

Gefördert durch:



Bundesministerium
für Forschung, Technologie
und Raumfahrt

Methoden zur Entnahme von atmosphärischem Kohlendioxid (Carbon Dioxide
Removal)

Verbundprojekt NETPEC

Negative Emissionen mittels photoelektrochemischer Methoden

FKZ: 01LS2103E

Teilprojekt NETPEC-UST: Perowskit-Mehrfachsolarzellen

Projektlaufzeit:

01.10.2021 – 31.03.2025

Projektleiter Verbundprojekt: Prof. Dr. Michael Saliba

PI: Michael Saliba

Adresse: Institute for Photovoltaics, University of Stuttgart, Pfaffenwaldring 47
70569 Stuttgart, Germany.

(Im folgenden Text wird über das Unterprojekt NETPEC - UST gesprochen.)

Kurzbericht:

In diesem Projekt wurde eine vertiefte Untersuchung zur Leistungssteigerung von Perowskit-Solarzellen für die elektrochemische CO₂-Reduktion durchgeführt. Um das Problem der unzureichenden Ausgangsspannung und Stromstärke zu lösen, wurden verschiedene serielle und parallele Schaltungstopologien analysiert. Diese Ansätze waren prinzipiell vielversprechend und zeigten erste Erfolge. Allerdings kam es auch zu praktischen Implementierungsproblemen: Mikrometergroße Verbindungspunkte konnten unter thermischer Zyklusbelastung keine langfristige Stabilität gewährleisten; die derzeit verfügbaren Verkapselungstechnologien waren nicht in der Lage, die unterschiedlichen thermischen Ausdehnungskoeffizienten in seriell verschalteten Zellen auszugleichen und unangepasste Ströme zwischen den parallelen Zweigen führten zu einer ungleichmäßigen Leistungsverteilung und beschleunigten die Degradation.

Parallel dazu wurde auf Materialebene eine Untersuchung durchgeführt. Zwar verbesserten mehrere Precursor-Formulierungen (einschließlich Systeme auf Basis von DMSO/GBL-Kosolventen und Thiocyanat-Additiven) kurzfristig die Kristallisationsqualität der Perowskit-Schicht, jedoch führten sie durch Lösungsmittelreste zu Schäden am Interface. Die Entwicklung breitbandiger Perowskite (MAPbCl₃, CsPbBr₃) ermöglichte eine Leerlaufspannung von über 1,8 V, wies aber aufgrund von Phasenseparationsphänomenen eine rasch abfallende Effizienz auf. Niedrigtemperatur-Abscheidungsverfahren für flexible Substrate konnten angewendet werden, führten jedoch zu inhomogenen Dünnschichten und damit zu erheblichen Leistungsschwankungen der Bauelemente.

Die angestrebten Hauptleistungskennzahlen wurden nur teilweise erreicht. Allerdings brachte das Projekt wertvolle Erfahrungen bezüglich möglicher Ausfallursachen: Die Stabilität der Grenzflächen und die Verkapselungstechnologie sind entscheidende technische Hürden für eine Kommerzialisierung. Diese Erkenntnisse verdeutlichen die Schwerpunkte für die nächste Entwicklungsphase: den Fokus auf die großflächige Dünnschichtfertigung mit dem Ziel homogenerer Schichten sowie auf fortschrittliche Passivierungs- und Verkapselungsverfahren zu legen. Das Ergebnis macht deutlich, dass die Weiterentwicklung dieser Technologie einen interdisziplinären Prozess erfordert, der die Bereiche Materialwissenschaft, Elektrotechnik und Verfahrenstechnik integriert.

Gefördert durch:



Bundesministerium
für Forschung, Technologie
und Raumfahrt

Methoden zur Entnahme von atmosphärischem Kohlendioxid (Carbon Dioxide
Removal)

Verbundprojekt NETPEC

Negative Emissionen mittels photoelektrochemischer Methoden

FKZ: 01LS2103E

Teilprojekt NETPEC-UST: Perowskit-Mehrfachsolarzellen

Projektlaufzeit:

01.10.2021 – 31.03.2025

Projektleiter Verbundprojekt: Prof. Dr. Michael Saliba

PI: Michael Saliba

Adresse: Institute for Photovoltaics, University of Stuttgart, Pfaffenwaldring 47
70569 Stuttgart, Germany.

(Im folgenden Text wird über das Unterprojekt NETPEC - UST gesprochen.)

Kurzzusammenfassung des Teilprojekts UST:

Im Rahmen des NETPEC-Projekts wurde untersucht, wie Photovoltaik-Technologien zur Bereitstellung von Solarstrom für elektrochemische Verfahren zur CO₂-Abscheidung und -Umwandlung eingesetzt werden können. Durch die direkte Nutzung der Sonnenenergie in Form von Elektrizität aus Solarzellen lassen sich CO₂-Moleküle in kohlenstoffreiche, feste oder flüssige Produkte umwandeln, was eine sichere und langfristige Speicherung ermöglicht. Die theoretisch erreichbaren Wirkungsgrade moderner Solarzellen in Kombination mit elektrochemischer Umwandlung übertreffen die Effizienz der natürlichen Photosynthese deutlich, wodurch im Vergleich zu biomassebasierten Methoden erheblich weniger Landfläche benötigt wird. Perowskit-Photovoltaiken (PPVs) sind aufgrund ihrer einstellbaren Bandlücken und hohen Spannungsabgaben besonders geeignet, um hocheffizient den für die elektrochemische CO₂-Umwandlung erforderlichen Solarstrom bereitzustellen. Die Entwicklung von Perowskit-Solarzellen (PCE bis zu 26,1 %) wird durch unkontrollierte Kristallisation, Phasenumwandlungen und Grenzflächenfehler limitiert. Um die Kristallqualität zu verbessern, führte das Teilprojekt UST mittels Lösungsmittel-Engineering Dimethylsulfid (DMS, DN = 38,8) ein. DMS hat einen hohen Dampfdruck und eine starke Koordination zu Pb²⁺, wodurch eine gleichmäßige Keimbildung gefördert wird. Dadurch stieg die PCE der MAPbI₃- und FAPbI₃-Bauteile auf 21,6 % bzw. 23,5 %. Zur Stabilisierung der instabilen Phase von FAPbI₃ wurde 35 % MAI eingesetzt, um die Bildung der schwarzen Phase zu steuern, und in Kombination mit MABr zur Defektpassivierung eine PCE von 23,0 % erzielt. Für MAPbCl₃ mit breitem Bandabstand wurde durch MAI-Dampf-Tempern die Kristallisation optimiert und eine hohe Leerlaufspannung von 1,78 V erreicht. Im Bereich des Grenzflächenschutzes bildete P3HT auf der CsPbI₂Br-Oberfläche organische Addukte, wodurch die Bauteile bei 60 % relativer Luftfeuchtigkeit nach 30 Minuten noch 90 % ihrer Anfangseffizienz aufwiesen. Zusätzlich verhinderte eine 0,75 nm dicke Al₂O₃-Schicht, abgeschieden mittels Atomlagenabscheidung, den Ionendiffusionsaustausch, sodass die Bauteile nach 1500 Stunden Betrieb im Freien noch 98 % ihrer ursprünglichen Leistung beibehielten. Um die für das Projekt erforderlichen Spannungs- und Stromwerte zu erreichen, wurde zudem die Machbarkeit von Seriell-Parallel-Verschaltungen von Solarzellen untersucht.

Inhaltsverzeichnis

I.	Zahlenmäßiger Nachweis.....	3
II.	Ausführliche Beschreibung der durchgeführten Arbeiten	3
III.	Verwertung	12
	4.1 Wirtschaftliche Aspekte.....	12
	4.2 Wissenschaftliche Aspekte	12
	4.3 Wissenschaftliche und wirtschaftliche Anschlussfähigkeit	12
	4.4 Veröffentlichungen und Sichtbarkeit	13

I. Zahlenmäßiger Nachweis

Im folgenden Abschnitt sind die wichtigsten Positionen des zahlenmäßigen Nachweises aufgelistet.

1. Personal: Das Projekt wurde von einem wissenschaftlichen Mitarbeiter betreut, welcher von einer studentischen Hilfskraft unterstützt wurde.
2. Verwaltungsausgaben/Sachmittel: Für die Arbeiten im Labor wurden insbesondere Chemikalien für die Herstellung von Solarzellen sowie Verbrauchsmittel im Zusammenhang mit den Experimenten (Handschuhe, Kittel, Kanülen, Reagenzgläser etc.) benötigt.
3. Dienstreisen: Das wissenschaftliche Personal sowie die Projektleitung besuchten internationale Konferenzen (u.a. in Boston), wo die Ergebnisse einem breiten Publikum präsentiert wurden. Außerdem Teilnahme an Projekt-Meetings des Verbundprojekts.
4. Anschaffung einer Heizplatte sowie eines Sonnensimulators für Langzeittests der Solarzellen.

II. Ausführliche Beschreibung der durchgeführten Arbeiten

Der Beginn des NETPEC-Projekts war für den 01.10.2021 veranschlagt, die entsprechenden Postdoc- bzw. Doktoranden-Stellen konnten allerdings erst bis Mitte Februar 2022 besetzt werden. Trotz verspätetem Projektbeginn sowie einiger Corona-bedingter Verzögerungen konnten die Projektziele, dank der kostenneutralen Verlängerung, aber bis zum finalen Projektende am 31.03.2025 erreicht werden.

1.1 Arbeitsplan des Gesamtprojekts

Das Projekt war in sieben Arbeitspakete gegliedert, die einen breiten Themenbereich von grundlegenden Aspekten der heterogenen Katalyse über Klimamodellierung und geologischer Endlagerbewertung bis hin zur integrierten Nachhaltigkeitsbewertung abdeckten. Die jeweiligen Arbeitspakete waren auf das gemeinsame Ziel hin ausgerichtet, einen technologischen Ansatz zur effizienten Kohlenstoffentnahme zu entwickeln und diesen ganzheitlich zu betrachten und sind in Abb. 1 schematisch dargestellt. Um den Fortschritt und letztlich den Erfolg des Projekts zu gewährleisten, haben sich die durchgeführten Arbeiten an den in Tab. 1 aufgeführten Meilensteinen orientiert und auf deren Erreichen abgezielt. Im **AP1** wurden Katalysatoren für die Herstellung von Oxalat und Kohlenstoffflocken synthetisiert und bezüglich Leistung und Funktionsweise (Reaktionsmechanismen) evaluiert. Hierzu wurden elektrochemische und spektroskopische Methoden verwendet und Simulationen durchgeführt. Im **AP2** sollten maßgeschneiderte Lichtabsorber entwickelt und mit dem elektrochemischen Prozess gekoppelt werden. In **AP3** wurden die Rahmenbedingungen für den großflächigen Betrieb von NETPEC basierten photoelektrochemischen Kohlenstoffsensoren untersucht. Insbesondere wurden hier Lokalklima, lokale Speicherpotenziale und resultierende, theoretisch erreichbare Effizienzen untersucht. Die Speicherung möglicher Produkte wurde in **AP4** bezüglich der verfügbaren Speicherpotenziale, aber auch im Hinblick auf Klima-Aspekte und Produkt-Reservoir-Wechselwirkung evaluiert. Schließlich wurden in **AP5** die Erkenntnisse von AP1-4 zusammengeführt um ein Gesamtdesign für eine effiziente Kohlenstoffsensoren zu definieren und experimentell zu demonstrieren. Dies geschah im kontinuierlichen Austausch mit **AP6**, welches die vorigen Arbeitspakete bezüglich ihrer Nachhaltigkeit bewertete. **AP7** widmete sich der Verwertung und Kommunikation der Ergebnisse, sowie der Zusammenarbeit mit dem Syntheseprojekt CDRSyntra (im Rahmen von CDR Terra).

Das Unterprojekt UST war an den Arbeitspaketen AP2 sowie AP5 des NETPEC-Vorhabens beteiligt. Im Folgenden werden die in den Arbeitspaketen durchgeführten Arbeiten detailliert dargestellt. Um deren Notwendigkeit und Angemessenheit aufzuzeigen, werden diese mit den Meilensteinen des Projektantrags abgeglichen. **Meilenstein M2** bezog sich auf die Etablierung der Infrastruktur und wurde entsprechend im Laufe des Projekts abgeschlossen.

		2021			2022					2023			2024	
Arbeitspaket	Zusammenfassung	Partner	Q1	Q2	Q3	Q4	Q5	Q6	Q7	Q8	Q9	Q10	Q11	Q12
AP1	AP1.1	HZB UTUE2 UULM						M5						
	AP1.2								D-AP1-2					
	AP1.3													
AP2	AP2.1	UST UTUE2 HZB UULM				M2								
	AP2.2													
	AP2.3													
	AP2.4													
AP3	AP3.1	UTUE1 TUDa UTUE2				M3								
	AP3.2													
	AP3.3													
AP4	AP4.1	UTUE1 TUDa												
	AP4.2													
AP5	AP5.1	HZB UTUE2 UULM UST KIT												
	AP5.2													
	AP5.3													
	AP5.4													
	AP5.5													
AP6	AP6.1	KIT (alle) KIT KIT (alle) KIT KIT (alle) Alle												
	AP6.2													
	AP6.3													
	AP6.4													
	AP6.5													
Verbundtreffen	AP7.1	UTUE2 Alle												
	AP7.2													
Programmtreffen			W1	W2	W3	W4	W5	W6	W7	W8	W9	W10	W11	W12
			TUE	1.5d		BLN	1.5-day, Q2/22	STG	Q2/23, 1.5d	ULM	Q1/24 1.5d	TUE	Q3/24, 2.5d	
			Kassel (GA, 2d)	Potsd. (WS, 2d)			Kassel (GA, 2d)	Di. Mus. (WS,2d)		Kassel (WS, 2d)				Bln. (GA mit MARE:N)

1: Tabelle Im Projektverlauf anvisierte Meilensteine. Die Meilensteine mit direkter

Abbildung 1: Ursprünglicher Arbeitsplan mit Meilensteinen, unterteilt nach Arbeitspaketen und Projektpartnern.

Beteiligung des Projektpartners UST sind hervorgehoben.

	Arbeitspaket	Zusammenfassung
M1	7	Experimentelle Infrastruktur für alle Gruppen wurde etabliert
M2	2	Erste Solarabsorber an Verbundpartner
M3	3	Rahmenbedingungen definiert
M4	6	Ranking von NETPEC aus Nachhaltigkeitsperspektive
M5	1	Erreichbare solar-to-carbon Effizienzen evaluiert: Entscheidung für vertiefte Analyse bei einem Produktpfad
M6	6	Vorläufige Umwelt- und Kostenschwachstellenanalyse basierend auf NETPEC-Daten
M7	5	Identifikation von Prozesspfaden für Katalysatoren und Produkten der nächsten Generation
M8	4	Grobskalige Gitterdaten mit geologischen und klimatologischen Rahmenbedingungen für Verbundpartner
M9	6	Nachhaltigkeitsbewertung

1.2 Arbeitspakete mit Beteiligung des Projektpartners UST

AP2.1: Design, Evaluation und Bereitstellung von Lichtabsorbern

Im Rahmen des NETPEC-Projekts wird angestrebt, Solarenergie zur effizienten Erfassung und Umwandlung von CO₂ aus der Atmosphäre zu nutzen. Dabei wird ein Prozess verfolgt, der analog zur natürlichen Photosynthese CO₂ in stabile feste oder flüssige Kohlenstoffprodukte transformiert und somit eine langfristige Kohlenstoffspeicherung ermöglicht. Perowskit-Solarzellen dienen hierbei als hocheffiziente photovoltaische Energiequelle. Deren einstellbare Bandlücke erlaubt eine Anpassung der Spannung an elektrochemische CO₂-Reduktionsreaktionen und ermöglicht somit eine höhere Energieumwandlungseffizienz als bei der natürlichen Photosynthese.

Das AP2.1 konzentriert sich auf die Steigerung der Effizienz der Solarzellen und die Optimierung der Materialeigenschaften von Perowskiten. Im Bereich der Lösungsmitteltechnik bestehen bei herkömmlichen Antisolventien wie Chlorbenzol (CB) Einschränkungen aufgrund unvorhersehbarer Koordinationsverhalten und Toxizität. Entsprechend den Anforderungen des NETPEC-Projekts wurde das innovative Lösungsmittel Dimethylsulfid (DMS) eingesetzt. DMS verfügt über einen hohen Elektronendonationswert (Gutmann DN = 38,8) und einen hohen Dampfdruck. Während des Spin-Coating-Prozesses extrahiert es effizient Dimethylsulfoxid (DMSO) aus dem Vorläufer. Die starke Koordination von DMS mit Pb²⁺-Ionen fördert eine gleichmäßige Keimbildung und kontrollierte Kristallisation. Mittels in-situ-Charakterisierungstechniken wie FTIR, PL und GIWAXS wurde der Filmwachstumsprozess in drei Phasen unterteilt. Die resultierenden Filme weisen eine kleinere, homogener verteilte Korngröße ohne PbI₂-Rückstände auf. Dies führte zu einer Steigerung der Photovoltaikleistung von MAPbI₃-basierten Geräten von 19,1 % auf 21,6 % und von FAPbI₃-basierten Geräten von 20,9 % auf 23,5 % (siehe Abb. 1a), bedingt durch verbesserte Defektpassivierung und Ladungstransport.

Zur Lösung der Phasenstabilitätsproblematik von FAPbI₃, das leicht in die nicht photovoltaisch aktive hexagonale Phase übergeht, zeigte sich bei der Kombination aus LaMer-Modell und in-situ-optischer Mikroskopie, dass FA⁺-Ionen die Kristallisationszeit signifikant verlängern. Durch die Zugabe des

niedrigsiedenden Kristallisationshilfsmittels MACl (35 mol %) konnte eine reine schwarze Phase gezielt gebildet werden, da MACl leicht flüchtig ist und das $[\text{PbI}_6]^{4-}$ -Gerüst unverändert lässt. Parallel dazu reduzierte MABr als Passivierungsmittel durch starke Adsorption an der PbBr_2 -Oberfläche Defekte und verbesserte die Stabilität der Dünnschichten signifikant. Die behandelten Filme zeigten bei einer relativen Luftfeuchtigkeit von unter 45 % eine Stabilität von über einer Woche bei einer erzielten Geräteeffizienz von 23,0 %. Ein ähnliches Konzept wurde auf das breitbandige MAPbCl_3 ($E_g = 3,03$ eV) übertragen: MACl-Dampfglühen förderte dabei die Kornumstrukturierung und erzeugte dichte, glatte Filme. Dies führte zu einer Steigerung der Leerlaufspannung auf einen Rekordwert von 1,78 V (siehe Abb. 1b).

Zur weiteren Verbesserung der Langzeitstabilität wurde der Fokus auf die Stabilisierung der Grenzfläche gelegt. So wurde für das vollständig anorganische CsPbI_2Br -Perowskit eine Schutzschicht aus Poly(3-hexylthiophen) (P3HT) deponiert. XPS-Analysen bestätigten die Bildung organischer Additionsprodukte (z. B. $-\text{CH}_3\text{Br}$), welche die Anzahl der unterkoordinierten Bleiatome wirksam reduzierten. Die Geräte behielten unter 60 % relativer Luftfeuchtigkeit über 30 Minuten eine Effizienz von 90 % bei und wiesen eine thermische Stabilität von über fünf Stunden bei 250 °C auf. Eine weitere Strategie umfasste die Abscheidung einer ultradünnen ($\sim 0,75$ nm) Al_2O_3 -Schicht mittels Atomic Layer Deposition (ALD). Diese wurde durch TEM als homogen und vollständig deckend charakterisiert. Diese Schicht hemmte sowohl die Migration von Halogenidionen im Perowskit als auch das Eindringen von Additiven der Lochtransportschicht (zum Beispiel Abbauprodukte von Spiro-OMeTAD). Die Behandlung mit der Schutzschicht führte zu einer Steigerung der Effizienz der Solarzellen von 19,1 % auf 20,5 %. Zudem konnte selbst nach 1500 Stunden im Feld eine 98% der ursprünglichen Leistung gemessen werden, während die Effizienz der unbehandelten Solarzellen, also ohne Schutzschicht, auf unter 10 % absank.

Diese Ergebnisse unterstreichen die zentrale Bedeutung fortschrittlicher Perowskit-Photovoltaikmaterialien und -prozesse im NETPEC-Projekt und legen eine solide Grundlage für die Entwicklung effizienter und stabiler solarbetriebener CO_2 -Umwandlungssysteme sowie nachhaltiger Kohlenstoffspeicherung.

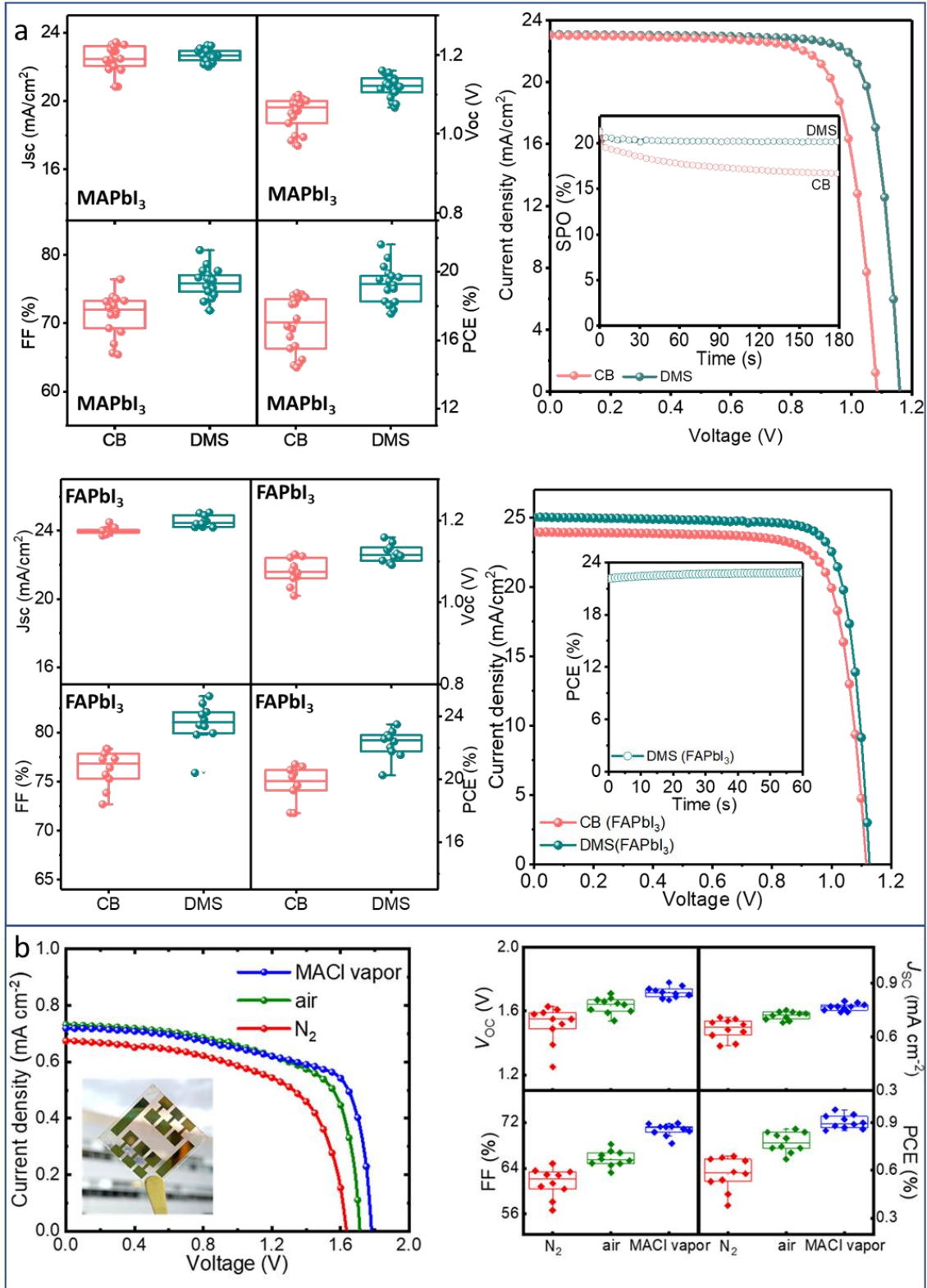


Abbildung 1: (a) Die Leistung von MAPbI₃- und FAPbI₃-basierten Bauelementen mit DMS-behandelter Absorptionsschicht; (b) Die Leistung von MAPbI₃-basierten Bauelementen mit MACI-Behandlung.

AP5.4 Anpassung der Absorber an optimale Photospannung

Gegenwärtig weisen im Labor hergestellte einzelne Perowskit-Solarzellen eine vergleichsweise geringe Leerlaufspannung auf. Wie in den Abbildungen 1a und 1b dargestellt, überschreiten die maximalen Leerlaufspannungen von FAPbI_3 und MAPbI_3 nicht 1,2 V. Die tatsächliche Ausgangsspannung (Spannung am Punkt maximaler Leistung) liegt dabei unterhalb der Leerlaufspannung. Zwar erreicht MAPbCl_3 eine Leerlaufspannung von 1,78 V, jedoch ist der Ausgangsstrom äußerst gering, sodass die Leistungsanforderungen des NETPEC-Projekts zunächst nicht erfüllt werden. Zur Lösung dieses Problems haben wir eine Verschaltung entwickelt, die Serien- und Parallelelemente kombiniert, um gleichzeitig die Ausgangsspannung und den Ausgangsstrom zu erhöhen (siehe Abb. 2). Allerdings bringt diese Konfiguration Herausforderungen in Bezug auf die Stabilität mit sich: Einerseits erhöht sich die Anzahl der Kontaktstellen, andererseits gibt es Einschränkungen bei der Verkapselung. Dies kann zu einer Instabilität des Ausgangsstroms und zu einer schnelleren Degradation führen. Daher erwägen wir im nächsten Schritt den Einsatz einer Modulbauweise zur Herstellung großflächiger und stabiler Perowskit-Solarzellen.

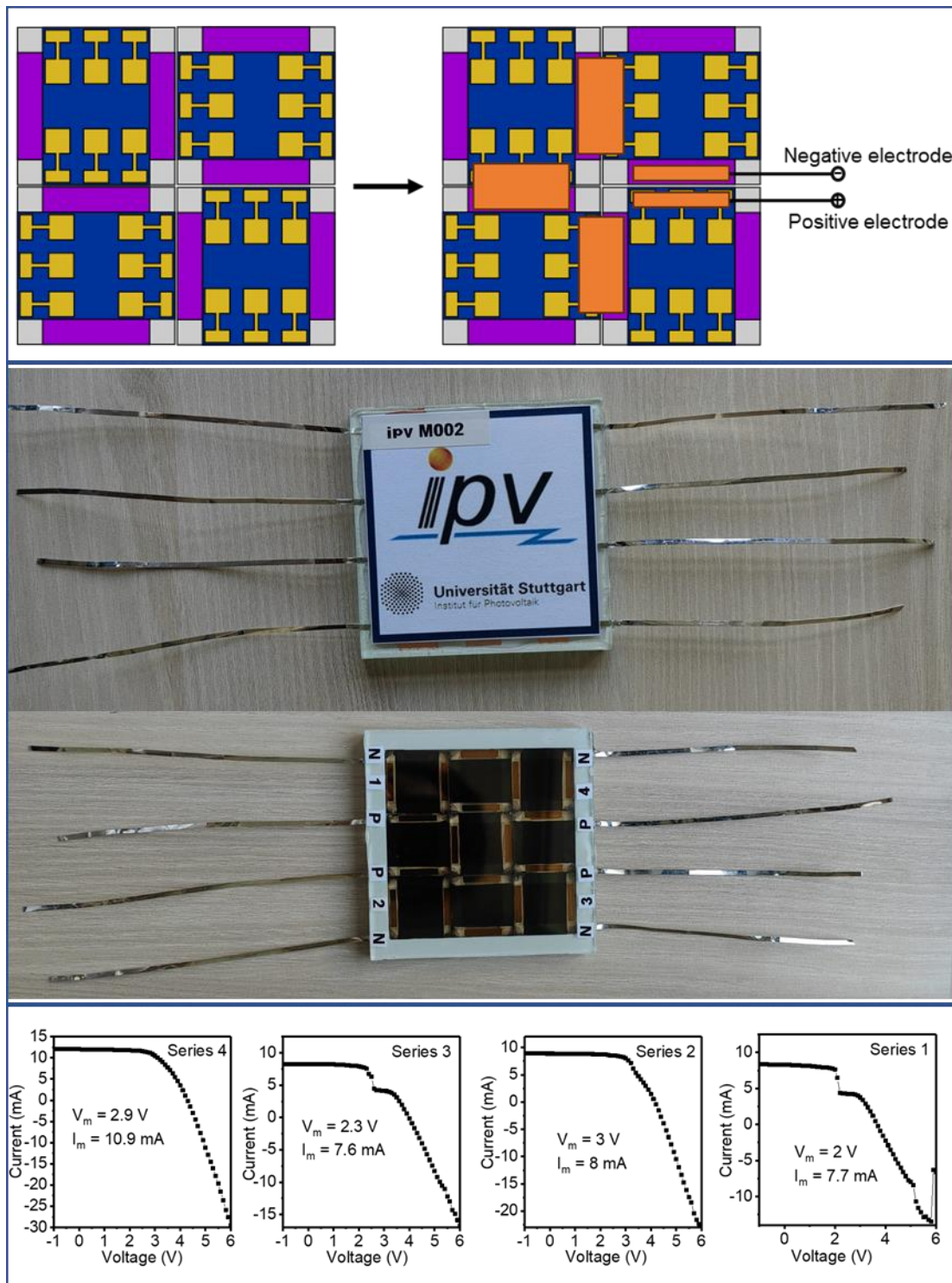


Abbildung 2: Schematische Darstellung der Verschaltung von Solarzellen sowie Modulbeispiele mit zugehörigen Leistungsparametern.

Meilenstein M2 - Erste Solarabsorber an Verbundpartner. Der Meilenstein M2 wurde im Rahmen des Arbeitspakets A2 erreicht. Aufgrund von Einschränkungen bei der Verkapselung sowie materialbedingten Eigenschaften weisen die Perowskit-Solarzellen jedoch eine noch zu geringe Stabilität auf. Sie können daher bislang nur für vorläufige Tests eingesetzt werden und müssen weiter optimiert werden.

Notwendigkeit und Angemessenheit der geleisteten Projektarbeiten

Das Unterprojekt UST war im Rahmen des BMBF-Verbundvorhabens NETPEC den Arbeitspaketen AP2 und AP5 zugeordnet. Die durchgeführten Arbeiten waren notwendig, um einen zuverlässigen Beitrag zur Energieversorgung der elektrochemischen CO₂-Fixierungsprozesse innerhalb des Verbundprojekts zu leisten. Während andere Partner an der katalytischen Umsetzung und Systemintegration arbeiteten, konzentrierte sich das UST-Team auf die Entwicklung und Optimierung von Perowskit-Solarzellen als Lichtabsorber und elektrische Energiequelle für die im Verbund konzipierten Reaktorsysteme.

Im Arbeitspaket AP2 wurden neuartige Perowskit-Dünnschichten synthetisiert und hinsichtlich Kristallqualität, Stabilität und Effizienz optimiert. Dabei kamen koordinationschemische Methoden, in-situ-Spektroskopie und gezielte Grenzflächenmodifikationen zum Einsatz. Diese Arbeiten waren notwendig, um belastbare und reproduzierbare Energiequellen für die CO₂-Reduktionssysteme der Partner bereitzustellen.

Im Arbeitspaket AP5 erfolgte die enge Abstimmung mit den Reaktorentwicklungsgruppen. Hierbei stellte UST Photovoltaik-Testzellen bereit, die unter realitätsnahen Betriebsbedingungen zur Energieversorgung der elektrochemischen Prozesse genutzt wurden. Dadurch konnten Schnittstellenprobleme identifiziert und die technische Kompatibilität zwischen Solarzellen und Reaktoreinheiten überprüft werden.

Der im Projektantrag definierte Meilenstein M2 – der Aufbau der erforderlichen Infrastruktur – wurde erfolgreich erreicht. Die Arbeiten waren inhaltlich notwendig, methodisch angemessen und trugen wesentlich zur Umsetzung der NETPEC-Zielstellungen bei.

Gleichzeitig zeigte sich jedoch, dass die derzeitige Stabilität der Perowskit-Solarzellen die kontinuierliche Energieversorgung der Reaktorsysteme noch begrenzt. Unter Langzeitbelastung und wechselnden Umweltbedingungen traten Effizienzverluste auf, die den praktischen Einsatz der Module einschränkten. Diese Erkenntnis ist für das Gesamtprojekt von hoher Relevanz, da sie den zukünftigen Forschungsbedarf klar aufzeigt: Die Verbesserung der Betriebsstabilität und elektrischen Ausgangskonstanz von Perowskit-Photovoltaiksystemen bleibt eine zentrale Herausforderung, um ihren Einsatz als zuverlässige Energiequelle für CO₂-Umwandlungsprozesse zu ermöglichen.

Während der Durchführung des Vorhabens bekannt gewordene Fortschritte auf dem Gebiet des Vorhabens bei anderen Stellen

Während der Laufzeit des NETPEC-Projekts wurden weltweit relevante Fortschritte im Bereich der Perowskit-Photovoltaik und photoelektrochemischen Energiesysteme erzielt. Internationale Forschungsgruppen entwickelten neue Konzepte zur Stabilisierung von Perowskit-Phasen, zur Verbesserung der Feuchte- und Temperaturbeständigkeit sowie zur Skalierung von Hochleistungsmodulen. Parallel dazu wurden in mehreren Forschungsverbänden Strategien zur Kopplung von Solarzellen mit elektrochemischen CO₂-Reduktionsreaktoren erprobt.

Diese Entwicklungen bestätigen die Aktualität und wissenschaftliche Relevanz der im NETPEC-Verbund verfolgten Arbeiten. Das Teilprojekt UST hat mit seinem Fokus auf die chemisch kontrollierte Kristallisation und Stabilisierung von Perowskit-Dünnschichten eine eigenständige, komplementäre Rolle eingenommen. Durch den intensiven Austausch mit Partnern aus den Arbeitspaketen AP1, AP3 und AP6 konnten Ergebnisse und Herausforderungen kontinuierlich abgestimmt werden.

Obwohl die derzeitige Materialstabilität den Dauerbetrieb noch limitiert, hat das Teilprojekt wesentlich zur wissenschaftlichen Fundierung und Energieeffizienzbewertung der im Verbund entwickelten Systeme beigetragen und damit die Basis für zukünftige, robustere Photovoltaikkomponenten im Rahmen von NETPEC geschaffen.

III. Verwertung

Die prinzipielle Machbarkeit des Ansatzes konnte mittels einer ersten Kopplung von Solarabsorber und elektrochemischer Zelle gezeigt werden. Somit könnten die Forschungsergebnisse von NETPEC zukünftig von großer gesellschaftlicher Relevanz sein, da NETPEC CDR das Potenzial hat, einen (signifikanten) Beitrag zum CDR Portfolio zu leisten. Um dies weiterzuverfolgen ist ein Folgeprojekt zur Entwicklung eines Prototypen geplant, welches darauf abzielt offene wissenschaftliche Frage zu klären und gleichzeitig die wirtschaftliche Relevanz in Richtung Kommerzialisierung erhöhen soll.

4.1 Wirtschaftliche Aspekte

Die in NETPEC erzielten Ergebnisse können zukünftig von großer klimapolitischer Relevanz bezüglich des in Deutschland (und weltweit) angestrebten CDR Portfolios werden. Die im Projekt erfolgreich durchgeführten Arbeiten haben ein Verständnis der grundlegenden Prozesse erreicht und konnten die prinzipielle Machbarkeit des Ansatzes zeigen. Eine Potenzialabschätzung für die photoelektrochemische CO₂-Reduktion zur Erzeugung von Kohlenstoffclustern (und Oxalat) als Kohlenstoffsenken zeigt, dass PEC eine effiziente und großflächig anwendbare Technologie ist. Allerdings sind hierfür noch deutliche Effizienzsteigerungen notwendig. Daher können die tatsächlichen wirtschaftlichen und klimapolitischen Erfolgsaussichten nicht abschließend bewertet werden. Allerdings ist anzumerken, dass der Wirtschaftsstandort Deutschland von innovativen Klimatechnologien profitieren kann, da es sich hier um einen rasant wachsenden Markt mit großen Zukunftschancen handelt. Aufgrund der angestrebten Entnahme von voraussichtlich weltweit mindestens 10 Gt CO₂ jährlich (im Jahr 2050) aus der Atmosphäre ergibt sich sowohl kurz- als auch mittel- und langfristig ein großes ökonomisches Potenzial. Im Vergleich mit anderen CDR Methoden hätte ein NETPEC Ansatz mit gesteigerter Effizienz enorme Vorteile bei Flächenverbrauch und Speicherung, was in einer starken Marktposition resultieren könnte. Prinzipiell sind Produkte wie graphitischer Kohlenstoff interessant für industrielle Anwendungen (z.B. als Anodenmaterial für Lithium- und Natrium-Ionen Batterien), allerdings ist hier der Stoffumsatz um ein Vielfaches geringer als er für signifikante negative Emissionen nötig wäre.

4.2 Wissenschaftliche Aspekte

Im Teilprojekt UST förderte der Einsatz von Dimethylsulfid (DMS, DN = 38,8) eine gleichmäßige Keimbildung während der Dünnschichtformation, wodurch die Effizienz von MAPbI₃ und FAPbI₃ auf 21,6 % bzw. 23,5 % stieg. Mit 35 % MAI zur Phasenstabilisierung und MABr zur Defektpassivierung erreichte FAPbI₃ 23,0 %, während MAI-Dampf-Tempern für MAPbCl₃ eine Leerlaufspannung von 1,78 V ermöglichte. P3HT-Beschichtungen hielten 90 % Effizienz bei 60 % Luftfeuchtigkeit; eine 0,75 nm Al₂O₃-Schicht hielt 98 % der Leistung nach 1500 Stunden im Freien. Zudem wurde die Machbarkeit von Seriell-Parallel-Verschaltungen zur Erfüllung der Projektanforderungen untersucht.

In Bezug auf die wissenschaftliche Relevanz der im Projektverlauf erzielten Ergebnisse kann das Gesamtprojekt als erfolgreich bewertet werden und bietet erfolgversprechende Ansatzpunkte für zukünftige Forschungsarbeiten.

4.3 Wissenschaftliche und wirtschaftliche Anschlussfähigkeit

Nach Abschluss des Projekts ist sowohl die wissenschaftliche als auch die wirtschaftliche Anschlussfähigkeit aufgrund der in 4.1 und 4.2 genannten Aspekte als hoch einzuschätzen. Diese sollen in der Fortführung des NETPEC-Projekts (NETPEC2) adressiert werden und zielen auf die Entwicklung eines autonom funktionierenden Prototypen ab.

4.4 Veröffentlichungen und Sichtbarkeit

Im Berichtszeitraum konnten wesentliche wissenschaftliche Fortschritte in der kontrollierten Kristallisation und Stabilisierung von Metallhalogenid-Perowskiten erzielt werden, die in mehreren hochrangigen Fachzeitschriften publiziert wurden. Diese Publikationen belegen nicht nur den erfolgreichen Verlauf des Projekts, sondern haben auch zu einer deutlichen Steigerung der internationalen Sichtbarkeit der beteiligten Arbeitsgruppe beigetragen.

So wurde in *Advanced Materials* (Zuo et al., 2023) erstmals ein universelles Koordinationschemie-Konzept vorgestellt, das die Kristallisationsprozesse gezielt steuert und zu hochgeordneten, defektarmen Perowskitfilmen führt. Aufbauend darauf konnten in *Energy & Environmental Science* (Zuo et al., 2024) die Dynamik und Stabilisierung der reinen α -FAPbI₃-Phase detailliert aufgeklärt werden, was entscheidende Impulse für die Entwicklung langlebiger, effizienter Solarzellen liefert.

Darüber hinaus demonstrierten begleitende Arbeiten in *ACS Energy Letters* (Zia et al., 2024) und *EES Solar* (Jerónimo-Rendon et al., 2025) neue material- und prozessbezogene Ansätze zur Effizienzsteigerung — etwa durch den Einsatz von MAPbCl₃-Lichtabsorbern oder durch hochkoordinative Lösungsmittelbäder, die die Kornstruktur und Oberflächenqualität verbessern. Parallel dazu wurden in *Energy & Environmental Science* (Roy et al., 2025; Kedia et al., 2025) Strategien zur thermischen und chemischen Stabilisierung entwickelt, darunter polymerbasierte Schutzschichten sowie ultradünne Al₂O₃-Barrierschichten, die eine deutliche Erhöhung der Lebensdauer von Perowskitschichten ermöglichen.

Diese Ergebnisse bilden zusammen mit der in *Nature Reviews Materials* (Wu et al., 2025) veröffentlichten systematischen Analyse von Degradationspfaden und Resilienzstrategien einen geschlossenen Erkenntnisrahmen, der wissenschaftlich fundierte Wege zur technischen Reifung von Perowskit-Solarzellen aufzeigt. Die kontinuierlichen Publikationen in führenden Journals mit hohem Impact-Faktor verdeutlichen die internationale Wettbewerbsfähigkeit und Sichtbarkeit des Projekts.

Die erreichten Resultate sind nicht nur von wissenschaftlicher Relevanz, sondern eröffnen auch konkrete technologische Perspektiven für die Umsetzung in großflächige, flexible und stabile Perowskit-Photovoltaik. Die anhaltende Resonanz in der internationalen Fachgemeinschaft (u. a. durch Zitationen, Konferenzvorträge und Kooperationen) belegt die nachhaltige Wirkung der erzielten Arbeiten und unterstreicht die wissenschaftlichen Erfolgsaussichten des Projekts.

1. Zuo, W. et al. Coordination Chemistry as a Universal Strategy for a Controlled Perovskite Crystallization. *Advanced Materials* 35, 2302889 (2023).
2. Zuo, W. et al. Crystallization dynamics and stabilization of FAPbI₃ single-phase perovskite. *Energy Environ Sci* 17, 1407–1415 (2024).
3. Zia, W. et al. MAPbCl₃ Light Absorber for Highest Voltage Perovskite Solar Cells. *ACS Energy Lett* 9, 1017–1024 (2024).
4. J. Jerónimo-Rendon, J. et al. High coordination-solvent bathing for efficient crystallization of MA-free triple halide perovskite solar cells. *EES Solar* 1, 30–40 (2025).

5. Roy, R. et al. All-inorganic CsPbI₂Br perovskite solar cells with thermal stability at 250 °C and moisture-resilience via polymeric protection layers. *Energy Environ Sci* 18, 1920–1928 (2025).
6. Kedia, M. et al. Mitigating the amorphization of perovskite layers by using atomic layer deposition of alumina. *Energy Environ Sci* 18, 5250–5263 (2025).
7. Wu, L. et al. Resilience pathways for halide perovskite photovoltaics under temperature cycling. *Nat Rev Mater* 10, 536–549 (2025).