

EDTA 改性埋底界面实现高效稳定的无机钙钛矿太阳电池

高京萍, 王跃霖, 王三龙

(东北电力大学电气工程学院, 现代电力系统仿真控制与绿色电能新技术教育部重点实验室, 吉林 吉林 132012)

摘 要: 无机钙钛矿与电子传输层之间较差的界面特性限制了无机钙钛矿太阳电池光伏性能的提升。采用乙二胺四乙酸(EDTA)对埋底界面进行处理, 利用 EDTA 四个羧基基团与 SnO_2 的羟基相互反应, 改善界面特性, 提升无机钙钛矿薄膜结晶质量, 降低缺陷态密度并抑制非辐射复合。最终基于空气制备的组分为 $\text{CsPbI}_{2.25}\text{Br}_{0.75}$ 的 n-i-p 型器件实现了 18.84% 的功率转换效率且稳定性优异。

关键词: 无机钙钛矿; 界面特性; 结晶质量; 缺陷态密度; 非辐射复合

中图分类号: TM914.4 文献标志码: A 文章编号: 0454-5648(2026)07-2424-07

网络出版时间: 2026-04-08



传统晶硅电池即将到达其极限效率^[1]。发展效率更高的太阳电池有助于减小占地面积, 推进中国 2030 年之前实现“碳达峰”, 2060 年之前实现“碳中和”。钙钛矿太阳电池结构为 ABX_3 ($\text{A}=\text{FA}^+, \text{MA}^+, \text{Cs}^+$; $\text{B}=\text{Pb}^{2+}, \text{Sn}^{2+}$; $\text{X}=\text{Cl}^-, \text{Br}^-, \text{I}^-$)^[2]。A 位为挥发性有机阳离子的钙钛矿太阳电池, 通常表现出较差的热稳定性, 不利于实用化进程。无机钙钛矿太阳电池(IPSCs)A 位只有 Cs^+ , 表现出优异的光、热稳定性。然而, Cs^+ 的半径相对较小, 改变了 B—X 键的长度, 导致 $[\text{PbX}_6]^{4-}$ 自发畸变成非光伏相(δ)^[3-5]。此外, CsPbX_3 具有较大的溶剂化熵, 在空气中受到水分子攻击时会自发地形成碘空位(V_I)^[3, 6-7]。 V_I 不仅会使 Pb^{2+} 生成捕获电子的表面悬挂键, 还会影响钙钛矿的对称性进而降低稳定性^[8-10]。容差因子 $t = \frac{R_\text{A} + R_\text{X}}{\sqrt{2}(R_\text{B} + R_\text{X})}$ 和八面体因子 $\mu = \frac{R_\text{B}}{R_\text{X}}$ 是评判钙钛矿热力学稳定性的重要参数^[11]。 R_A 、 R_B 和 R_X 分别为的对应离子半径, 由式可见, 由于 I 离子相对于 Br 与 Cl 离子而言更大, 与之而来的是 CsPbI_3 器件的 t 与 μ 数值要小于其他器件(CsPbBr_3 和 CsPbCl_3)。因此尽管 CsPbI_3 的带隙最窄, 拥有相对 IPSCs 中最高极限效率, 但器件稳定性却稍显逊色。为了兼顾效率与稳定性, 学者们尝试将两者特性结合,

制造了组分为 $\text{CsPbI}_x\text{Br}_{3-x}$ 的器件^[12]。然而过高 Br 的掺入也伴随着相分离程度的提高, 相分离的加剧会导致卤素离子聚集, 最终适得其反, 恶化器件的稳定性, 导致器件分解^[13]。因此本工作为了提高器件的稳定性, 在空气中制作的 IPSCs 组分为 $\text{CsPbI}_{2.25}\text{Br}_{0.75}$ 。

IPSCs 由于软晶格的特性、化学计量的误差、水分的侵蚀等, 不可避免地会自发形成各种各样的缺陷, 例如 V_I 、铅空位 V_Pb 、间隙碘 I_I 、碘-铅错位 I_Pb 等一系列缺陷^[14]。不仅如此, 由于无机传输层的制作工艺, 不可避免地会在薄膜表面留下羟基等化学残留, 这会引发钙钛矿的降解, 破坏器件的稳定性^[15]。此外, 近年研究表明, 钙钛矿薄膜表面的深能级缺陷态密度比体内深能级缺陷态密度要大 3 个数量级^[16]。因此对器件的埋底界面处理是解决上述问题的可行办法, 然而由于工艺顺序, 埋底界面需要承受钙钛矿退火的温度而不明显变化, 这导致对器件埋底界面的研究少于上界面及体掺杂处理。Xu 等^[4]使用 3-磺胺-丙烯酸丙酯钾盐对组分为 CsPbI_3 的器件的埋底界面进行处理, 利用路易斯酸碱配位键钝化了失配的 Ti^{4+} 与 Pb^{2+} 缺陷, 优化钙钛矿层与 TiO_2 层之间的能级排列, 最终在 N_2 氛围中实现了 20.98% 的功率转换效率(PCE)。

收稿日期: 2025-05-20。 修订日期: 2025-06-16。

基金项目: 吉林省科技厅项目(YDZJ202501ZYTS397)。

第一作者: 高京萍(2002—), 男, 硕士。

通信作者: 王三龙(1992—), 男, 博士, 讲师。

Received date: 2025-05-20. Revised date: 2025-06-16.

First author: GAO Jingping (2002—), male, Master.

E-mail: 18720607912@163.com

Correspondent author: WANG Sanlong (1992—), male, Ph.D., Lecturer.

E-mail: 20233209@necpu.edu.cn

Liu 等^[17]使用全氟酞菁铜(F_{16}CuPc)对组分为 $(\text{FA}_{0.75}\text{MA}_{0.25})_{0.95}\text{Cs}_{0.05}\text{PbI}_3$ 器件的 $\text{NiO}_x/\text{Me-2PACz}$ 进行埋底界面修饰, 不仅促进钙钛矿结晶, 并且促进钙钛矿薄膜能级转向 p 型, 利于能级对准, 促进器件效率的提升。

目前关于 $\text{CsPbI}_{2.25}\text{Br}_{0.75}$ 的研究相对较少, 对应的埋底界面系统性研究更为匮乏。本工作采用乙二胺四乙酸(EDTA)处理 $\text{CsPbI}_{2.25}\text{Br}_{0.75}$ 器件的埋底界面。EDTA 具有 4 个高电子云密度的羧酸基团($-\text{COOH}$), 不仅能与 SnO_2 表面的羟基反应, 还能与钙钛矿中的失配 Pb^{2+} 配位^[18-19], 改善钙钛矿吸收层与 SnO_2 之间的界面特性, 提升电子的提取效率。最终在空气退火条件下实现 18.84% 的 PCE。

1 实验

1.1 原料

溶剂: 甲酰胺二甲胺(DMF, 99.5%, 质量分数, 下同)、二甲基亚砷(DMSO, 99.5%)、2-丙醇(IPA, 99.5%)、氯苯(CB, 99.5%)均购自 Sigma-Aldrich 公司; 乙腈(99.0%)由北京伊诺凯科技有限公司提供。

埋底界面材料: 乙二胺四乙酸(EDTA, 99.5%)购自上海阿拉丁生化科技股份有限公司。

传输层材料: 2,2',7,7' 四 [N,N-二(4-甲氧基苯基)氨基]-9,9'-螺二芴(Spiro-OMeTAD, 99.5%)、双(三氟甲磺酰)亚胺锂(LiTFSI, 99.0%)、二氧化锡胶体(SnO_2 , 12.0% 水分散液)均来自西安宝莱特光电科技有限公司。

钙钛矿前驱液材料: 碘化铯(CsI , 99.5%)、碘化氢铅(HPbI_3 , 99.5%)、溴化铅(PbBr_2 , 99.5%)采购于西安宝莱特光电科技有限公司。

1.2 实验方法

首先, 清洗 ITO 玻璃。将基底玻璃置于去离子水与玻璃清洗剂的混合溶液中, 超声清洗 15 min。超声结束后再将其分别置于去离子水和异丙醇中, 同样超声 15 min。之后, 将 12%(质量分数)的纳米二氧化锡(SnO_2)溶液用水稀释至 3%, 以 3000 r/min 的速率旋涂于臭氧处理 15 min 后的 ITO 玻璃表面, 旋涂时间为 30 s, 并在 150 °C 的空气环境中退火 30 min。随后, 在 SnO_2 基底表面旋涂 0.1 mg/mL 的 EDTA(H_2O), 100 °C 退火 10 min。在退火期间, 配置钙钛矿前驱液, 将磁子放入 CsI 、 PbI_2 、 PbBr_2 以摩尔比 1.000:0.625:0.375 溶于 $V_{\text{DMF}}:V_{\text{DMSO}}=1:1$ 的钙钛矿前驱体溶液中, 使用磁力搅拌机搅拌至完全溶解以后续使用。然后, 将钙钛矿前驱体溶液旋

涂在基底上, 转速为 2500 r/min, 旋转 75 s, 在 175 °C 下退火 10 min。同样地, 将以 CB 作为溶剂的 Spiro-OMeTAD 旋涂于基底表面, 作为空穴传输层。最后, 使用热蒸发设备将蒸发 80 nm 的 Au 作为钙钛矿电池的金属电极。本次实验全程在相对湿度 (RH) $\leq 25\%$ 的空气中制作。

1.3 测试方法

为了表征 EDTA 对埋底界面接触的改善效果, 通过扫描电子显微镜(SEM)与原子力显微镜(AFM)来探测薄膜表面形貌。SEM 采用 FEI Nova NanoSEM650 (赛默飞, 美国); AFM 采用 NanoNavi-SPA400(日本精工, 日本)。利用稳态光致发光(PL)和时间分辨光致发光(TRPL)测试来评价 EDTA 对钙钛矿缺陷的改善, 测试设备为 FLS980(爱丁堡, 英国)。器件的电流密度-电压($J-V$)特性由 Keithley 2400 Source meter(泰克, 美国)测试。外量子效率(EQE)测量则是借助 QE-R 太阳能电池量子效率测量系统(珠海光焱, 中国)完成, 水接触角测试通过 POWEREACH JC-2000C1(上海中晨, 中国)进行表征。X 射线光电子能谱技术(XPS)使用 K-Alpha X(赛默飞, 美国)射线光电子能谱仪测量, 碳的标准峰为 284.8 eV, 能量分辨率为 0.48 eV, 光谱采集在通过能量为 20 eV 的条件下进行。

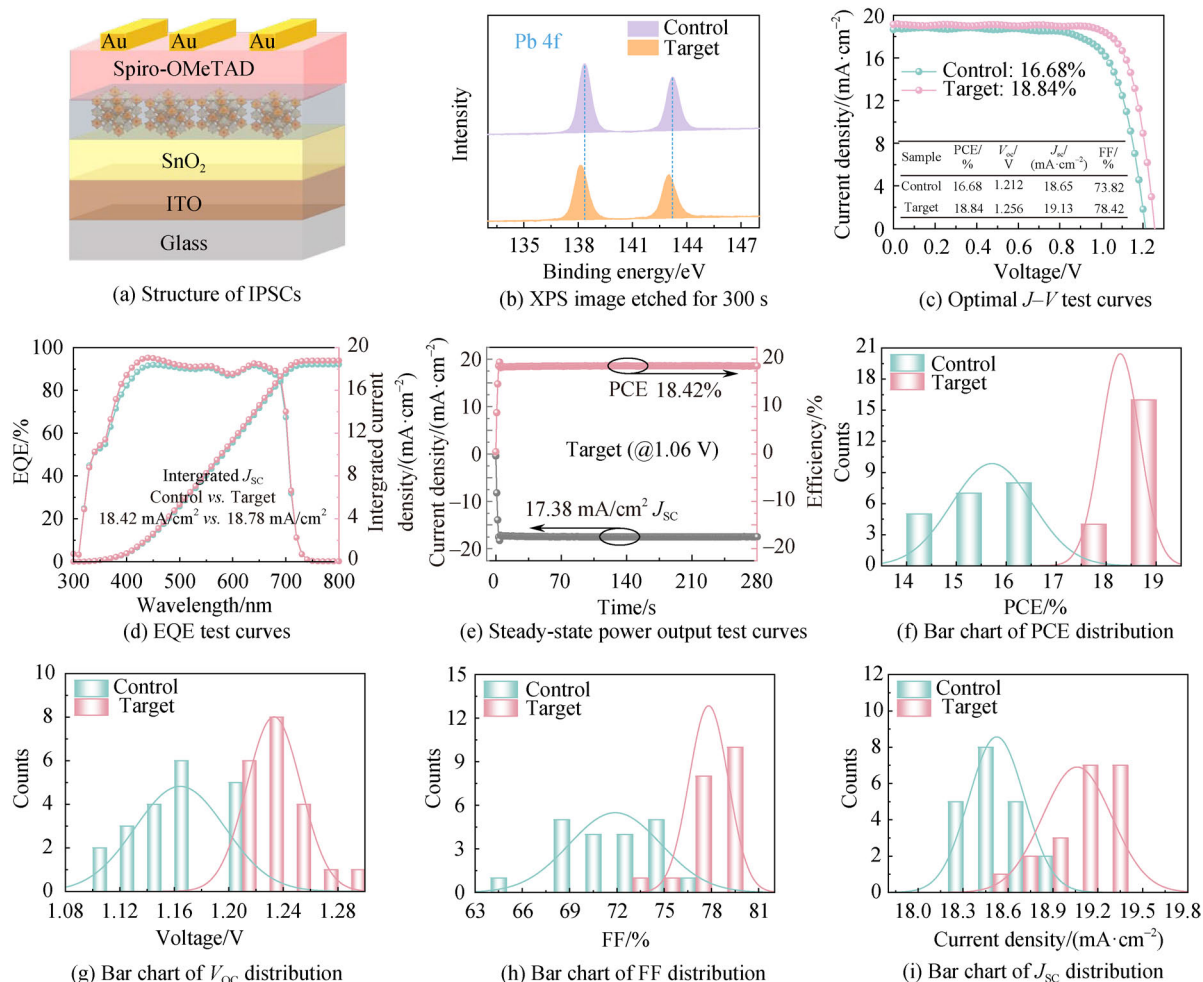
2 结果与讨论

2.1 EDTA 对器件性能的影响

组装结构为 $\text{Glass/ITO/SnO}_2/(\text{EDTA})/\text{CsPbI}_{2.25}\text{Br}_{0.75}/\text{Spiro-OMeTAD}/\text{Au}$ 的器件(图 1a), 将使用 EDTA 处理前后的器件组分别为记为 Control 和 Target。在路易斯酸碱理论中, 作为路易斯碱的羧基可与路易斯酸 Pb^{2+} 产生相互作用, 因此抑制 $\text{V}_{\text{Pb}^{2+}}$ 的产生, 钝化该深能级缺陷, 促进载流子运输。为了证明这一事实, 对 EDTA 处理前后的器件分别进行深度 XPS 测试, 使用薄膜器件对氩气刻蚀 300 s, 得到 EDTA 处理前后对深层钙钛矿薄膜的 XPS 图(图 1b)。显然, 在处理之后, $\text{Pb } 4f$ 轨道的电子结合能降低, 这意味着其电子云密度提高。这归因于 Pb^{2+} 与 EDTA 的羟基产生配位作用, 从而抑制了 $\text{V}_{\text{Pb}^{2+}}$ 的生成。同时, 羧基也能与表面富含羟基的 SnO_2 相互作用, 不仅能遏制羟基对钙钛矿埋底界面的侵蚀, 也能使分子间连接更紧密, 降低埋底界面粗糙程度, 促进高效率器件的组装^[20]。为了评判 EDTA 实际作用, 将两组最佳 PCE 器件的 $J-V$ 曲线与参数记录在图 1c 中。Control 组器件的最佳 PCE 为 16.68%, 而 target 组器件则为

18.84%，相比之下提升了 1.16%。使用 EQE 校验器件光吸收情况(图 1d)，发现经 EDTA 处理之后，积分电流密度从 18.42 mA/cm² 上升到 18.78 mA/cm²，这意味着器件性能提升。Target 装置的最佳 PCE 器件的稳态输出功率(SPO)记录于图 1e，SPO 效率曲线在 280 s 内的波动可忽略不计，效率保持在

18.42%。统计 PCE、开路电压(V_{OC})、填充因子(FF)、短路电流密度(J_{SC})4 个光伏性能参数并绘制正态分布图来观察 EDTA 对器件性能的提升(图 1f~图 1i)，发现经由 EDTA 处理过后，各项参数都得到了一定的提升，与 EQE 的结论相一致，这归因富羟基 EDTA 的埋底界面处理。



J is current density; V is voltage; PCE is power conversion efficiency; V_{OC} is open-circuit voltage; FF is fill factor; J_{SC} is short-circuit current density; EQE is external quantum efficiency.

图 1 EDTA 处理前后 IPSCs 的性能图

Fig. 1 Performance of inorganic perovskite solar cells (IPSCs) before and after ethylene diamine tetra-acetic acid (EDTA) treatment

2.2 EDTA 对薄膜形貌的影响

借助 SEM 对钙钛矿薄膜的表面形貌进行观测(图 2a 和图 2b)。Target 组钙钛矿薄膜表面针孔在一定程度上减少，这间接证明了用 EDTA 处理 SnO₂ 可改善无机钙钛矿与 SnO₂ 的界面接触，从而提高薄膜质量，有利于获得更高光伏性能的装置。为了更直观判断 EDTA 对埋底界面的影响，采用扫描电子显微镜观察样品截面，结果如图 2c 和图 2d 所示。在处理之后，原本布满截面的孔洞几乎消失不见，钙钛矿层与电子传输层之间的裂缝也被填平，这有

利于载流子传输，提高器件效率。AFM 的测试结果(图 2e 和图 2f)表明 EDTA 处理后钙钛矿薄膜表面粗糙度降低，由 Control 组的 27.3 nm 降低到 22.5 nm，与 SEM 结果相对应。

2.3 EDTA 的作用机制

薄膜的各种缺陷会捕获载流子，产生非辐射复合，制约器件的光伏性能^[21–23]。采用 PL 图谱对薄膜进行表征(图 3a)。Target 组薄膜的 PL 强度明显大于 Control 组，表明经 EDTA 处理之后非辐射复合受到抑制^[24–25]。借助 TRPL 测试来探究载流子寿命

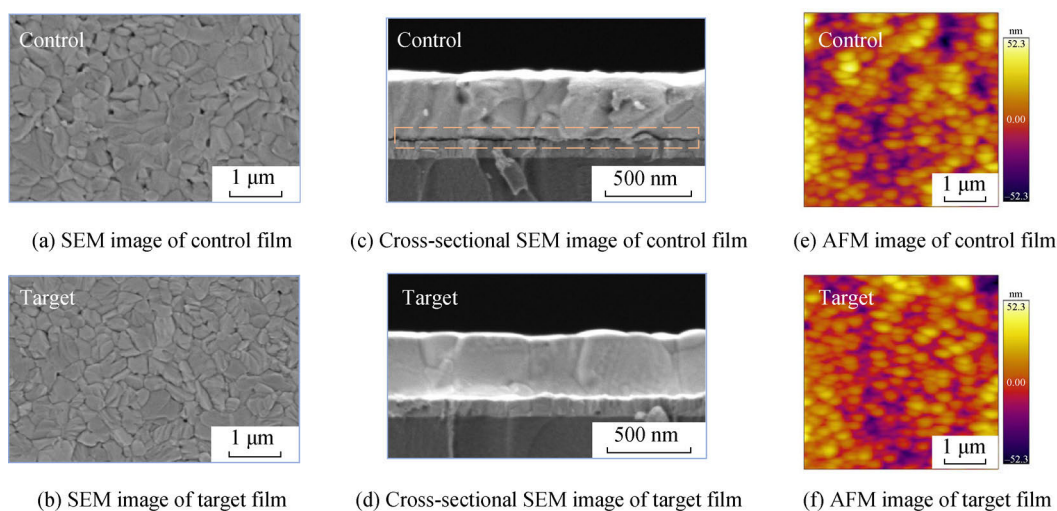
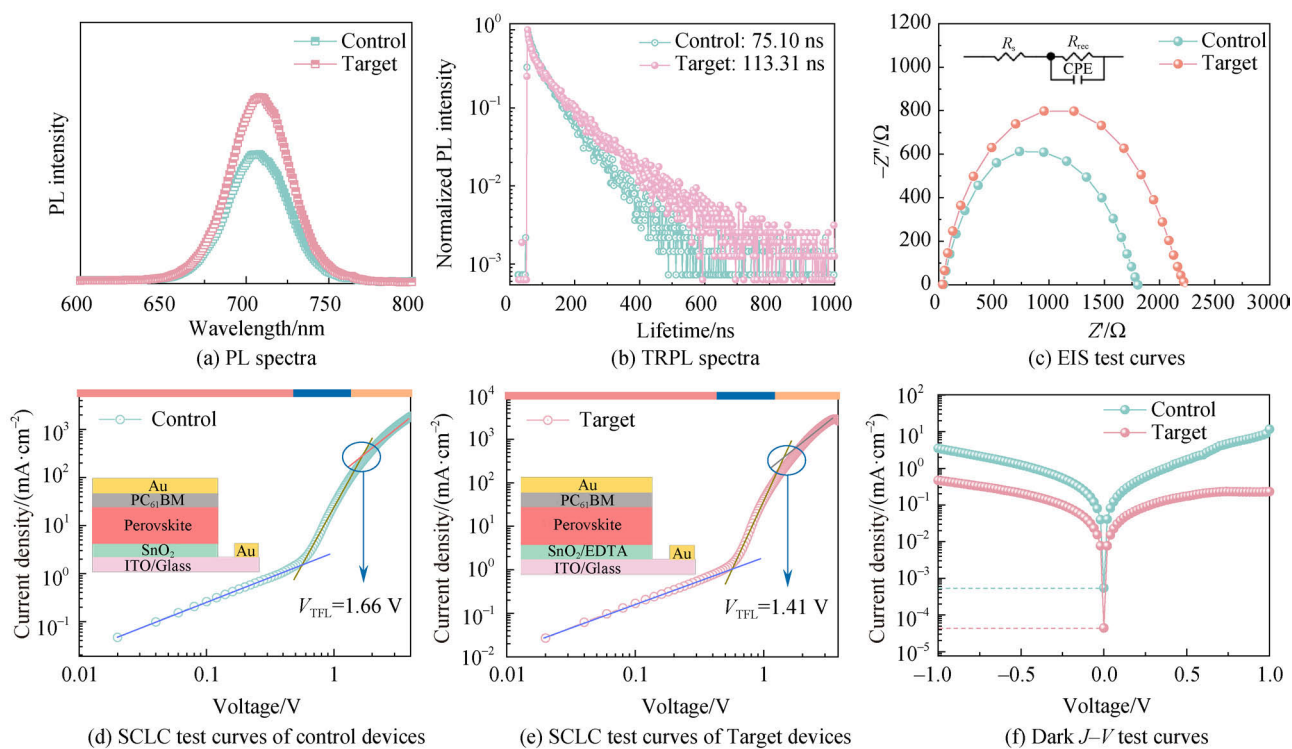


图 2 EDTA 对钙钛矿薄膜表面形貌的影响

Fig. 2 Influence of EDTA on the surface morphology of the perovskite films



PL is steady-state photoluminescence; TRPL is time-resolved photoluminescence; EIS is electrochemical impedance spectroscopy; SCLC is space-charge limited currents.

图 3 IPSCs 薄膜和器件的光电性能表征

Fig. 3 Photovoltaic and photoelectric performance characterization of IPSCs films and devices

(图 3b), 发现 EDTA 处理过后平均载流子寿命由 75.10 ns 提升到 113.31 ns, 这表明非辐射复合程度的下降以及载流子寿命的提升与 EDTA 对埋底界面形貌的改善密不可分。进一步研究 EDTA 对埋底界面载流子的复合动力学影响, 利用电化学工作站进行电化学阻抗谱(EIS)(图 3c)测试, 结果表明 EDTA 处理后的装置拥有更小的等效串联电阻和更大的复合电阻^[26-27], 这与 EDTA 处理

后缺陷钝化和非辐射复合程度降低的结果相吻合。为了量化薄膜的缺陷态密度, 采用空间电荷限制电流(SCLC)法, 器件结构为 ITO/Glass/SnO₂/(EDTA)/CsPbI_{2.25}Br_{0.75}/PC₆₁BM/Au。2 种器件对应的陷阱填充电压(Trap filling voltage, V_{TFL})如图 3d 和图 3e 所示, EDTA 处理前后 V_{TFL} 分别为 1.66 V 和 1.41 V。 V_{TFL} 与缺陷态密度呈线性关系^[28-30], 因此 EDTA 处理之后 V_{TFL} 的下降代表非辐射复合的

受到抑制,缺陷态密度降低。暗态 $J-V$ 测试(图 3f)中 EDTA 处理后器件更低的漏电流值同样佐证该结论。

2.4 EDTA 对薄膜的稳定性影响

利用接触角测试评估薄膜的疏水能力(图 4a 和图 4b), EDTA 处理后薄膜水接触角从 42.40° 上升到 52.99° , 较大的水接触角与更高的疏水性对应。将 Control 组和 Target 组器件放置于 RH 约 20%~30%

的 25°C 空气中, 250 h 后, Control 装置保留其初始 PCE 的 73.39%, Target 装置为 81.41%(图 4c), 湿度稳定性的提升与界面接触的改善和结晶质量的提升密切相关^[31–33]。将 2 种器件置于 25°C 的 N_2 氛围进行存储稳定性测试, 1500 h 后, Control 装置的 PCE 保留率为 65.93%, 而 Target 装置为 83.17%(图 4d)。稳定性的提升是 EDTA 遏制 SnO_2 表面羟基的影响和与 V_{Pb} 的相互作用的结果。

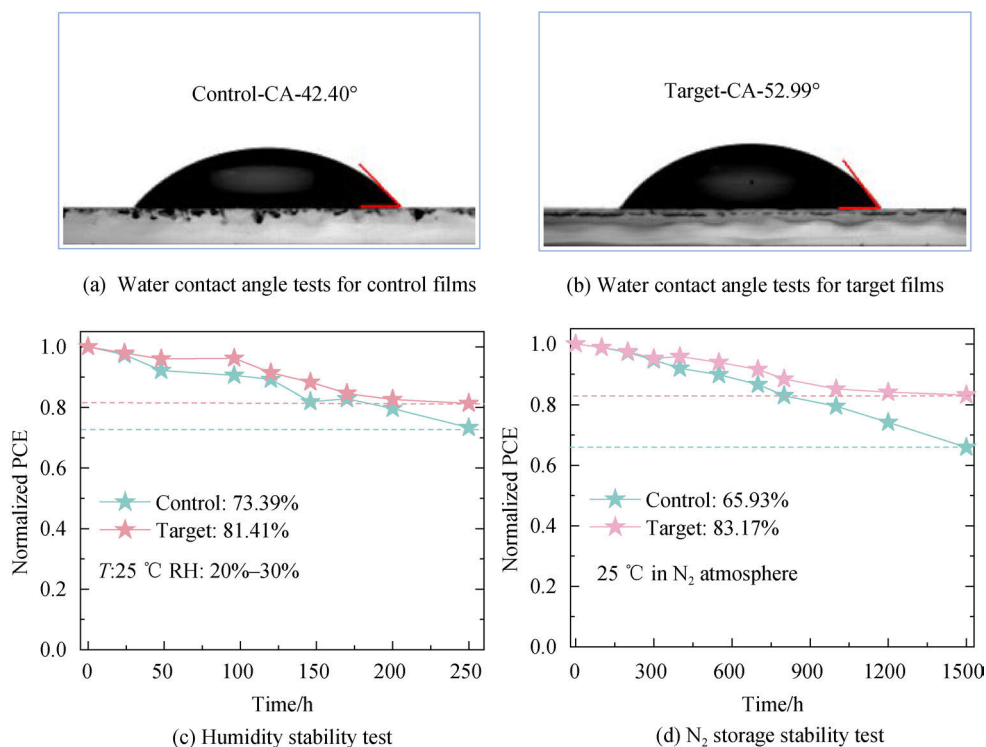


图 4 稳定性测试表征

Fig. 4 Stability test characterization

3 结论

采用 EDTA 对埋底界面进行修饰, 利用 EDTA 的 4 个羧基与 SnO_2 层的羟基进行反应, 改善了 SnO_2 与钙钛矿的界面接触特性, 不仅有利于电子的高效提取, 也可促进后续的钙钛矿薄膜生长。界面处非辐射复合受到抑制, 缺陷态密度降低。最终, 基于空气条件制备的组分为 $\text{CsPbI}_{2.25}\text{Br}_{0.75}$ 的 n-i-p 型器件实现了 18.84% 的 PCE, 为推进 IPSCs 的实用化进程提供了科学新思路。

参考文献:

[1] DU J J, CHEN J L, OUYANG B L, et al. Face-on oriented self-assembled molecules with enhanced $\pi-\pi$ stacking for highly efficient inverted perovskite solar cells on rough FTO substrates[J]. Energy Environ Sci, 2025, 18(7): 3196–3210.

[2] 吴林, 陈建林, 曾雨熙, 等. 四丁基铵六氟磷酸盐对全无机 CsPbI_2Br 钙钛矿太阳能电池的多功能界面改性[J]. 硅酸盐学报, 2024, 52(1): 75–88.
WU Lin, CHEN Jianlin, ZENG Yuxi, et al. J Chin Ceram Soc, 2024, 52(1): 75–88.
[3] XU T F, XIANG W C, KUBICKI D J, et al. Simultaneous lattice engineering and defect control via cadmium incorporation for high-performance inorganic perovskite solar cells[J]. Adv Sci, 2022, 9(36): 2204486.
[4] XU C Z, ZHANG S C, FAN W Q, et al. Pushing the limit of open-circuit voltage deficit via modifying buried interface in CsPbI_3 perovskite solar cells[J]. Adv Mater, 2023, 35(7): e2207172.
[5] LIU C, SUN X H, YANG Y, et al. Retarding solid-state reactions enable efficient and stable all-inorganic perovskite solar cells and modules[J]. Sci Adv, 2023, 9(21): eadg0087.
[6] LIU T R, ZHAO X M, ZHONG X J, et al. Improved absorber phase stability, performance, and lifetime in inorganic perovskite solar cells with alkyltrimethoxysilane strain-release layers at the perovskite/ TiO_2 interface[J]. ACS Energy Lett, 2022, 7(10): 3531–3538.
[7] YUAN J F, ZHANG D, DENG B B, et al. High efficiency inorganic

- perovskite solar cells based on low trap density and high carrier mobility CsPbI₃ films[J]. *Adv Funct Mater*, 2022, 32(47): 2209070.
- [8] WANG S L, JIANG H P, GONG Y H, et al. Surface defect clipping strategy enables high-efficiency inorganic perovskite solar cells with ultralow V_{OC} deficit[J]. *ACS Sustainable Chem Eng*, 2024, 12(42): 15562–15568.
- [9] ZHANG J R, CHE B, ZHAO W G, et al. Polar species for effective dielectric regulation to achieve high-performance CsPbI₃ solar cells[J]. *Adv Mater*, 2022, 34(41): 2202735.
- [10] WANG K L, SU Z H, LOU Y H, et al. Rapid nucleation and slow crystal growth of CsPbI₃ films aided by solvent molecular sieve for perovskite photovoltaics[J]. *Adv Energy Mater*, 2022, 12(31): 2201274.
- [11] NIE T, FANG Z M, REN X D, et al. Recent advances in wide-bandgap organic–inorganic halide perovskite solar cells and tandem application[J]. *Nano-Micro Lett*, 2023, 15: 70.
- [12] WANG K X, YOU T T, YIN R, et al. Precise nucleation regulation and defect passivation for highly efficient and stable carbon-based CsPbI₂Br perovskite solar cells[J]. *ACS Appl Energy Mater*, 2021, 4(4): 3508–3517.
- [13] FANG Z M, NIE T, LIU S F, et al. Overcoming phase segregation in wide-bandgap perovskites: From progress to perspective[J]. *Adv Funct Mater*, 2024, 34(42): 2404402.
- [14] YUAN S Y, ZHAO H, WANG Y T, et al. Research status of all-inorganic perovskite solar cells: A review[J]. *J Solid State Chem*, 2023, 328: 124299.
- [15] ZHANG T, HE Q Q, YU J W, et al. Recent progress in improving strategies of inorganic electron transport layers for perovskite solar cells[J]. *Nano Energy*, 2022, 104: 107918.
- [16] NI Z Y, BAO C X, LIU Y, et al. Resolving spatial and energetic distributions of trap states in metal halide perovskite solar cells[J]. *Science*, 2020, 367(6484): 1352–1358.
- [17] LIU M T, XU J M, YANG H R, et al. Perovskite homojunction solar cells by buried interface engineering[J]. *Angew Chem Int Ed*, 2025, 64(23): e202502994.
- [18] DOHERTY T A S, NAGANE S, KUBICKI D J, et al. Stabilized tilted-octahedra halide perovskites inhibit local formation of performance-limiting phases[J]. *Science*, 2021, 374(6575): 1598–1605.
- [19] LIU Z H, QIU L B, ONO L K, et al. A holistic approach to interface stabilization for efficient perovskite solar modules with over 2, 000-hour operational stability[J]. *Nat Energy*, 2020, 5(8): 596–604.
- [20] ZHUANG X H, MA D Y, LI G Y, et al. Size-matched dicarboxylic acid for buried interfacial engineering in high-performance perovskite solar cells[J]. *Chem Eng J*, 2023, 460: 141705.
- [21] WANG S L, WANG P Y, SHI B, et al. Inorganic perovskite surface reconfiguration for stable inverted solar cells with 20.38% efficiency and its application in tandem devices[J]. *Adv Mater*, 2023, 35(28): 2300581.
- [22] WANG S L, WANG P Y, CHEN B B, et al. Suppressed recombination for monolithic inorganic perovskite/silicon tandem solar cells with an approximate efficiency of 23%[J]. *eScience*, 2022, 2(3): 339–346.
- [23] WANG S, LI M H, ZHANG Y Y, et al. Surface n-type band bending for stable inverted CsPbI₃ perovskite solar cells with over 20% efficiency[J]. *Energy Environ Sci*, 2023, 16(6): 2572–2578.
- [24] LU C Y, GUO X M, ZHANG W X, et al. Efficient inverted CsPbI₃ solar cells with Pb–S contained organosulfide-halide perovskite heterojunction[J]. *Adv Funct Mater*, 2024, 34(39): 2403563.
- [25] XU T F, XIANG W C, RU X N, et al. Enhancing stability and efficiency of inverted inorganic perovskite solar cells with *in-situ* interfacial cross-linked modifier[J]. *Adv Mater*, 2024, 36(23): 2312237.
- [26] WANG S L, QI S S, SUN H R, et al. Nanoscale local contacts enable inverted inorganic perovskite solar cells with 20.8% efficiency[J]. *Angew Chem Int Ed*, 2024, 63(19): e202400018.
- [27] WANG S L, SUN H R, WANG P Y, et al. Small molecule regulatory strategy for inorganic perovskite solar cells with 368 mV of V_{OC} deficit and its application in tandem devices[J]. *Adv Energy Mater*, 2024, 14(26): 2400151.
- [28] YANG S M, WU M Z, LEI X R, et al. Ultra-high 1.27 V V_{OC} of pure CsPbI₃ perovskite solar cells with an efficiency of 21.8%[J]. *ACS Energy Lett*, 2024, 9(10): 4817–4826.
- [29] WANG Z T, CHEN Q Y, XIE H D, et al. Light-driven dynamic defect-passivation for efficient inorganic perovskite solar cells[J]. *Adv Funct Mater*, 2025, 35(9): 2416118.
- [30] WANG S L, SUN H R, WANG P Y, et al. Two-pronged maneuver of inner regulation and surface repair for stable inorganic perovskite solar cells with ultralow open-circuit voltage deficit[J]. *Sol RRL*, 2024, 8(5): 2300739.
- [31] WU J H, WANG X Z, LI C Y, et al. Porphyrin-prompted robust lead-free cesium bismuth bromide for efficiently photodegrading antibiotics pollutants in water[J]. *Appl Catal A Gen*, 2025, 689: 120009.
- [32] LIU C X, QIAN X X, WEI Q Y, et al. Construction of hydrostable cesium lead bromide-titania for visible-light degradation of tetracycline hydrochloride in water[J]. *J Clean Prod*, 2022, 365: 132830.
- [33] WU J H, CHEN J C, GAO J Y, et al. Recent progress and perspectives on nonlead halide perovskites in photocatalytic applications[J]. *Energy Fuels*, 2022, 36(24): 14613–14624.

作者贡献声明:

高京萍: 绘制图表、参与数据分析与论文撰写

王跃霖: 完善论文框架, 修订论文

王三龙: 提出研究方向、设计论文框架、撰写论文、实验测试

Modification of Buried Interfaces Through EDTA for Enhanced Efficiency and Stability in Inorganic Perovskite Solar Cells

GAO Jingping, WANG Yuelin, WANG Sanlong

(Key Laboratory of Modern Power System Simulation and Control and New Green Energy Technology of Ministry of Education, School of Electrical Engineering, Northeast Electric Power University, Jilin 132012, Jilin, China)

Extended Abstract

Introduction The poor interface characteristics between inorganic perovskite and the electron transport layer limit the improvement

of the photovoltaic performance of inorganic perovskite solar cells (IPSCs). In this paper, the buried interface was treated with ethylenediaminetetraacetic acid (EDTA), and four carboxyl groups of EDTA reacted with the hydroxyl groups of SnO_2 to improve the interface characteristics, enhance the crystallization quality of the inorganic perovskite film, reduce the defect state density and suppress non-radiative recombination. Finally, the n–i–p type device with the composition of $\text{CsPbI}_{2.25}\text{Br}_{0.75}$ prepared in air achieved a power conversion efficiency (PCE) of 18.84% and excellent stability.

Method The In-doped Tin Oxide (ITO) glass substrate was ultrasonically cleaned in glass cleaner, deionized water and isopropyl alcohol solution for 20 min, respectively. Before the use, the FTO substrate was treated with ultraviolet ozone for 20 min. Then, 12% SnO_2 nanosolution was diluted for three times with water and spin-coated on the surface of ozone-treated ITO glass at 3000 r/min for 30 s, followed by annealing in air at 150 °C for 30 min. After cooling to room temperature, 0.1 mg/mL EDTA (H_2O) was spin-coated on the surface of SnO_2 and annealed at 100 °C for 10 min. The preparation of perovskite precursor solution and thin film was consistent with the that from previously reported literature^[30], except that the preparation environment of the perovskite film was changed in air with a humidity of < 25%. 40 μL of Spiro-OMeTAD was spin-coated on the surface of perovskite film at 3000 r/min for 30 s as a hole transport layer. Finally, 80 nm of Au was evaporated on the surface of the hole transport layer by evaporation equipment as a metal electrode.

Results and discussion The pinholes on the surface of the perovskite in the Target group are significantly reduced, corresponding to a lower defect state density and a superior photovoltaic performance. The PL intensity of the Target group films is significantly greater than that of the Control group, indicating that non-radiative recombination is suppressed after EDTA treatment. After EDTA treatment, the average carrier lifetime increases from 75.10 ns to 113.31 ns. The optimum PCE is increased from 16.68% of the control device to 18.84%. The current density is verified by the external quantum efficiency test of the solar cell. The integral current density increases from 18.42 mA/cm^2 to 18.78 mA/cm^2 due to the improvement of the interface contact characteristics between SnO_2 and perovskite by EDTA. The steady-state output power curve of the best PCE device of the target device is negligible within 280 s. Two types of devices are placed in an environment at 25 °C and a humidity of 20%–30%. After 250 h, the control device retains 73.39% of its initial PCE, while the Target device maintains 81.41%. The improvement in stability is attributed to the EDTA enhancement of the interface contact between SnO_2 and the inorganic perovskite, suppressing non-radiative recombination at the interface and reducing the defect state density.

Conclusions The EDTA was used to modify the buried interface. The four carboxyl groups of EDTA reacted with the hydroxyl groups of the SnO_2 layer, improving the interface contact characteristics between SnO_2 and perovskite and facilitating the efficient extraction of electrons. Non-radiative recombination at the interface was suppressed and the defect state density was reduced. Ultimately, a n–i–p type device with a composition of $\text{CsPbI}_{2.25}\text{Br}_{0.75}$ prepared in air achieved a PCE of 18.84%. This could provide a scientific approach for advancing the practical application of IPSCs.

Keywords inorganic perovskite; interface characteristics; crystallization quality; defect state density; non-radiative recombination