developing high-performance blue light-emitting devices.

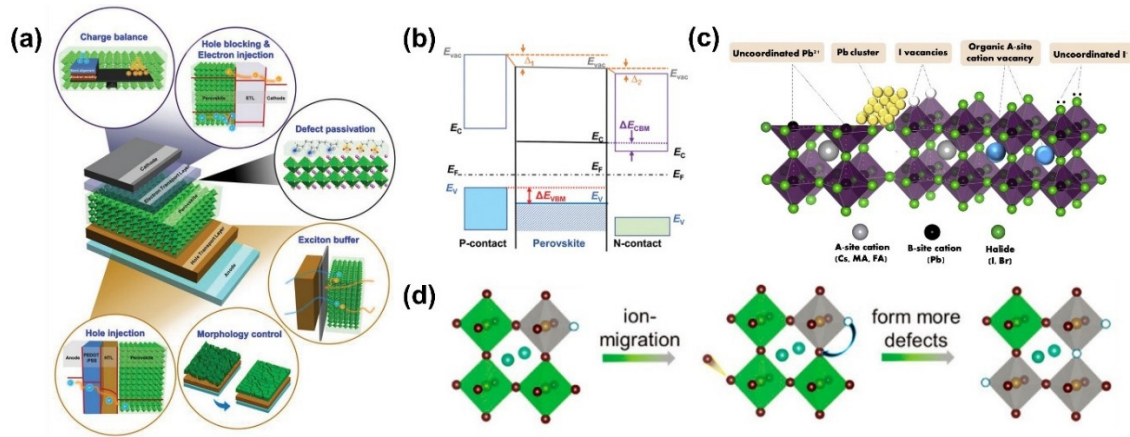
**Keywords:** Perovskite, Light-emitting diodes, Interfacial engineering, Hole transport layer

## 1. 서문

✉ Gi-Hwan Kim; [ghkim@gnu.ac.kr](mailto:ghkim@gnu.ac.kr)

Copyright ©2025 KIEEME. All rights reserved.  
This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

■ 페로브스카이트는  $ABX_3$ 의 화학식과 팔면체 결정 구조를 갖는다. 여기서 A 사이트는  $Cs^+$ , methylammonium<sup>+</sup>(MA<sup>+</sup>), formamidinium(FA<sup>+</sup>)와 같은 1가 양이



**Fig. 1.** Schematic illustrations of (a) interfacial issues in blue perovskite LEDs [25], (b) energy level alignment at device interfaces [26], (c) typical defects in perovskite [27], and (d) ion migration [28].

은, B 사이트는  $Pb^{2+}$ ,  $Sn^{2+}$ 와 같은 2가 금속 양이온이 위치한다 [1,2]. 그리고 X 사이트는 주로 할로젠 원소의 음이온인  $I^-$ ,  $Br^-$ ,  $Cl^-$ 가 위치할 수 있다. 각 사이트에 위치하는 원소를 쉽게 변화시킬 수 있고, 이에 따라 격자의 구조가 달라져 밴드갭 등의 광학적 특성을 쉽게 조절할 수 있다는 장점을 갖는다.

- 페로브스카이트는 흡광계수, 전자 이동도, 결함 허용성, 밴드갭 조절 용이성 등 광전자적인 특성이 뛰어나며, 특히 용액 공정을 기반으로 저비용 대면적 제조가 가능하다는 점에서 태양 전지, 발광 다이오드 등의 응용 분야에서 많은 관심을 받고 있다 [3-8]. 페로브스카이트 기반 발광 소자(perovskite based light-emitting diodes, PeLEDs)는 유기 발광 소자에 비해 높은 색 순도와 넓은 색 영역을 제공하여 차세대 디스플레이 분야에서 핵심적인 역할을 수행할 것으로 기대된다 [9,10].
- 실제로 적색 및 녹색 PeLEDs는 외부 양자 효율(external quantum efficiency, EQE)이 20%를 상회하며, 이미 상업적 응용 가능성을 입증하고 있다 [11-13]. 하지만 청색 PeLEDs의 약 10%로 낮은 효율 및 불안정성 문제는 상용화에 큰 제약이 되고 있다 [14-17]. 이러한 차이는 청색 발광을 위해 필요한 페로브스카이트의 특성과 밀접한 관련이 있다.
- 청색 발광을 위해서는  $Cl^-$ 이 포함된 넓은 밴드갭의 페로브스카이트가 필요하다 [18]. 이는 적색이나 녹색 페로브스카이트와 비교하여 계면에서 큰 문제를 야기한다. 특히 정공수송층(hole transport layer, HTL)과 페로브스카이트의 계면은 소자 성능에 직접적으로 영향을 미치는 핵심 요소이다 [19].

- HTL/페로브스카이트 계면은 단순한 층간 접촉 이상의 의미를 갖는다. 이 계면은 페로브스카이트 박막의 성장이 이루어지는 기판 역할을 하며, 결정 성장의 초기 조건을 제공한다 [20,21]. 또한 정공 주입 및 수송 경로로서 소자의 전기적 특성을 결정하고 [22], 더 나아가 계면에서의 전하 재결합 특성은 발광 효율과 직결되며 [23], 계면의 구조적·화학적 안정성은 소자의 수명과 관련이 있다 [24].
- 이러한 기술적인 한계를 극복하기 위해 최근 HTL/페로브스카이트 계면 엔지니어링이 중요한 연구 방향으로 부상하고 있다. 계면 엔지니어링을 통한 전하 주입 개선, 결함의 억제, 그리고 결정화 과정 최적화 등이 소자 성능 향상에 직결되기 때문이다 [그림 1(a)].
- 본 논문에서는 청색 PeLEDs의 HTL/페로브스카이트 계면에서 관찰되는 핵심 문제점들을 체계적으로 분석하고, 이러한 현상들을 해결하기 위한 계면 제어 전략들을 종합적으로 고찰한다. 다양한 전략이 적용된 실험적 성과를 분석함으로써 고효율 및 고안정성 청색 PeLEDs 개발을 위한 계면 설계 방향성을 제시하고자 한다. 또한, 이러한 제어 전략들이 향후 대면적 제조 공정으로 확장될 수 있는 가능성에 대해서도 간단히 논의한다.

## 2. HTL/페로브스카이트 계면의 주요 문제점

### 2.1 에너지 준위 불일치 및 전하 주입 장벽

- 청색 PeLEDs는 전하 주입에 요구되는 에너지 장벽이

다른 파장의 PeLEDs보다 상대적으로 크다. 특히 HTL과의 highest occupied molecular orbital (HOMO) 준위 불일치는 비효율적인 정공 주입을 유발한다 [그림 1(b)] [29-31].

- 일반적으로 사용되는 poly(3,4-ethylenedioxythiophene):polystyrene sulfonate (PEDOT:PSS) HTL의 HOMO 준위는 약 5.0 eV 수준이지만, 청색 페로브스카이트의 HOMO 준위는 약 -6.1 eV에 위치한다. 이러한 1.0 eV 이상의 큰 에너지 장벽은 정공 주입을 크게 제한하며, 결과적으로 소자의 구동 전압 상승과 내부 양자 효율 저하를 야기한다 [32,33].
- 비효율적인 전하 주입은 계면에서 전하의 축적으로 이어지고, 축적된 전하는 국소적인 전기장을 형성한다 [34,35]. 내부 전기장은 페로브스카이트 내의 이온 이동을 가속화하거나 결함의 형성을 촉진하는 원인이 될 수 있다 [36,37]. 이는 결국 구동 중 발광 파장의 변화 등 불안정성 문제로 이어진다.
- 더 나아가, 전하 주입의 불균형은 계면에서의 비복사성 Auger 재결합의 주된 원인이 된다 [38,39]. 청색 발광 페로브스카이트는 낮은 exciton binding energy를 가지므로, 이와 같은 비복사성 손실이 더욱 치명적으로 작용한다 [40]. 이런 문제들을 방지하기 위해서는 HTL과 페로브스카이트의 에너지 준위를 정렬시킴으로써 전하의 주입을 효율적으로 제어해야 한다.

## 2.2 계면 결함 및 비방사성 재결합

- 페로브스카이트는 결정 내 결함 허용성이 높은 소재로 알려져 있지만 [41], 계면에서는 dangling bond, 공공 등과 같은 다양한 결함이 형성된다 [그림 1(c)] [42-44]. 이러한 결함들은 전하를 포획한 뒤 phonon을 방출하면서 소멸시키는 Shockley-Read Hall (SRH) 비복사성 재결합을 유발하여 복사성 재결합을 억제한다 [45,46]. 그 결과로 광발광 양자 수율(photoluminescence, PLQY) 및 EQE는 크게 감소한다.
- HTL 표면의 불균일성과 화학적 불안정성 [47], 격자 불일치 및 열팽창 계수 차이에 따른 기계적 스트레스 [48], 그리고 공정 중 잔류하는 불순물 및 용매 [49] 등의 요인은 HTL/페로브스카이트 계면에서 결함의 형성을 촉진할 수 있다.
- 특히 PEDOT:PSS의 산성 표면 특성은 페로브스카이트의 할라이드 이온과의 화학적인 상호작용을 통해 추가적인 trap을 형성할 수 있다 [33,50]. 이러한 문제는 시간이 지남에 따라 심화될 수 있으며, 결과적으로 소자

의 장기 안정성을 저하시킨다 [51,52].

## 2.3 화학적 불안정성 및 이온 이동

- 페로브스카이트는 유기-무기 이온성 격자 구조로 구성되어 있어, 전기장의 존재 하에 A 사이트 양이온과 할라이드 음이온이 비교적 낮은 활성화 에너지를 가지고 결정 내에서 확산할 수 있다 [그림 1(d)] [53-55]. 이러한 이동은 HTL과의 계면에서 더욱 활발해지며, 다양한 화학적 불안정성과 구조적 열화를 초래한다 [56,57].
- 청색 페로브스카이트에서 사용되는 Br<sup>-</sup>과 Cl<sup>-</sup> 이온은 I<sup>-</sup> 이온에 비해 상대적으로 작은 크기와 높은 이동도를 가져 이온 이동 현상이 더욱 현저하게 나타난다 [58]. 이는 계면에서 국소적인 조성 변화를 유발하여 발광 파장 이동의 원인이 되며 [59], 특히 Cl<sup>-</sup> 이온의 손실은 밴드 갭 감소와 발광 파장의 적색 이동을 유발하여 색 안정성을 저하시킨다 [60].
- 또한 HTL과의 계면에서 발생하는 화학적 반응은 페로브스카이트의 분해 과정을 가속화한다. PEDOT:PSS의 산성 환경은 페로브스카이트의 분해를 유도하여 PbBr<sub>2</sub>, PbCl<sub>2</sub> 등의 부산물을 생성한다 [61]. 형성된 분해 산물들은 계면에서 절연층을 형성하여 전하 수송을 방해하거나, 새로운 결함을 생성하여 비복사성 재결합을 증가시킨다 [62,63].
- HTL/페로브스카이트 계면에서의 이온 이동 현상과 이에 따른 불안정성은 전기적 특성 분석만으로는 충분히 설명하기 어렵다. 최근에는 X-ray photoelectron spectroscopy(XPS) depth profiling, in-situ photoluminescence(PL) 등 in-situ 또는 operando 기법을 활용하여 계면 내부에서 발생하는 이온 이동과 화학적 변화 과정을 실시간으로 추적하려는 시도가 활발하다. 이러한 접근은 단순히 결과론적인 열화 현상 관찰을 넘어, 소자의 불안정성 메커니즘을 규명하는 데 기여할 수 있다.

## 2.4 페로브스카이트 결정 성장에 미치는 영향

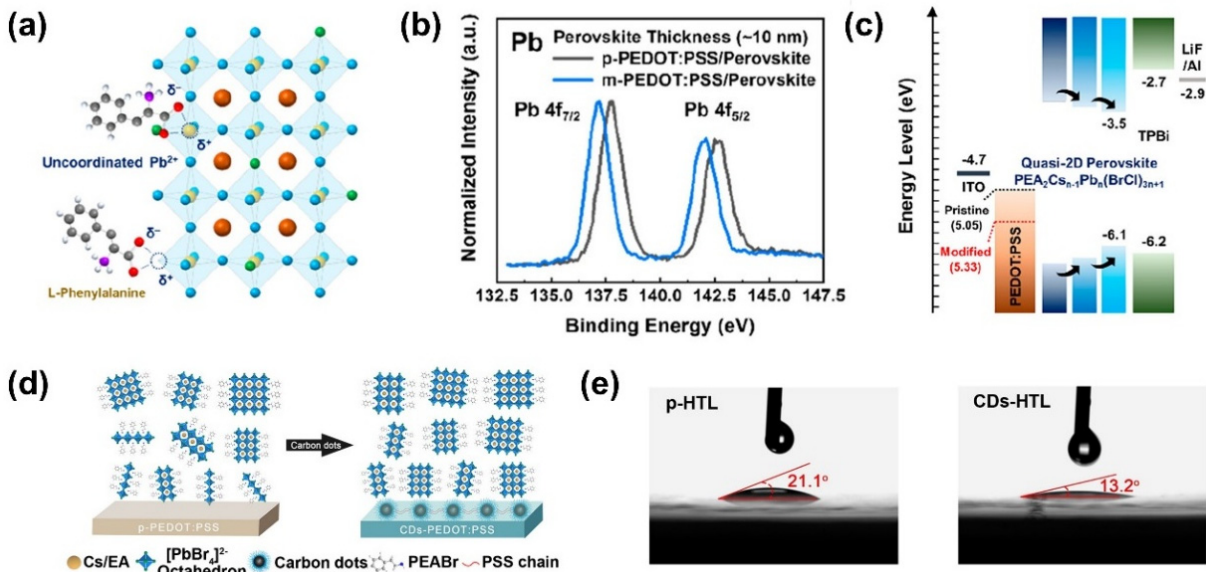
- HTL의 표면 특성이 페로브스카이트의 결정 성장에 직접적으로 영향을 미칠 수 있는데, 이는 HTL이 페로브스카이트 결정 성장이 시작되는 기판의 역할을 하기 때문이다 [64]. 청색 발광 페로브스카이트를 위해서는 혼합 할로젠 조성이나 준 2차원 페로브스카이트를 주로 사용하는데, 이러한 구조들은 결정 성장 과정에서 상 분리나 불균일한 결정화가 발생하기 쉽다 [65].

- 따라서 거칠기, 친수성, 표면 에너지 등의 요인을 적절한 수준으로 제어하는 것이 매우 중요하다 [66]. 거친 표면은 불균일한 핵 생성을 유도하여 결정 크기 분포를 넓히고, 이는 넓은 발광 스펙트럼과 효율 저하로 이어진다. 반면 적절한 표면 거칠기는 핵 생성 사이트를 제공하여 결정 성장을 촉진할 수 있다 [67].
- 특히 HTL 표면의 표면 에너지는 페로브스카이트 전구체 용액의 흡윤성에 큰 영향을 미쳐, 결정화 과정을 좌우하는 핵심적인 요소이다. 친수성이 높은 HTL은 극성 용매 기반의 페로브스카이트 전구체 용액과 좋은 흡윤성을 보이지만, 소수성을 띠는 HTL 위에서는 결정의 형성이 원활하게 일어나지 않는다 [68]. 그러나 친수성이 과한 HTL은 수분 흡착을 유도하여 페로브스카이트의 분해를 촉진할 수 있다 [69].

### 3. HTL/페로브스카이트 계면 제어 전략

#### 3.1 HTL 첨가제 활용

- 첨가제 기반의 전략은 HTL의 물성을 조절함과 동시에 계면에서 나타나는 문제점들을 해결할 수 있는 효과적인 접근법이다. 첨가제는 HTL의 전도도, 일함수 등을 조절하여 전기적 특성을 향상시킬 수 있고, 표면 에너지 등을 조절하여 페로브스카이트 결정 성장 환경에 영향을 미칠 수도 있다.
- PEDOT:PSS는 가장 광범위하게 사용되는 HTL 소재이지만, 강한 산성 특성과 높은 표면 에너지로 인해 페로브스카이트와의 계면에서 화학적 열화를 유도하고, 비복사성 재결합을 증가시킬 수 있다. 따라서 다양한 첨가제의 도입을 통한 PEDOT:PSS의 물성을 조절하려는 연구가 주목받고 있다.
- Yun Seop Shin 연구 그룹은 L-phenylalanine의 첨가를 통해 PEDOT:PSS의 일함수를 조절하고 준 2차원 페로브스카이트의 결함을 제어하는 연구에 대하여 보고하였다 [그림 2(a)] [70]. 10 nm 이하의 페로브스카이트 박막으로 XPS 측정을 진행하였고, 그 결과 첨가제의 도입이  $Pb^{2+}$  결함을 억제하였음을 확인하였다 [그림 2(b)]. 계면의 에너지 정렬 또한 개선되어 정공 주입이 용이해졌으며 [그림 2(c)], 결과적으로 EL 파장 480 nm, EQE 10.98%의 순수 청색 PeLEDs가 구현되었다.
- Hongwei Wang 연구 그룹은 PEDOT:PSS에 amino-functionalized carbon dots(CDs)을 도입하여 HTL/페로브스카이트 계면을 조절하였다 [그림 2(d)] [71]. CDs는 계면에서 흡윤성을 증가시키고 페로브스카이트의 정렬된 결정 성장을 유도하여 [그림 2(e)], 보다 고른 준 2차원 페로브스카이트의 상 분포 형성과 결함 억제를 가능하게 했다. 또한 PEDOT:PSS의 전기 전도도를



**Fig. 2.** (a) Schematic illustrations of the interaction between Perovskite and additives, (b) XPS spectrum of perovskite thin films deposited on the PEDOT:PSS with and without additives, (c) schematic flat-band energy diagram of PeLEDs, (d) schematic illustration of carbon dots-induced phase arrangement, and (e) contact angle of perovskite precursor on different substrates.

ETL과 일치시킴으로써 전하 주입의 균형을 최적화하였다. 그 결과 해당 연구는 494 nm 파장에서 EQE 21.07%의 고효율을 달성하였다.

- 첨가제 활용 전략은 용액의 조성이 변하는 간단한 접근으로 잉크젯 프린팅이나 슬롯 다이 코팅과 같은 대면적 용액 공정과도 비교적 높은 호환성을 가진다. 따라서 첨가제 기반 전략은 균일한 막 형성 조건 검증을 통해 대면적 제조로의 확장이 충분히 기대된다.

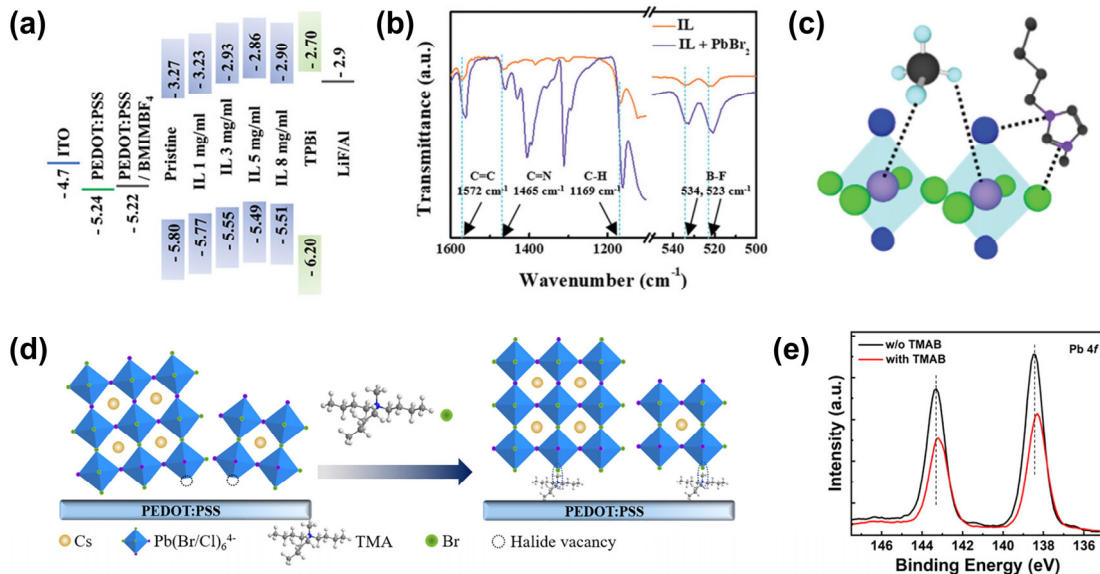
### 3.2 중간층 삽입

- HTL과 페로브스카이트 발광층 사이에 중간층(interlayer)을 삽입하는 전략은 계면에서 발생하는 복합적인 문제들을 해결하는 데에 유효한 방법이다. 계면의 특성을 크게 변화시킬 수 있으므로, 소자의 광학적, 전기적 특성의 변화를 신중히 고려하는 것이 중요하다. 추가적으로 HTL과 중간층, 그리고 중간층과 페로브스카이트 사이의 상호작용이 적절해야 효과적인 전략으로써 작용할 수 있다.
- 중간층은 일반적으로 수 나노미터 두께의 고분자 또는 유기분자층으로 구성되며 소자의 에너지 준위 정렬 개선, 결함의 passivation, 페로브스카이트 결정화 환경 최적화, 전하 주입 제어 등의 기능을 수행한다.

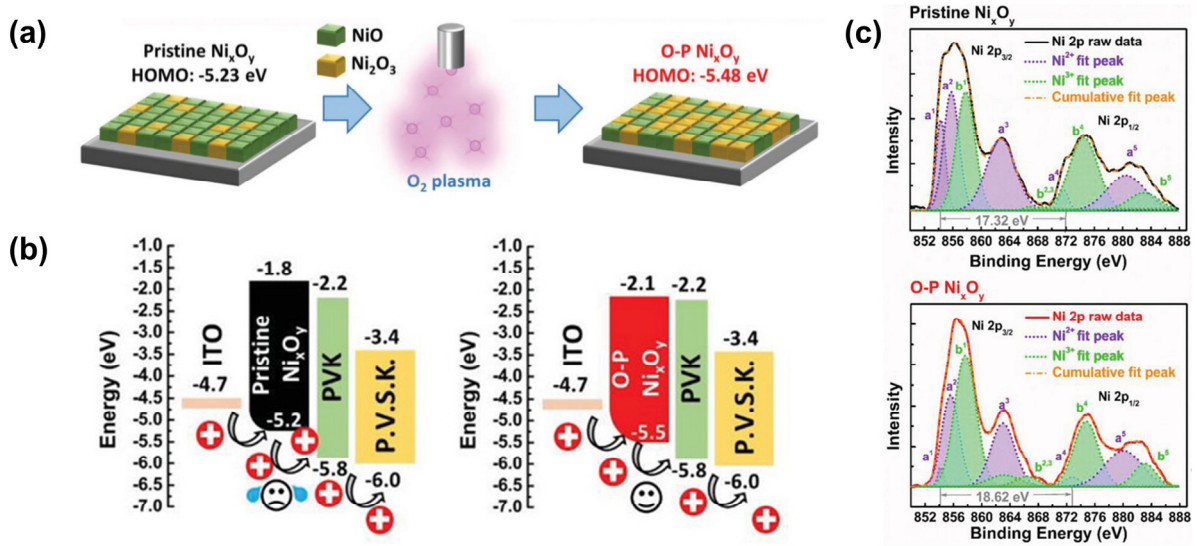
- Min-Seong Kim 연구 그룹은 1-butyl-3-methylimidazolium tetrafluoroborate(BMIMBF<sub>4</sub>)를 HTL과 페로브스카이트 사이에 중간층으로써 도입하였다 [그림 3(a)] [72]. 이 이온성 액체는 전하 주입 장벽을 완화하고, 페로브스카이트 전구체와의 상호작용을 통해 고른 결정 성장을 유도하였다 [그림 3(b)]. 또한 결함의 억제를 통해 크게 향상된 8.3%의 EQE와 891 cd/m<sup>2</sup>의 휘도를 달성하였다 [그림 3(c)].

- Fanghao Ye 연구 그룹은 quaternary ammonium 구조의 이온성 액체인 tributylmethylammonium bromide(TMAB)를 도입하여 HTL/페로브스카이트 계면의 에너지 정렬과 전하 주입 특성을 개선한 연구를 수행하였다 [그림 3(d)] [73]. TMAB는 Pb(Br/Cl)<sub>6</sub> 팔면체와 양이온 상호작용을 통해 페로브스카이트 핵 형성 밀도를 증가시키고, 필름 표면 개선과 계면 결함 밀도 감소에 기여하였다 [그림 3(e)]. 이러한 계면 조절을 통해 EQE가 3.5%에서 6.7%로 두 배 가까이 상승하였고, 특히 소자의 수명은 약 12배 증가한 결과를 보였다.

- 중간층 삽입은 수 나노미터 두께의 균일한 박막 형성이 중요하므로, 대면적 코팅에서 공정 제어가 다소 까다롭다. 그럼에도 불구하고 저온 용액 공정이 가능하고, 블레이드 코팅에도 적용할 수 있다는 점에서 장점을 가진다.



**Fig. 3.** (a) Energy level diagram of PeLEDs on interlayers with different ionic liquid concentrations, (b) FTIR spectra of the BMIMBF<sub>4</sub> and PbBr<sub>2</sub>, (c) the proposed roles of BMIM<sup>+</sup> and BF<sub>4</sub><sup>-</sup>, (d) schematic illustration of perovskite precursor deposited on PEDOT:PSS and TMAB, and (e) XPS spectra of Pb 4f of perovskite films with and without the TMAB.



**Fig. 4.** (a) Schematic of composition and HOMO changes of  $Ni_xO_y$  films modified by an oxygen plasma method, (b) modified energy level alignment of the hole transport layer after oxygen plasma treatment, and (c) XPS spectra of Ni 2p in pristine  $Ni_xO_y$  and oxygen plasma-treated  $Ni_xO_y$ . PEDOT:PSS films without and with oxygen plasma treatment.

### 3.3 표면 처리 공정

- 표면 처리 공정을 통해 HTL의 표면을 물리적 또는 화학적으로 변화시켜 계면 결함 발생을 억제하고, 페로브스카이트 결정 성장 환경을 유리하게 만드는 전략이 연구되고 있다.
- 특히 무기 HTL의 경우 용액 공정이나 스퍼터링 공정에서 발생하는 거친 표면과 핀홀 등의 단점을 극복하기 위해 표면 처리가 중요한 역할을 한다. 결함을 억제함으로써 페로브스카이트의 불균일한 성장과 전하 수송 방해 등으로 인한 소자의 성능 저하를 방지할 수 있다.
- Zhen-Li Yan 연구 그룹은  $Ni_xO_y$  기반 HTL에 산소 플라즈마 처리를 도입하여 표면의 화학적 조성 and 전자적 특성을 제어하였다 [74]. 플라즈마 처리로 인해  $Ni^{3+}$  비율이 증가하면서 정공의 농도가 증가하였고, 표면의 거칠기가 감소하여 박막이 균일하게 형성되었다 [그림 4(a), (b)]. 또한, HOMO 준위의 감소로 인해 정공 주입 장벽이 낮아졌으며 이로 인해 소자의 성능이 향상되었다.
- 플라즈마, UVO 처리와 같은 공정은 대면적 처리 장비 구축과 운영 비용이 높아 설비 부담이 존재하고, 재현성과 균일성 문제에 직면할 수도 있다. 하지만 별도의 재료 도입이 필요 없고, 기판의 크기와 무관하게 적용할 수 있다는 점은 다른 전략들과 차별화가 가능하다.

### 4. 결론

- 뛰어난 색 재현성과 광학적 성능을 바탕으로 청색 PeLEDs가 주목받고 있으나, 낮은 발광 효율과 수명이 상업화를 방해하고 있다. 청색 발광의 넓은 밴드갭 특성은 계면에서의 전하 손실, 에너지 준위 불일치, 이온 이동 등의 문제를 더욱 심화시킨다. 이러한 배경에서 HTL/페로브스카이트 계면의 제어는 소자 성능 개선의 핵심 과제로 대두되고 있다.
- 본 논문에서는 HTL/페로브스카이트 계면에서 발생하는 주요 문제들을 구조적으로 분석하고, 이를 해결하기 위한 다양한 전략들을 종합적으로 검토하였다. HTL 첨가제 적용, 중간층 삽입, 표면 처리 공정 등의 전략들은 차별화된 장점을 가지며, 복합적인 적용을 통해 더욱 효과적인 계면 제어가 가능함을 고찰할 수 있었다.
- 이러한 연구 성과들은 계면 엔지니어링을 통해 청색 PeLEDs의 효율을 적색, 녹색 수준까지 끌어올릴 수 있음을 보여준다. 그러나 여전히 장기 안정성과 대면적 적용에서는 해결해야 할 과제들이 남아있다. 향후에는 다양한 계면 제어 전략들을 조합한 통합적인 접근이 필요하며, 이를 뒷받침할 수 있는 정밀한 계면 분석 기법의 발전도 함께 이루어져야 한다.

## ORCID

Gi-Hwan Kim

<https://orcid.org/0000-0001-7115-2552>

## REFERENCES

- [1] Z. Xiao, Z. Song, and Y. Yan, *Adv. Mater.*, **31**, 1803792 (2019). doi: <https://doi.org/10.1002/adma.201803792>
- [2] L. Zhang, L. Mei, K. Wang, Y. Lv, S. Zhang, Y. Lian, X. Liu, Z. Ma, G. Xiao, Q. Liu, S. Zhai, S. Zhang, G. Liu, L. Yuan, B. Guo, Z. Chen, K. Wei, A. Liu, S. Yue, G. Niu, X. Pan, J. Sun, Y. Hua, W. Q. Wu, D. Di, B. Zhao, J. Tian, Z. Wang, Y. Yang, L. Chu, M. Yuan, H. Zeng, H. L. Yip, K. Yan, W. Xu, L. Zhu, W. Zhang, G. Xing, F. Gao, and L. Ding, *Nano-Micro Lett.*, **15**, 177 (2023). doi: <https://doi.org/10.1007/s40820-023-01140-3>
- [3] Z. K. Tan, R. S. Moghaddam, M. L. Lai, P. Docampo, R. Higler, F. Deschler, M. Price, A. Sadhanala, L. M. Pazos, D. Credgington, F. Hanusch, T. Bein, H. J. Snaith, and R. H. Friend, *Nat. Nanotechnol.*, **9**, 687 (2014). doi: <https://doi.org/10.1038/nnano.2014.149>
- [4] M. Yuan, L. N. Quan, R. Comin, G. Walters, R. Sabatini, O. Voznyy, S. Hoogland, Y. Zhao, E. M. Beauregard, and P. Kanjanaboos, *Nat. Nanotechnol.*, **11**, 872 (2016). doi: <https://doi.org/10.1038/nnano.2016.110>
- [5] Q. A. Akkerman, G. Rainò, M. V. Kovalenko, and L. Manna, *Nat. Mater.*, **17**, 394 (2018). doi: <https://doi.org/10.1038/s41563-018-0018-4>
- [6] H. Cho, S. H. Jeong, M. H. Park, Y. H. Kim, C. Wolf, C. L. Lee, J. H. Heo, A. Sadhanala, N. Myoung, S. Yoo, S. H. Im, R. H. Friend, and T. W. Lee, *Science*, **350**, 1222 (2015). doi: <https://doi.org/10.1126/science.aad1818>
- [7] S. A. Veldhuis, P. P. Boix, N. Yantara, M. Li, T. C. Sum, N. Mathews, and S. G. Mhaisalkar, *Adv. Mater.*, **28**, 6804 (2016). doi: <https://doi.org/10.1002/adma.201600669>
- [8] H. G. Park and J. Yang, *J. Korean Inst. Electr. Electron. Mater. Eng.*, **37**, 519 (2024). doi: <https://doi.org/10.4313/JKEM.2024.37.5.8>
- [9] M. Lu, Y. Zhang, S. Wang, J. Guo, W. W. Yu, and A. L. Rogach, *Adv. Funct. Mater.*, **29**, 1902008 (2019). doi: <https://doi.org/10.1002/adfm.201902008>
- [10] S. Chen, J. Lin, S. Zheng, Y. Zheng, and D. Chen, *Adv. Funct. Mater.*, **33**, 2213442 (2023). doi: <https://doi.org/10.1002/adfm.202213442>
- [11] K. Lin, J. Xing, L. N. Quan, F. P. G. de Arquer, X. Gong, J. Lu, L. Xie, W. Zhao, D. Zhang, C. Yan, W. Li, X. Liu, Y. Lu, J. Kirman, E. H. Sargent, Q. Xiong, and Z. Wei, *Nature*, **562**, 245 (2018). doi: <https://doi.org/10.1038/s41586-018-0575-3>
- [12] Y. Cao, N. Wang, H. Tian, J. Guo, Y. Wei, H. Chen, Y. Miao, W. Zou, K. Pan, Y. He, H. Cao, Y. Ke, M. Xu, Y. Wang, M. Yang, K. Du, Z. Fu, D. Kong, D. Dai, Y. Jin, G. Li, H. Li, Q. Peng, J. Wang, and W. Huang, *Nature*, **562**, 249 (2018). doi: <https://doi.org/10.1038/s41586-018-0576-2>
- [13] B. Zhao, S. Bai, V. Kim, R. Lamboll, R. Shivanna, F. Auras, J. M. Richter, L. Yang, L. Dai, M. Alsari, X. J. She, L. Liang, J. Zhang, S. Lilliu, P. Gao, H. J. Snaith, J. Wang, N. C. Greenham, R. H. Friend, and D. Di, *Nat. Photonics*, **12**, 783 (2018). doi: <https://doi.org/10.1038/s41566-018-0283-4>
- [14] F. Zhang, B. Cai, J. Song, B. Han, B. Zhang, and H. Zeng, *Adv. Funct. Mater.*, **30**, 2001732 (2020). doi: <https://doi.org/10.1002/adfm.202001732>
- [15] H. Wang, Y. Xu, J. Wu, L. Chen, Q. Yang, B. Zhang, and Z. Xie, *J. Phys. Chem. Lett.*, **11**, 1411 (2020). doi: <https://doi.org/10.1021/acs.jpcclett.9b03714>
- [16] K. H. Wang, Y. Peng, J. Ge, S. Jiang, B. S. Zhu, J. Yao, Y. C. Yin, J. N. Yang, Q. Zhang, and H. B. Yao, *ACS Photonics*, **6**, 667 (2018). doi: <https://doi.org/10.1021/acsp Photonics.8b01490>
- [17] S. T. Ochsenein, F. Krieg, Y. Shynkarenko, G. Rainò, and M. V. Kovalenko, *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **11**, 21655 (2019). doi: <https://doi.org/10.1021/acsam.9b02472>
- [18] Y. Nam, M. Kim, S. Y. Kim, J. Jung, G. R. Kumar, J. H. Lee, S. Lee, C. H. Park, and Y. W. Heo, *Adv. Opt. Mater.*, **11**, 2300682 (2023). doi: <https://doi.org/10.1002/adom.202300682>
- [19] V. V. Sharma, Y. S. Shin, J. Y. Kim, D. S. Kim, and G. H. Kim, *Nanoscale*, **16**, 11368 (2024). doi: <https://doi.org/10.1039/D4NR00834K>
- [20] A. Islam, S. H. U. Shah, Z. Haider, M. Imran, and M. D. Li, *Adv. Opt. Mater.*, **12**, 2303304 (2024). doi: <https://doi.org/10.1002/adom.202303304>
- [21] H. Wang, X. Gong, D. Zhao, Y. B. Zhao, S. Wang, J. Zhang, L. Kong, B. Wei, R. Quintero-Bermudez, O. Voznyy, Y. Shang, Z. Ning, Y. Yan, E. H. Sargent, and X. Yang, *Joule*, **4**, 1977 (2020). doi: <https://doi.org/10.1016/j.joule.2020.07.002>
- [22] R. Li, L. Cai, Y. Zou, H. Xu, Y. Tan, Y. Wang, J. Li, X. Wang, Y. Li, Y. Qin, D. Liang, T. Song, and B. Sun, *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **12**, 36681 (2020). doi: <https://doi.org/10.1021/acsam.0c07514>
- [23] J. Li, S. Bade, X. Shan, and Z. Yu, *Adv. Mater.*, **27**, 5196 (2015). doi: <https://doi.org/10.1002/adma.201502490>
- [24] S. Lee, J. H. Park, B. R. Lee, E. D. Jung, J. C. Yu, D. Di Nuzzo, R. H. Friend, and M. H. Song, *J. Phys. Chem. Lett.*, **8**, 1784 (2017). doi: <https://doi.org/10.1021/acs.jpcclett.7b00372>
- [25] E. Yoon, K. Y. Jang, J. Park, and T. W. Lee, *Adv. Mater. Interfaces*, **8**, 2001712 (2021). doi: <https://doi.org/10.1002/admi.202001712>
- [26] D. Luo, X. Li, A. Dumont, H. Yu, and Z. H. Lu, *Adv. Mater.*, **33**, 2006004 (2021).

- doi: <https://doi.org/10.1002/adma.202006004>
- [27] Y. Shen, J. Zhou, Y. Li, and J. X. Tang, *J. Phys. Chem. Lett.*, **13**, 6806 (2022).  
doi: <https://doi.org/10.1021/acs.jpcc.8b07069>
- [28] H. Lu, A. Krishna, S. M. Zakeeruddin, M. Grätzel, and A. Hagfeldt, *iScience*, **23**, 101359 (2020).  
doi: <https://doi.org/10.1016/j.isci.2020.101359>
- [29] R. Chen, H. Chen, Y. Yu, C. Luo, C. Xu, X. Zhou, Z. Ren, and Y. Chen, *ACS Photonics*, **11**, 5380 (2024).  
doi: <https://doi.org/10.1021/acsphotonics.4c01767>
- [30] H. J. Lee, J. J. Do, and J. W. Jung, *Small*, **21**, 2407769 (2025).  
doi: <https://doi.org/10.1002/sml.202407769>
- [31] Z. Chu, W. Zhang, J. Jiang, Z. Qu, F. Ma, Y. Zhao, X. Chu, Y. Shen, Y. Li, Z. Yin, X. Zhang, and J. You, *Nat. Electron.*, **6**, 360 (2023).  
doi: <https://doi.org/10.1038/s41928-023-00955-7>
- [32] H. M. Chua, N. Yantara, Y. B. Tay, S. Abdul Latiff, S. Mhaisalkar, and N. Mathews, *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **15**, 14614 (2023).  
doi: <https://doi.org/10.1021/acsami.3c01024>
- [33] L. Liu, R. Dong, H. Ge, J. Piao, Y. Wang, S. Li, W. Shen, K. Cao, and S. Chen, *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **14**, 28133 (2022).  
doi: <https://doi.org/10.1021/acsami.2c06727>
- [34] P. Forozi Sowmeeh, M. Zohorfazeli, and E. Yazdani, *Sci. Rep.*, **13**, 15643 (2023).  
doi: <https://doi.org/10.1038/s41598-023-42933-1>
- [35] C. J. Tong, X. Cai, A. Y. Zhu, L. M. Liu, and O. V. Prezhdo, *J. Am. Chem. Soc.*, **144**, 6604 (2022).  
doi: <https://doi.org/10.1021/jacs.2c02148>
- [36] Q. Dong, J. Mendes, L. Lei, D. Seyitliyev, L. Zhu, S. He, K. Gundogdu, and F. So, *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **12**, 48845 (2020).  
doi: <https://doi.org/10.1021/acsami.0c14269>
- [37] C. Yi, A. Wang, C. Cao, Z. Kuang, X. Tao, Z. Wang, F. Zhou, G. Zhang, Z. Liu, H. Huang, Y. Cao, R. Li, N. Wang, W. Huang, and J. Wang, *Adv. Mater.*, **36**, 2400658 (2024).  
doi: <https://doi.org/10.1002/adma.202400658>
- [38] C. Bi, Z. Yao, J. Hu, X. Wang, M. Zhang, S. Tian, A. Liu, Y. Lu, N. H. de Leeuw, M. Sui, and J. Tian, *ACS Energy Lett.*, **8**, 731 (2022).  
doi: <https://doi.org/10.1021/acsenergylett.2c02613>
- [39] J. S. Yao, J. C. Zhang, L. Wang, K. H. Wang, X. C. Ru, J. N. Yang, J. J. Wang, X. Chen, Y. H. Song, Y. C. Yin, Y. F. Lan, Q. Zhang, and H. B. Yao, *J. Phys. Chem. Lett.*, **11**, 9371 (2020).  
doi: <https://doi.org/10.1021/acs.jpcc.8b07069>
- [40] Y. Jiang, M. Cui, S. Li, C. Sun, Y. Huang, J. Wei, L. Zhang, M. Lv, C. Qin, and Y. Liu, *Nat. Commun.*, **12**, 336 (2021).  
doi: <https://doi.org/10.1038/s41467-020-20555-9>
- [41] J. Kang and L. W. Wang, *J. Phys. Chem. Lett.*, **8**, 489 (2017).  
doi: <https://doi.org/10.1021/acs.jpcc.8b07069>
- [42] J. Chen and N. G. Park, *Adv. Mater.*, **31**, 1803019 (2019).  
doi: <https://doi.org/10.1002/adma.201803019>
- [43] A. A. Baloch, F. H. Alharbi, G. Grancini, M. I. Hossain, M. K. Nazeeruddin, and N. Tabet, *J. Phys. Chem. C*, **122**, 26805 (2018).  
doi: <https://doi.org/10.1021/acs.jpcc.8b07069>
- [44] J. Hong and S. Kim, *J. Korean Inst. Electr. Electron. Mater. Eng.*, **38**, 358 (2025).  
doi: <https://doi.org/10.4313/JKEM.2025.38.4.2>
- [45] V. Sarritzu, N. Sestu, D. Marongiu, X. Chang, S. Masi, A. Rizzo, S. Colella, F. Quochi, M. Saba, A. Mura, and G. Bongiovanni, *Sci. Rep.*, **7**, 44629 (2017).  
doi: <https://doi.org/10.1038/srep44629>
- [46] B. E. Cohen, R. Alafi, J. Beinglass, A. Shpatz Dayan, O. Goldberg, S. Gold, I. Balberg, L. Kronik, L. Etgar, O. Millo, and D. Azulay, *Sol. RRL*, **7**, 2300813 (2023).  
doi: <https://doi.org/10.1002/solr.202300813>
- [47] H. Tian, X. Jiang, X. Liu, F. Sun, X. Guo, and C. Li, *Nano Energy*, **126**, 109616 (2024).  
doi: <https://doi.org/10.1016/j.nanoen.2024.109616>
- [48] X. Huo, Y. Jiang, J. Lv, W. Sun, W. Liu, R. Yin, Y. Gao, K. Wang, T. You, and P. Yin, *Chem. Eng. J.*, **484**, 149626 (2024).  
doi: <https://doi.org/10.1016/j.cej.2024.149626>
- [49] H. Y. Lin, Z. Jiang, S. C. Liu, Z. Du, S. E. Hsu, Y. S. Li, W. J. Qiu, H. Yang, T. J. Macdonald, M. A. McLachlan, and C. T. Lin, *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **16**, 47763 (2024).  
doi: <https://doi.org/10.1021/acsami.4c11052>
- [50] L. Chen, C. Li, Y. Xian, S. Fu, A. Abudulimu, D. B. Li, J. D. Friedl, Y. Li, S. Neupane, M. S. Tumasange, N. Sun, X. Wang, R. J. Ellingson, M. J. Heben, N. J. Podraza, Z. Song, and Y. Yanfa, *Adv. Energy Mater.*, **13**, 2301218 (2023).  
doi: <https://doi.org/10.1002/aenm.202301218>
- [51] Y. Xia, G. Yan, and J. Lin, *Nanomaterials*, **11**, 3119 (2021).  
doi: <https://doi.org/10.3390/nano11113119>
- [52] C. H. Jang, A. K. Harit, S. Lee, S. H. Kim, J. E. Jeong, J. H. Park, E. D. Jung, J. M. Ha, S. K. Kwak, H. Y. Woo, and M. H. Song, *ACS Nano*, **14**, 13246 (2020).  
doi: <https://doi.org/10.1021/acs.nano.0c04968>
- [53] J. Xing, Q. Wang, Q. Dong, Y. Yuan, Y. Fang, and J. Huang, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **18**, 30484 (2016).  
doi: <https://doi.org/10.1039/C6CP06496E>
- [54] L. McGovern, G. Grimaldi, M. H. Futscher, E. M. Hutter, L. A. Muscarella, M. C. Schmidt, and B. Ehrler, *ACS Appl. Energy Mater.*, **4**, 13431 (2021).  
doi: <https://doi.org/10.1021/acs.aem.1c03095>
- [55] D. Meggiolaro, E. Mosconi, and F. De Angelis, *ACS Energy Lett.*, **4**, 779 (2019).  
doi: <https://doi.org/10.1021/acsenergylett.9b00247>
- [56] S. Singh, E. Siliavka, M. Löffler, and Y. Vaynzof, *Adv. Funct. Mater.*, **34**, 2402655 (2024).  
doi: <https://doi.org/10.1002/adfm.202402655>

- [57] H. Zai, Y. Ma, Q. Chen, and H. Zhou, *J. Energy Chem.*, **63**, 528 (2021).  
doi: <https://doi.org/10.1016/j.jechem.2021.08.006>
- [58] L. Gao, T. Cheng, L. Gou, Y. Zhang, Y. Liu, L. Yuan, X. Zhang, Y. Wang, F. Meng, and J. Zhang, *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **15**, 18125 (2023).  
doi: <https://doi.org/10.1021/acsami.3c02437>
- [59] I. Lignos, L. Protesescu, D. B. Emiroglu, R. Maceiczky, S. Schneider, M. V. Kovalenko, and A. J. deMello, *Nano Lett.*, **18**, 1246 (2018).  
doi: <https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.7b04838>
- [60] S. Sun, M. Lu, Y. Zhong, P. Lu, F. Qin, Y. Gao, X. Bai, Z. Wu, and Y. Zhang, *ACS Energy Lett.*, **7**, 3974 (2022).  
doi: <https://doi.org/10.1021/acsenerylett.2c01783>
- [61] S. Fu, N. Sun, Y. Xian, L. Chen, Y. Li, C. Li, A. Abudulimu, P. N. Kaluarachchi, Z. Huang, X. Wang, K. Dolia, D. S. Ginger, M. J. Heben, R. J. Ellingson, B. Chen, E. H. Sargent, Z. Song, and Y. Yan, *Joule*, **8**, 2220 (2024).  
doi: <https://doi.org/10.1016/j.joule.2024.05.007>
- [62] Z. Xu, D. D. Astridge, R. A. Kerner, X. Zhong, J. Hu, J. Hong, J. A. Wisch, K. Zhu, J. J. Berry, A. Kahn, A. Sellinger, and B. P. Rand, *J. Am. Chem. Soc.*, **145**, 11846 (2023).  
doi: <https://doi.org/10.1021/jacs.3c03539>
- [63] M. Elnaggar, A. G. Boldyreva, M. Elshobaki, S. A. Tsarev, Y. S. Fedotov, O. R. Yamilova, S. I. Bredikhin, K. J. Stevenson, S. M. Aldoshin, and P. A. Troshin, *Sol. RRL*, **4**, 2000191 (2020).  
doi: <https://doi.org/10.1002/solr.202000191>
- [64] L. Kong, Y. Luo, L. Turyanska, T. Zhang, Z. Zhang, G. Xing, Y. Yang, C. Zhang, and X. Yang, *Adv. Funct. Mater.*, **33**, 2209186 (2023).  
doi: <https://doi.org/10.1002/adfm.202209186>
- [65] S. Wang, Z. Yu, J. Qin, G. Chen, Y. Liu, S. Fan, C. Ma, F. Yao, H. Cui, S. Zhou, K. Dong, Q. Lin, C. Tao, F. Gao, W. Ke, and G. Fang, *Sci. Bull.*, **69**, 2231 (2024).  
doi: <https://doi.org/10.1016/j.scib.2024.05.028>
- [66] Z. T. Gebremichael, C. Ugokwe, S. Alam, S. Stumpf, M. Diegel, U. S. Schubert, and H. Hoppe, *RSC Adv.*, **12**, 25593 (2022).  
doi: <https://doi.org/10.1039/D2RA03843A>
- [67] C. Bi, Q. Wang, Y. Shao, Y. Yuan, Z. Xiao, and J. Huang, *Nat. Commun.*, **6**, 7747 (2015).  
doi: <https://doi.org/10.1038/ncomms8747>
- [68] Z. Liu, L. Wang, C. Xu, X. Xie, and Y. Zhang, *ACS Appl. Energy Mater.*, **4**, 10574 (2021).  
doi: <https://doi.org/10.1021/acsaem.1c01531>
- [69] K. Almasabi, X. Zheng, B. Turedi, A. Y. Alsalloum, M. N. Lintangpradipto, J. Yin, L. Gutierrez-Arzaluz, K. Kotsosovs, A. Jamal, I. Gereige, O. F. Mohammed, and O. M. Bakr, *ACS Energy Lett.*, **8**, 950 (2023).  
doi: <https://doi.org/10.1021/acsenerylett.2c02333>
- [70] Y. S. Shin, C. B. Park, A. Adhikari, Y. J. Yoon, H. W. Cho, J. G. Son, J. Seo, T. Song, W. Lee, J. Yeop, J. W. Kim, M. Gong, B. Walker, O. H. Kwon, G. H. Kim, and J. Y. Kim, *ACS Energy Lett.*, **7**, 3345 (2022).  
doi: <https://doi.org/10.1021/acsenerylett.2c01785>
- [71] H. Wang, B. Zhang, B. Wang, S. Bai, L. Cheng, Y. Hu, and S. Lu, *Nano Lett.*, **24**, 8702 (2024).  
doi: <https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.4c02110>
- [72] M. S. Kim, P. Sadhukhan, and J. M. Myoung, *Adv. Funct. Mater.*, **34**, 2309436 (2024).  
doi: <https://doi.org/10.1002/adfm.202309436>
- [73] F. Ye, H. Yan, S. Liu, B. Liu, Z. Zhang, M. Tian, T. Zheng, X. Lan, J. Huang, C. Meng, P. Xu, and G. Li, *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **14**, 50393 (2022).  
doi: <https://doi.org/10.1021/acsami.2c15144>
- [74] Z. L. Yan, H. Y. Huang, J. S. Benas, C. W. Yang, C. J. Su, F. C. Liang, W. C. Chen, H. Tsai, R. J. Jeng, and C. C. Kuo, *Adv. Opt. Mater.*, **12**, 2302358 (2024).  
doi: <https://doi.org/10.1002/adom.202302358>