

· 研究论文 ·

组分光学调控实现高效稳定全无机钙钛矿/有机叠层太阳能电池

袁吉祥¹ 杨海迪¹ 张若鹏^{1*} 董鹏鹏¹ 陈炜杰^{1*} 李耀文^{1,2}⁽¹⁾苏州大学材料与化学化工学部 仿生材料与界面科学中心 苏州市新型半导体光电材料与器件重点实验室
苏州大学先进光电材料重点实验室 苏州 215123)⁽²⁾苏州大学 江苏省先进负碳技术重点实验室 苏州 215123)

摘要 全无机钙钛矿/有机叠层太阳能电池(TSCs)有望突破单结 Shockley-Queisser 极限. 然而, 宽带隙钙钛矿前电池的滤光效应会引起光生电流失配及有机后电池载流子动力学改变, 造成严重的能量损失, 限制了叠层器件性能的提升. 本研究提出一种组分光学调控策略: 通过提高有机体异质结(BHJ)中的受体组分含量, 增强了薄膜在滤光条件下的近红外光子捕获能力, 使前后电池光电流更加平衡, 有效地降低了TSCs的光学损失. 此外, 该策略还可提供额外的电子传输路径, 平衡了空穴与电子迁移率, 进而抑制双分子复合、促进激子解离. 最终实现叠层太阳能电池 23.65% 的光电转化效率、2.17 V 的开路电压和 79.58% 的填充因子. 此外, 该器件展现出良好的工作稳定性, 在 1000 h 持续运行后仍保持初始效率的 88%, 并且紫外光稳定性良好.

关键词 叠层太阳能电池; 全无机钙钛矿; 有机光伏; 体异质结; 载流子动力学; 能量损失

引用: 袁吉祥, 杨海迪, 张若鹏, 董鹏鹏, 陈炜杰, 李耀文. 组分光学调控实现高效稳定全无机钙钛矿/有机叠层太阳能电池. 高分子学报, 2026, 57(5), 1023–1033.

Citation: Yuan, J. X.; Yang, H. D.; Zhang, R. P.; Dong, P. P.; Chen, W. J.; Li, Y. W. Component optical regulation for high-efficiency and stable monolithic all-inorganic perovskite/organic tandem solar cells. *Acta Polymerica Sinica* (in Chinese), 2026, 57(5), 1023–1033.

随着新型光吸收材料的持续开发与器件结构的深度优化, 薄膜光伏技术的光电转化效率得到稳步的提升. 其中, 有机太阳能电池与钙钛矿太阳能电池作为2类极具发展潜力的薄膜光伏技术, 其单结器件的认证效率已突破20%和27%^[1,2]. 该性能的提升得益于有机半导体细致的分子设计、钙钛矿薄膜精细的结晶调控以及器件工程的协同优化^[3–8]. 然而, 尽管实验效率在不断提升, Shockley-Queisser 极限理论仍指出, 在理想带隙

条件下, 单结光伏器件的理论效率上限约为33%, 其主要损失机制为载流子的热损失和吸收损失^[9].

叠层太阳能电池(TSCs)通过将吸收光谱互补的2个或多个子电池堆叠, 能够拓宽器件对太阳光谱的响应范围, 从而突破单结电池的理论效率极限. 不同带隙的子电池分别吸收不同波段的太阳光谱, 载流子的热损失和吸收损失显著降低, 使得叠层器件的最佳转化效率优于单结器件的最佳转化效率^[10,11]. 近年来, 研究的钙钛矿、有机

高分子优秀青年学者专题; 2025-11-19收稿, 2025-12-12录用, 2026-01-27网络出版.

基金项目: 国家自然科学基金(基金号 52522308, 52325307, 52473188, 52273188)、江苏省自然科学基金(基金号 BK20250148)、江苏省科学技术厅项目(项目号 BE2022023)、感谢江苏高校优势学科建设工程(PAPD)、苏州纳米科技协同创新中心以及苏州大学高分子材料设计与生物功能合成重点实验室的资助.

* 通信联系人, E-mail: zhangruopeng@suda.edu.cn; wjchen@suda.edu.cn

本文附有电子支持信息, 与正文一并刊登在本刊网站(www.gfzxb.org).

doi: 10.11777/j.issn1000-3304.2025.25305; CSTR: 32057.14.GFZXB.2025.7538

TSCs类型有许多种,包括钙钛矿/硅、全钙钛矿以及钙钛矿/有机叠层电池等^[12~14].其中,钙钛矿/有机叠层器件因兼具性能与工艺优势,展现出更大的发展提升潜力和商业应用前景^[15,16].钙钛矿材料具备优异的能带结构可调性,其带隙可在1.2~2.3 eV范围内连续调控,是构建高效率叠层器件的理想宽带隙前电池材料.当其与在近红外区域具有高吸收系数的窄带隙有机半导体(通常低于1.4 eV)结合时,该叠层器件能够实现太阳光谱从可见到近红外区域的宽域互补吸收^[17].此外,钙钛矿与有机材料均具备良好的可溶液加工特性,且其成膜溶剂体系通常具备正交性,可在不破坏底层薄膜结构的前提下逐层制备,为构筑高效叠层器件奠定了坚实的工艺基础^[18].

在钙钛矿/有机叠层太阳能电池体系中,全无机钙钛矿(如 $\text{CsPbI}_{3-x}\text{Br}_x$)作为前电池具有独特优势^[19,20].相较于有机-无机杂化钙钛矿,全无机钙钛矿表现出更优异的本征热稳定性与紫外光稳定性,有助于克服杂化钙钛矿与有机材料体系长期面临的关键稳定性难题^[21~24].结合其可调控的宽带隙特性,该材料不仅能高效吸收高能光子,还能作为内置的紫外滤光层,保护后电池部分不受紫外光影响,从而显著提升叠层器件的光电转化效率和长期工作寿命^[25~28].

然而,构筑高性能全无机钙钛矿/有机叠层太阳能电池仍面临诸多挑战.其中关键挑战之一在于互连层(ICL)的设计,其需在能够促进前电池电子与后电池空穴高效复合的同时,尽可能降低电压损失与光学损耗^[29,30].除了互连层外,钙钛矿前电池的“滤光效应”亦不容忽视.在叠层结构中,有机后电池仅接收经钙钛矿前电池过滤后的光,其高能光子已被钙钛矿层充分吸收,这意味着在叠层器件结构中,有机活性层主要依靠窄带隙受体材料完成光吸收^[31].这种激发条件的改变会显著影响有机体异质结内部的电荷产生、分离和传输动力学.在全光谱照明时,给体和受体共同参与激子产生;然而在滤光情况下,激子则主要产生于受体区域^[32,33],这一差异可能引发电荷传输失衡.空穴迁移率(由给体网络主导)可能会显著高于电子迁移率(由受体网络主导),从而导致电荷积累与双分子复合加剧^[34,35],造成后电池在近红外区域吸收不足,光电流降低,引发严重的电学损耗,使得器件的填充因子下降,最

终造成叠层器件的光电转化效率低于理论预期.

本研究提出了一种面向叠层结构的有机体异质结组分光学调控策略.通过提升体异质结中的受体浓度可实现双重效果,一方面可增强薄膜在近红外区域的光吸收能力,提升后电池的光电流响应,从而改善前后电池之间的电流匹配;另一方面,组分调控优化了后电池的载流子动力学,增加的受体能够提供更多的电子传输通道,平衡空穴与电子迁移率,抑制双分子复合,并促进受体至给体的空穴转移过程.基于该策略制备的全无机钙钛矿/有机叠层太阳能电池光电转化效率高达23.65%,还表现出优异的长期运行稳定性与紫外光稳定性,进一步验证了稳定的无机钙钛矿前电池与优化后的有机后电池之间的协同作用.本工作不仅深化了对滤光情况下光物理过程的理解,也为推进钙钛矿/有机叠层太阳能电池性能提升提供了普适性的策略.

1 实验部分

1.1 实验材料

ITO玻璃购自辽宁优选新能源科技有限公司; PbI_2 (碘化铅(II), $\geq 99.99\%$)、 PbBr_2 (溴化铅(II), $\geq 99.99\%$)、 CsI (碘化铯, $\geq 99.9\%$)和聚[双(4-苯基)(2,4,6-三甲基苯基)胺] (PTAA), 购自西安宝莱特光电科技有限公司; 二甲基亚砜(DMSO, 超干)和乙醇购自北京百灵威科技有限公司; 氯苯(CB, 99.8%)购自Sigma-Aldrich; 氯仿(CF, 99.8%)购自Adamas-beta; PM6 、 D18-Cl 、 N3 和 PC_{61}BM 购自北京奥格泰克科技有限公司. SnO_2 胶体购自Alfa Aesar (氧化锡(IV), 15 wt%水胶体分散液). PFN购自Solarmer Materials Inc. 所有材料均为收到时直接使用, 无需进一步纯化.

1.2 器件的制备与表征

器件的制备与表征方法详见电子支持信息 Note.S1.

2 结果与讨论

2.1 钙钛矿滤光效应与光电流失配分析

为构建高性能叠层器件, 选用 $\text{CsPbI}_{1.9}\text{Br}_{1.1}$ (带隙约1.93 eV)作为前子电池光活性层, D18-Cl:N3 体系作为后电池光活性层, 二者吸收光谱上呈互补特征(图1(a)). 该叠层太阳能电池的结构为 $\text{ITO}/\text{ZnO}/\text{SnO}_2/\text{CsPbI}_{1.9}\text{Br}_{1.1}/\text{D18-Cl}/\text{MoO}_3/\text{Au}/\text{ZnO}/$

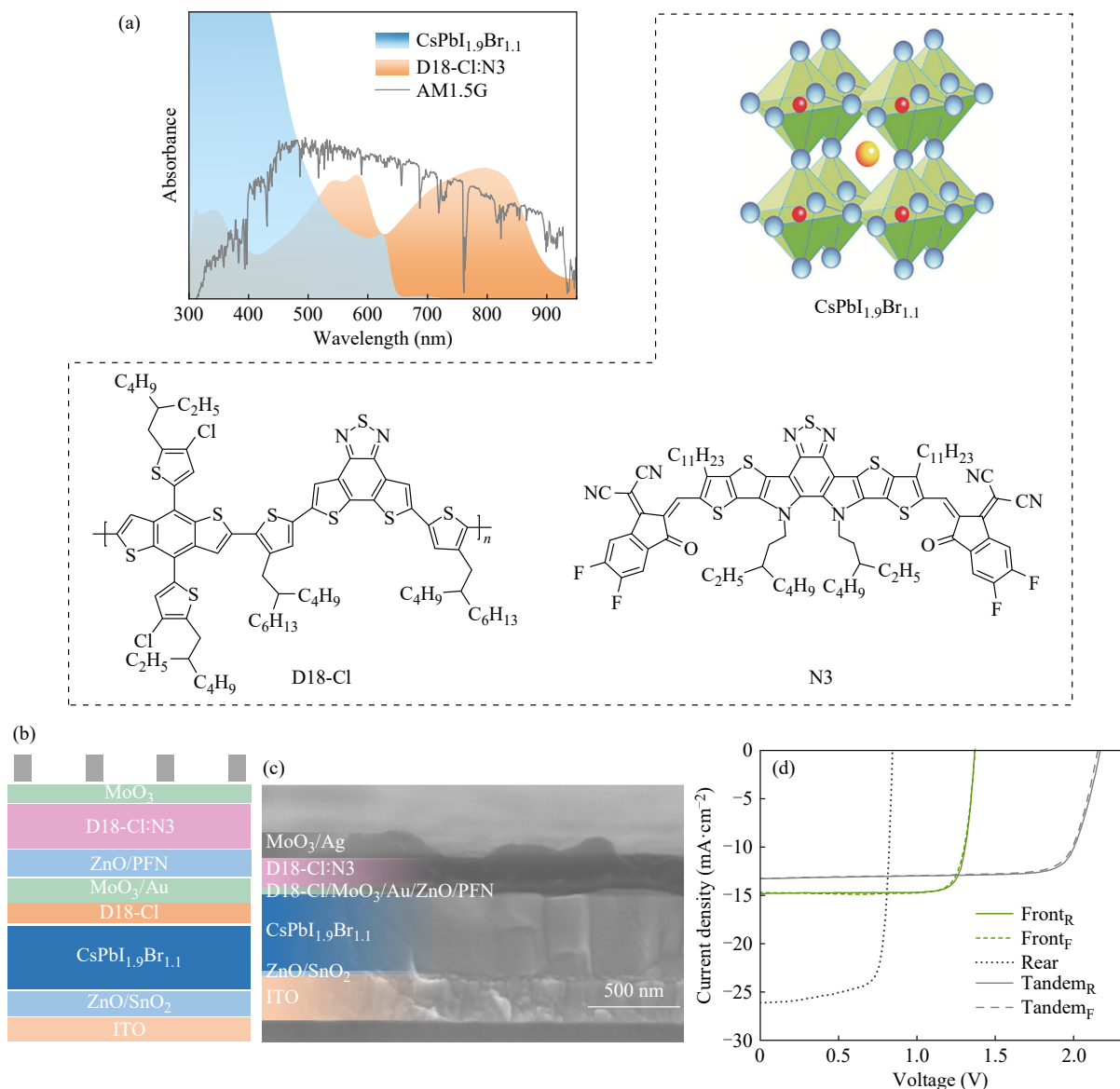


Fig.1 (a) Left: absorption spectra of the $\text{CsPbI}_{1.9}\text{Br}_{1.1}$ and D18-Cl:N3 films, and the AM 1.5G spectrum. Right: crystal structure of the inorganic perovskite $\text{CsPbI}_{1.9}\text{Br}_{1.1}$ and the molecular structures of the donor and acceptor materials in the rear subcell; (b) Device structure and (c) cross-sectional SEM image of the inorganic perovskite/organic TSC; (d) $J-V$ curves of the 1.0:1.4 D18-Cl:N3-based TSC and its subcells.

PFN/D18-Cl:N3/MoO₃/Ag (图 1(b)). 截面扫描电子显微镜图像(图 1(c))显示各功能层连续均匀, 互连层界面清晰, 表明叠层结构得以完整构建.

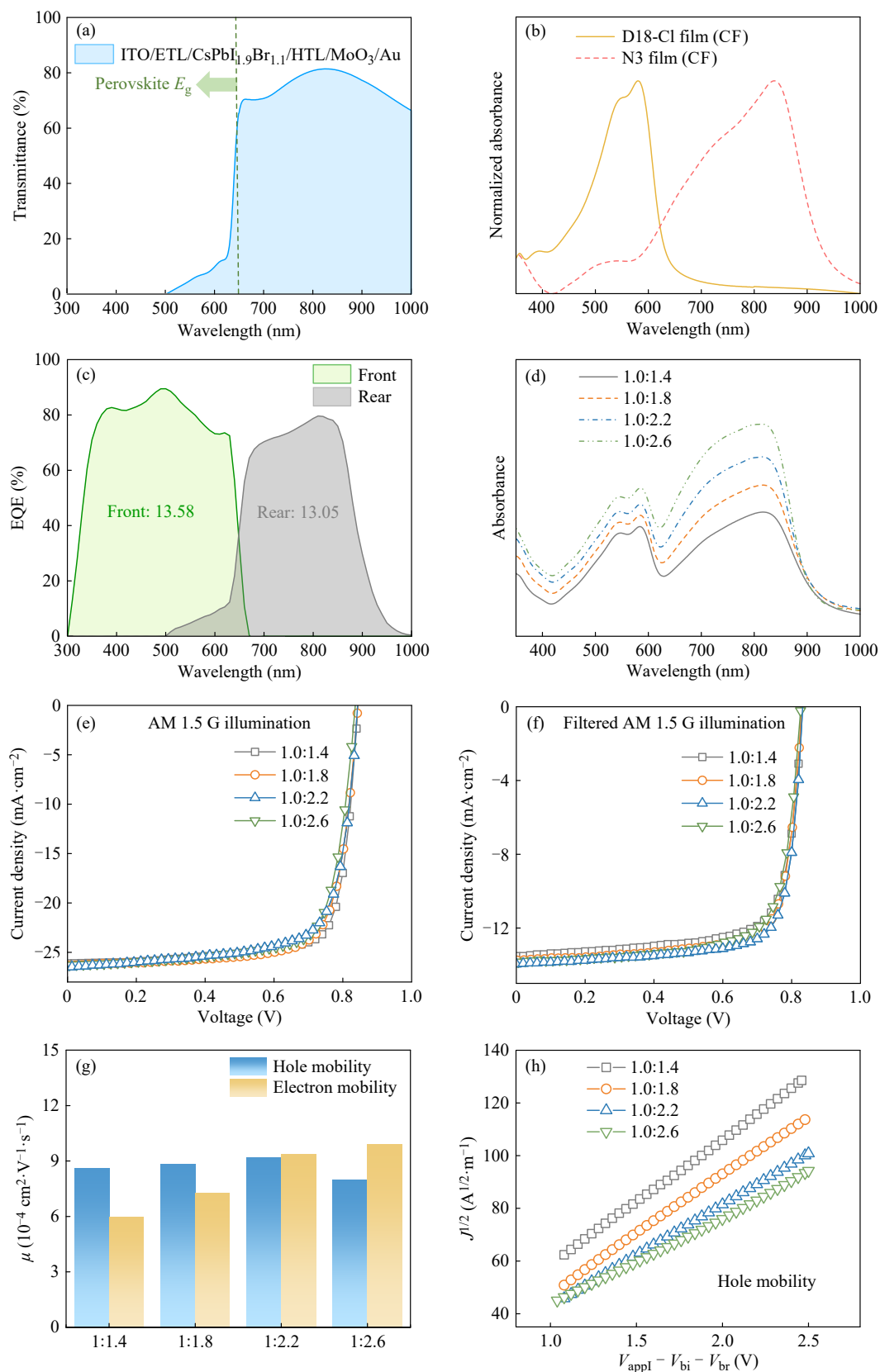
采用标准D18-Cl:N3 (比例为1.0:1.4)制备的初始叠层器件实现了22.80%的光电转化效率(开路电压 V_{oc} =2.16 V, 短路电流 J_{sc} =13.31 mA·cm⁻², 填充因子FF=79.28%), 其效率已优于单一子电池(钙钛矿子电池16.85%, 有机子电池16.64%) (图1(d)和电子支持信息表S1). 然而, 叠层器件的 J_{sc} 显著低于子电池独立测量的电流值, 说明其存在光电流失配问题. 为此, 我们首先测量了前电池/互连

层堆叠结构($\text{CsPbI}_{1.9}\text{Br}_{1.1}$ /ICL)的透射光谱(图2(a)). 结果显示, 在波长低于650 nm的范围内, 由于钙钛矿层的强吸收作用, 透射率显著降低(<20%); 而在长波段(>650 nm)透射率则迅速上升. 这一光谱特性使得在叠层结构中有有机后电池主要接收650~1000 nm波长范围内的入射光子, 使其在一种滤光环境中工作.

对D18-Cl与N3组分的紫外-可见吸收光谱(图2(b))分析表明, 在650~1000 nm光谱窗口内, 主要吸光物质为受体N3, 而给体D18-Cl的吸收效率较低. 这种不平衡吸收特性直接影响了叠层

器件的外量子效率(EQE)表现. 根据 EQE 光谱 (图2(c))积分所得的电流密度显示: 前电池贡献的电流密度为 $13.58 \text{ mA}\cdot\text{cm}^{-2}$, 而后电池仅为

$13.05 \text{ mA}\cdot\text{cm}^{-2}$. 该差异表明, 有机后电池在滤光条件下近红外区域光子捕获能力不足, 导致其产生的光电流($J_{\text{sc, rear}}$)显著低于前电池的光电流($J_{\text{sc, front}}$),



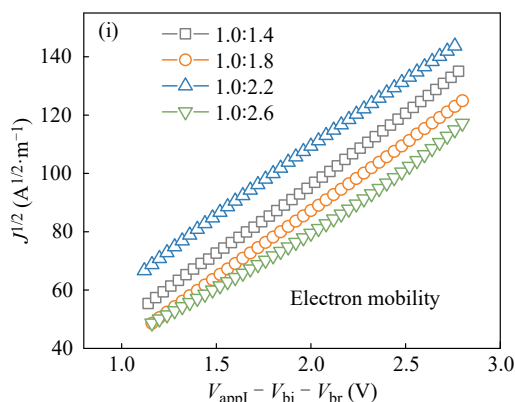


Fig. 2 (a) Transmittance spectrum of the complete front stack with a structure of ITO/ZnO/SnO₂/CsPbI_{1.9}Br_{1.1}/D18-Cl/MoO₃/Au/ZnO/PFN; (b) UV-Vis absorption spectra of D18-Cl and N3; (c) External quantum efficiency (EQE) of the tandem device; (d) UV-Vis absorption spectra of D18-Cl:N3 blend films with different D:A ratios; (e) J - V curves of OSCs with different D:A ratios under (e) full-spectrum light and (f) filtered illumination; (g) Histogram plot of hole and electron mobility in D18-Cl:N3 active layer thin films with different D:A ratios; (h) J - V curves of hole mobility determination in BHJ films; (i) J - V curves of electron mobility determination in BHJ films.

而在叠层太阳能电池中,器件的输出电流由光电流较低的子电池决定,即 $J_{sc} \approx \min(J_{sc,front}, J_{sc,rear})$,因此,由于后电池严重的光学损失,整个叠层器件的输出电流被限制在较低值,从而成为性能提升的主要瓶颈。

2.2 组分调控提升滤光情况下的叠层光伏性能

为解决上述光电流限制问题,采用组分光学调控策略,将D18-Cl:N3体系中给受体的质量比从1.0:1.4提高至1.0:2.6,同时维持溶液中给体浓度不变.不同配比共混薄膜的紫外-可见吸收光谱(图2(d))显示,随着N3比例增加,薄膜在650~1000 nm波段的吸收强度逐渐增强,证实了近红外光子捕获能力得到提升。

为了更深入地剖析在无机钙钛矿滤光作用下有机后电池的真实器件性能,采用了能够过滤645 nm之前波段的滤光片来协助分析研究(电子支持信息图S1),并分别在标准AM 1.5G光照与滤光情况下对不同D:A比例的有机单结电池进行性能表征.全光谱测试结果表明(图2(e)和电子支持信息表S2),随着受体含量增加,器件性能轻微衰退,这可能归因于活性层膜厚增加造成了额外的电荷复合损失.然而在滤光情况下(图2(f)和电子支持信息表S2),当受体含量增加时,器件的光伏参数(特别是 J_{sc} 与FF)显著提升.其中给受体比例为1.0:2.2的器件性能表现最佳: J_{sc} 达到13.92 mA·cm⁻²,FF为76.31%,均优于原始比例器件的13.51 mA·cm⁻²和75.01%.这种变化趋势

差异表明:叠层器件中子电池的最优组分与单结电池存在本质区别,这突显了对叠层结构中的有机子电池进行针对性组分优化的必要性。

2.3 优化载流子传输、抑制双分子复合

为探究滤光情况下器件填充因子及性能参数提升的物理机制,我们对不同配比共混薄膜进行了空间电荷限制电流表征(SCLC),测定薄膜的空穴与电子迁移率变化(图2(g)~2(i)和电子支持信息表S3).结果显示,在1.0:1.4配比体系中,空穴迁移率 μ_h (8.63×10^{-4} cm²·V⁻¹·s⁻¹)显著高于电子迁移率 μ_e (6.01×10^{-4} cm²·V⁻¹·s⁻¹),迁移率比 μ_h/μ_e 达到1.44.由于在滤光情况下,激子主要产生于受体相,这种迁移率的显著差异会导致体系中形成“缺电子-富空穴”的载流子分布,从而引发空间电荷积累并加剧复合损失.当给受体比例提升至1.0:2.2时, μ_e 显著增至 9.38×10^{-4} cm²·V⁻¹·s⁻¹,而 μ_h 仍保持较高水平(9.21×10^{-4} cm²·V⁻¹·s⁻¹),使 μ_h/μ_e 比值接近平衡(0.98).这种平衡的载流子传输特性有效促进了电荷提取并抑制双分子复合,从而提升了有机子电池在滤光情况下的填充因子。

瞬态光电压(TPV)与瞬态光电流(TPC)进一步揭示了在滤光情况下器件的载流子复合与提取特性(电子支持信息图S2).随着给受体比例从1.0:1.4提升至1.0:2.2,TPV衰减寿命从1.218 μs延长至1.812 μs,表明陷阱辅助复合得到明显抑制;相应地,TPC提取时间由0.281 μs缩短至0.168 μs,表明在经过组分优化后,有机薄膜的电荷收集能

力得到提升.

飞秒瞬态吸收光谱(fs-TA)进一步阐明了激子解离与空穴转移机制. 在 800 nm 波长选择性激发 N3 受体时, 观测到 D18-Cl (约 590 nm, 电子支持信息图 S3a) 与 N3 (约 820 nm, 电子支持信息图 S3b) 的基态漂白信号. 其中, D18-Cl 在 590 nm 处基态漂白信号的出现与增长(图 3(a)~3(c)和电子支持信息图 S4)证实了空穴从 N3 向 D18-Cl 的高效转移过程. 通过分析 590 nm 处的动力学曲线(图 3(c))

发现, 随着受体浓度增加, D18-Cl 基态漂白信号的上升时间逐渐缩短, 在 1.0:2.2 配比体系中尤为显著. 这种空穴转移的加速现象表明, 组分调控策略可优化有机体异质结的给受体界面、增加电子传输途径, 从而促进激子解离与空穴转移.

2.4 光强依赖特性与电荷解离过程

进一步分析 V_{oc} 和 J_{sc} 随光照强度(P_{light})变化的依赖关系, 探究全光谱与滤光条件下的载流子复合机制(图 3(d)~3(f)和电子支持信息图 S5). V_{oc} 对光强

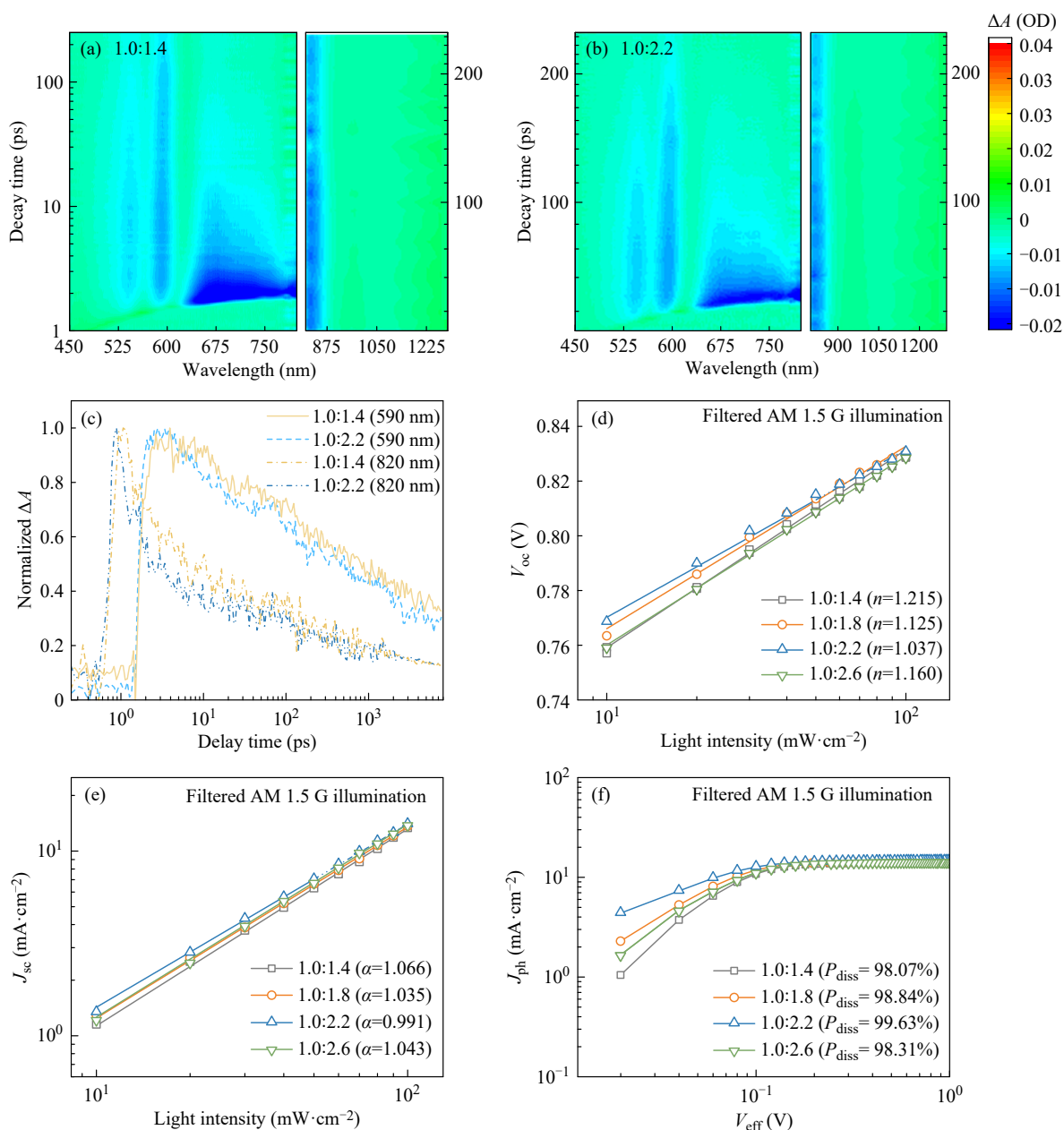


Fig. 3 Under 800 nm excitation, 2D TAS maps of D18-Cl:N3 blend films with D:A ratios of (a) 1.0:1.4 and (b) 1.0:2.2; (c) Kinetic curves of the D18-Cl:N3 blend film probed at 590 and 820 nm; (d) V_{oc} and (e) J_{sc} as a function of the natural logarithm of light intensity: a linear fitting under a filtered illumination; (f) Charge dissociation probability (P_{diss}) of OSCs under a filtered illumination.

P_{light} 的依赖关系可以表示为 $V_{\text{oc}} \propto (nkT/q) \ln(P_{\text{light}})^{[36]}$, 其中 k 是玻耳兹曼常数, T 是绝对温度, q 是单位电荷. 当理想因子 n 值越接近 1 时, 表明 OSCs 中的陷阱辅助复合越弱. 在滤光条件下(图 3(d)), 器件的 n 值从 1.0:1.4 配比的 1.215 显著降低至 1.0:2.2 配比的 1.037, 说明提高受体比例有效抑制了陷阱辅助复合. 而 J_{sc} 对 P_{light} 的依赖关系为 $J_{\text{sc}} \propto P_{\text{light}}^{\alpha}$, 其中 α 是双分子复合程度的指数因子. 当 α 值越接近 1 时, 表示双分子复合得到抑制. 在滤光条件下, α 值从 1.0:1.4 器件的 1.066 优化至 1.0:2.2 器件的 0.991 (图 3e), 更趋近于理想值 1, 表明适当受体的加入能够有效抑制 OSCs 中的双分子复合, 降低电学损失.

通过分析光电流密度(J_{ph})与有效电压(V_{eff})关系曲线(图 3(f)), 评估了器件的电荷解离概率(P_{diss}). 该概率由公式 $P_{\text{diss}} = J_{\text{ph}}/J_{\text{sat}}$ 计算, 其中 J_{sat} 为饱和电流密度. 在滤光情况下, 器件的电荷解离概率从 1.0:1.4 配比的 98.07% 显著提升至 1.0:2.2 配比的 99.63%, 表明在滤光情况下, 增添适量受体能够促进激子解离过程, 有利于器件 FF 的提升, 这也与上述 TAS 分析的结果一致.

2.5 形貌表征与结构分析

采用原子力显微镜(AFM)与透射电子显微镜(TEM)对体异质结薄膜的表面形貌与微观结构进行表征(电子支持信息图 S6). 所有共混薄膜表面都较为平滑, 其均方根粗糙度(RMS)均低于 1.1 nm. 当给受体比例为 1.0:2.2 时, 薄膜的粗糙度最低(0.678 nm), 表明其 D18-Cl 和 N3 具有良好的相容性, 均匀分布的表面形貌有利于活性层中电荷的收集. 随着受体 N3 含量的增加, 薄膜的 TEM 图像中未观察到明显的相分离形貌变化和过度的聚集行为, 说明受体含量的提升并未破坏原有的纳米互穿网络结构.

通过掠入射广角 X 射线散射(GIWAXS)进一步分析了薄膜的分子堆积与取向特征(电子支持信息图 S7). 所有薄膜在面内方向均呈现清晰的(100)层状堆积峰, 而在面外方向则显示出强烈的(010) π - π 堆积峰, 表明分子主要以“面向上”取向排列, 这种取向有利于电荷在垂直方向的传输. 根据(010)衍射峰计算的晶格相干长度(CCLs)显示(电子支持信息表 S4 和 S5)^[37], 当 BHJ 给受体比例为 1.0:2.2 时, 活性层薄膜表现出更强的面外响应信号和更大的 CCL 值(4.303 nm), 这表明

组分光学调控后, 活性层中给受体分子实现了更紧密、有序的纵向堆叠, 优化了电荷的传输路径, 提升了电子、空穴迁移率, 与前述 SCLC 测试结果相印证.

2.6 叠层太阳能电池的性能表征

基于上述对单结器件的研究结果, 制备了采用不同给受体比例有机后电池的叠层太阳能电池. 随着给受体比例从 1.0:1.4 提高至 1.0:2.2, 叠层器件光伏性能呈现规律性提升(图 4(a)和电子支持信息表 S6). 当后电池给受体比例为 1.0:2.2 时, 器件实现了 23.65% 的最高转化效率($V_{\text{oc}}=2.17$ V, $J_{\text{sc}}=13.70$ mA·cm⁻², FF=79.58%). V_{oc} 的提升得益于电流匹配所降低的界面损失以及体相中缺陷密度的降低, J_{sc} 的提升直接归因于增强的近红外光吸收, 而 FF 的改善则源于器件内部载流子输运与复合行为的改善. EQE 测试结果(图 4(b))所示, 后电池的积分电流提升至 13.54 mA·cm⁻², 与前电池的 13.58 mA·cm⁻² 高度匹配, 表明组分光学调控策略能够有效地增强后电池的光电流响应, 使前后电池光电流更加平衡, 促进 TSC 器件性能的提升. 在最大功率点连续运行 600 s 的稳态功率输出测试中, 器件效率稳定在 23.20% (图 4(c)), 这与 J - V 曲线得到的结果非常接近. 对 15 个器件的统计分析(电子支持信息图 S8)表明, 该制备工艺具有优异的重复性, 器件效率分布集中, 展现出良好的工艺稳定性.

为验证组分调控策略的普适性, 我们将该策略应用于 PM6:Y6 体系. 在滤光情况下, 该体系同样观察到空穴/电子迁移率趋于平衡与性能参数提升(电子支持信息图 S9). 相应叠层电池效率从 22.23% 提升至 23.18%, 进一步证实了该组分光学调控策略对于不同有机活性层体系具有良好的通用性.

2.7 器件稳定性研究

在氮气环境下, 对未封装叠层器件进行连续最大功率点(MPP)跟踪测试, 以评估其工作稳定性(图 4(d)). 结果显示, 给受体比例为 1.0:2.2 时, 叠层器件在持续运行 1000 h 后, 仍能保持初始效率的 88%, 显著优于采用 1.0:1.4 比例后电池的器件(保持初始效率的 82%). 这种稳定性的提升表明, 适当增加受体含量, 有利于平衡载流子迁移率、消除空间电荷积累, 抑制双分子复合, 同时可减少薄膜缺陷密度, 提升载流子寿命, 从而

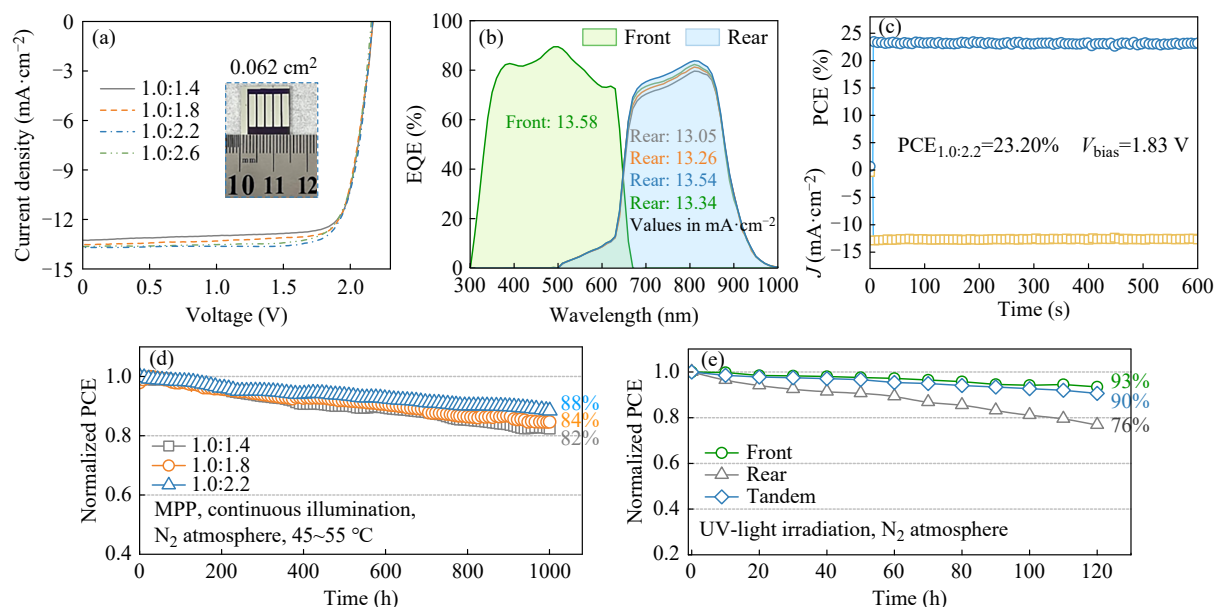


Fig.4 (a) J - V curves of TSCs with different D:A ratios; (b) External quantum efficiency (EQE) of TSCs with different D:A ratios; (c) Stabilized power output at the maximum power point of TSCs; Operational stability of the unencapsulated TSCs with different D:A ratios under (d) continuous illumination at the MPP condition and (e) UV-light irradiation in an N_2 atmosphere.

延缓器件在长期运行中的性能衰减,提高叠层电池的工作稳定性.此外,我们还在强紫外辐照($100\text{ mW}\cdot\text{cm}^{-2}$)条件下进行了器件的加速老化测试(图4(e)),结果表明,单结有机太阳能电池性能迅速衰减,在紫外光照射120 h后仅保持初始效率的76%;而叠层器件在相同条件下仍能维持初始性能的90%.这种良好的紫外稳定性源于稳定的全无机钙钛矿前电池对紫外光的有效过滤作用,充分展现了该叠层结构在稳定性方面的优势.

3 结论

提出了一种组分光学调控策略,有效改善了由于无机钙钛矿滤光作用导致的BHJ载流子输运

行为变化和子电池中光电流响应不平衡等问题.通过增加BHJ中受体的含量,增强了薄膜的近红外光子捕获能力,提升了有机薄膜在滤光条件下的光响应电流值,使前后电池电流更加匹配.此外,该策略可以提供更多的电子传输途径,使电子和空穴迁移更加平衡,有效抑制了BHJ内部电荷的复合、促进了激子解离与空穴转移.这些协同作用使叠层电池的光电转化效率提升至23.65%,同时赋予器件优异的工作稳定性与紫外光稳定性.本工作阐明了在叠层结构中,对有机光活性层的优化必须基于其实际工作环境,所提出的机理认知与调控策略具有普适性,为实现多结光伏器件效率与稳定性的同步提升提供了新的设计思路.

REFERENCES

- Li, C.; Song, J. L.; Lai, H. J.; Zhang, H. T.; Zhou, R. K.; Xu, J. Q.; Huang, H. D.; Liu, L. M.; Gao, J. X.; Li, Y. X.; Jee, M. H.; Zheng, Z. L.; Liu, S.; Yan, J.; Chen, X. K.; Tang, Z.; Zhang, C.; Woo, H. Y.; He, F.; Gao, F.; Yan, H.; Sun, Y. M. Non-fullerene acceptors with high crystallinity and photoluminescence quantum yield enable >20% efficiency organic solar cells. *Nat. Mater.*, **2025**, 24(3), 433–443.
- Li, Y. H.; Zheng, Z. W.; Zheng, X.; Liu, X. Y.; Yang, Y. G.; Zhu, Y. C.; Wang, Z. W.; Ren, X. Y.; Fu, M. M.; Guo, R.; Guo, J.; Xiao, Z. W.; Rong, Y. G.; Li, X. Mutual stabilization of hybrid and inorganic perovskites for photovoltaics. *eScience*, **2025**, 100449.
- Ding, Y. F.; Ali Memon, W.; Xiong, S. L.; Gong, S. K.; Li, M. P.; Deng, Z. H.; Liu, H.; Liu, Y. S.; Chen, X. H.; Zheng, N.; He, F. Molecular design of dimeric acceptor enables binary organic solar cells with 19.78% efficiency and enhanced stability. *Adv. Mater.*, **2025**, 37(14), 2501671.

- 4 Ma, R. J.; Luo, Z. H.; Zhang, Y. D.; Zhan, L. L.; Jia, T.; Cheng, P.; Yan, C. Q.; Fan, Q. P.; Liu, S. J.; Ye, L.; Zhang, G. Y.; Xu, X. P.; Gao, W.; Wu, Y.; Wu, J. Y.; Li, Y. X.; Liu, Y. H.; Liu, F.; Song, J. L.; Chen, H. Y.; Chen, W. J.; Zhang, X.; Liu, Y. H.; Yuan, J.; Liu, Q.; Kan, Z. P.; Yin, H.; Li, X. J.; Ma, Y. L.; Deng, D.; Zhu, L.; Huo, Y.; Fan, B. B.; Fu, H. T.; Liao, X. F.; Hu, H. L.; Li, C.; Yu, R. N.; Hu, H. W.; Yao, Z. Y.; Cai, Y. H.; Qian, D. P.; Cui, Y.; Yao, H. F.; Xu, B. W.; Kan, B.; Gao, K.; Duan, C. H.; Hu, X. T.; Sun, H. L. Organic solar cells: beyond 20%. *Sci. China Mater.*, **2025**, 68(6), 1689–1701.
- 5 Xu, T. T.; Xu, J. C.; Yuan, L. H.; Xu, G. Y.; Zhang, C.; Zhang, R. P.; Huang, S. H.; Wu, X. X.; Zeng, G. X.; Li, Y. W. A “guest-solvent” additive strategy for ambient-printed films with enhanced efficiency in FAPbI₃ perovskite solar cells and modules. *Chin. J. Chem.*, **2025**, 43(17), 2219–2227.
- 6 Zheng, J. L.; Chen, W. J.; Wang, Z. Y.; Kang, S. Q.; Dong, P. P.; Yin, Y.; Chen, H. Y.; Cao, J. L.; Yuan, J. X.; Xu, G. Y.; Xu, J. C.; Li, Y. W. Selective crystallization delay in wide-bandgap perovskites enables initial homogeneous phase for square centimeter perovskite/organic tandem solar cells. *Adv. Mater.*, **2025**, 37(42), e10437.
- 7 Chen, Y. J.; Zheng, Y. Q.; Jiang, Y. Y.; Fan, H. J.; Zhu, X. Z. Carbon-bridged 1,2-bis(2-thienyl)ethylene: an extremely electron rich dithiophene building block enabling electron acceptors with absorption above 1000 nm for highly sensitive NIR photodetectors. *J. Am. Chem. Soc.*, **2021**, 143(11), 4281–4289.
- 8 Liu, W. Y.; Sun, S. M.; Zhou, L.; Cui, Y.; Zhang, W. K.; Hou, J. H.; Liu, F.; Xu, S. J.; Zhu, X. Z. Design of near-infrared nonfullerene acceptor with ultralow nonradiative voltage loss for high-performance semitransparent ternary organic solar cells. *Angew. Chem. Int. Ed.*, **2022**, 61(19), e202116111.
- 9 Shockley, W.; Queisser, H. J. Detailed balance limit of efficiency of *p-n* Junction solar cells. *J. Appl. Phys.*, **1961**, 32(3), 510–519.
- 10 Pei, F. T.; Lin, S. P.; Tang, J. H.; Huang, X. Y.; Han, Y.; Sun, Q.; Lin, S. J.; Wang, H.; Zhang, Z. Y.; Zhuang, X. M.; Li, K. L.; Zhu, C.; Chen, Y. H.; Song, T. L.; Cheng, T.; Cui, Y. Y.; Zhang, Y.; Hou, H. Q.; Zhou, W. T.; Lin, Y. Z.; Li, B. Y.; Hong, S. X.; Zhou, H. P.; Wang, X. Y.; Zhou, Y. Y.; Zhong, D. L.; Chen, Q.; Jiang, Y. Perovskite/CIGS tandem solar cells with over 1000 h operational stability through interconnection stress relief. *J. Am. Chem. Soc.*, **2025**, 147(40), 36815–36824.
- 11 Jia, X. F.; Zhang, K. C.; Gao, X. F.; Liao, X. F.; Yang, Y. J.; Li, W. S.; Lv, X. J.; Zhao, X. Y.; Liu, J. L.; Ji, Y. T.; Yan, Z. L.; Du, Q. G.; Huang, F. Z.; Ren, Z. W.; Zhai, Y. X.; Huang, W. C.; Bai, Y.; Yao, C. L.; Lin, Q. Q.; Cheng, Y. B.; Tong, J. H. Defect passivation and crystallization modulation in methylammonium-free wide-bandgap perovskites for all-perovskite tandem solar cells. *Sci. Adv.*, **2025**, 11(38), eadv4501.
- 12 Guo, C.; Du, H. Q.; Wang, Y. C.; Gao, X.; Lan, Y. Q.; Xiao, Y. S.; Jiang, W.; Zhou, Y. C.; Yuan, Q. B.; Qiang, Z. Y.; Zheng, J. H.; Yang, L. H.; Wang, C. X.; Yang, N.; Lin, R.; Liang, G. J.; Rothmann, M. U.; Ouyang, X. H.; Cheng, Y. B.; Li, W. Bifacially reinforced self-assembled monolayer interfaces for minimized recombination loss and enhanced stability in perovskite/silicon tandem solar cells. *Adv. Mater.*, **2025**, 37(29), 2504520.
- 13 Hu, Z. Q.; Zhang, C.; Wang, J. P.; Dang, W. X.; Zhang, X. Y.; Ren, L. C.; Li, P.; Guo, Q. X.; Chao, L. F.; Xia, Y. D.; Aigouy, L.; Chen, Z. Y.; Hu, Z. L.; Chen, Y. H. Sandwich polymer structure-based PTAA for 1.78 eV wide-bandgap perovskite solar cells in indoor and all-perovskite tandem photovoltaics. *Sci. China Chem.*, **2025**, 68(11), 5682–5692.
- 14 An, Y. D.; Zhang, N.; Liu, Q.; Jiang, W. L.; Du, G. X.; Chen, D. S.; Liu, M.; Huang, X. F.; Lei, T. F.; Qiu, Q. R.; Lin, F. R.; Zeng, X. C.; Jen, A. K.; Yip, H. L. Balancing carrier transport in interconnection layer for efficient perovskite/organic tandem solar cells. *Nat. Commun.*, **2025**, 16(1), 2759.
- 15 Xie, G. S.; Li, H.; Fang, J.; Wang, X.; Peng, H. C.; Lin, D. X.; Huang, N. S.; Gan, L.; Li, W. J.; Jiang, R. X.; Bu, T. L.; Huang, F. Z.; He, S. S.; Qiu, L. B. Crystallization thermodynamics regulation of 1.85 eV wide-bandgap perovskite for efficient and stable perovskite-organic tandem photovoltaics. *Angew. Chem.*, **2025**, 137(17), e202501764.
- 16 Song, Z. L.; Wang, J. F.; Bao, Y. Q.; Zeng, J.; Wang, D.; He, J.; Zhu, P. D.; Jiang, B.; Liu, Z. X.; He, S. R.; Hou, Y. N.; Hu, Z. Y.; Xie, C.; Chen, Y. S.; Liu, Y. S.; Wang, X. Z.; Xu, B. M. Optimization of crystallization dynamics in wide-bandgap bromine-iodine perovskite films for high-performance perovskite-organic tandem solar cells. *Energy Environ. Sci.*, **2025**, 18(10), 4883–4892.
- 17 Cui, X. Y.; Xie, G. S.; Liu, Y. Q.; Xie, X. Q.; Zhang, H. R.; Li, H. X.; Cheng, P.; Lu, G. H.; Qiu, L. B.; Bo, Z. S. Boosting the efficiency of perovskite/organic tandem solar cells *via* enhanced near-infrared absorption and minimized energy losses. *Adv. Mater.*, **2024**, 36(45), 2408646.
- 18 Chen, X.; Jia, Z. Y.; Chen, Z.; Zhou, C. Y.; Huang, S. Y.; Xia, X. X.; Liang, S.; Wang, P. J.; Jiang, T. M.; Liu, T. Y.; Xu, X. H.; Yan, B. Y.; Yao, J. Z.; Lu, X. H.; Shen, W. D.; Zhu, H. M.; Yang, Y. Efficient perovskite/organic tandem photovoltaic devices and large-area modules featuring thick-film organic solar cells. *Adv. Mater.*, **2025**, 37(24), 2500190.

- 19 Yao, Q.; Xie, Y. M.; Zhou, Y. Z.; Xue, Q. F.; Xu, X.; Gao, Y. J.; Niu, T. Q.; Chu, L. H.; Zhou, Z. S.; Lin, F. R.; Jen, A. K. Y.; Shi, T. T.; Yip, H. L.; Cao, Y. Dual sub-cells modification enables high-efficiency n-i-p type monolithic perovskite/organic tandem solar cells. *Adv. Funct. Mater.*, **2023**, 33(8), 2212599.
- 20 Ding, Y. J.; Guo, Q.; Geng, Y. F.; Dai, Z.; Wang, Z. B.; Chen, Z. W.; Guo, Q.; Zheng, Z.; Li, Y. F.; Zhou, E. J. A low-cost hole transport layer enables CsPbI₂Br single-junction and tandem perovskite solar cells with record efficiencies of 17.8% and 21.4%. *Nano Today*, **2022**, 46, 101586.
- 21 Mali, S. S.; Patil, J. V.; Steele, J. A.; Nazeeruddin, M. K.; Kim, J. H.; Hong, C. K. All-inorganic halide perovskites for air-processed “n-i-p” monolithic perovskite/organic hybrid tandem solar cells exceeding 23% efficiency. *Energy Environ. Sci.*, **2024**, 17(3), 1046–1060.
- 22 Li, Y. X.; Yan, Y. C.; Fu, Y. A.; Jiang, W. L.; Liu, M.; Chen, M. Q.; Huang, X. F.; Lu, G. H.; Lu, X. H.; Yin, J.; Wu, S. F.; Jen, A. K. Y. Highly durable inverted inorganic perovskite/organic tandem solar cells enabled by multifunctional additives. *Angew. Chem. Int. Ed.*, **2024**, 63(52), e202412515.
- 23 Noguera-Gómez, J.; Sagra-Rodríguez, V.; Vallés-Pelarda, M.; Minguez-Avellan, M.; Sánchez, S.; Vidal, R.; Alberola-Borràs, J. A.; Abargues, R.; Boix, P. P. Straightforward and green synthesis of all-inorganic CsPbI₃ perovskite solar cells *via* nickel acetate incorporation. *EES Sol.*, **2025**, 1(5), 868–880.
- 24 Liu, H. J.; Han, H. F.; Xu, J.; Pan, X.; Zhao, K.; Liu, S. Z.; Yao, J. X. A 0D additive for flexible all-inorganic perovskite solar cells to go beyond 60 000 flexible cycles. *Adv. Mater.*, **2023**, 35(28), 2300302.
- 25 Han, Y.; Fu, J. H.; Ren, Z. W.; Yu, J. S.; Liang, Q.; Xu, Z. H.; Xie, X. Y.; Li, D. Y.; Ma, R. J.; Cao, M. H.; Sun, Y. G.; Yang, C.; He, J. Q.; Chang, X. M.; Liu, K.; Fong, P. W. K.; Huang, J. M.; Liu, H.; Liu, Z. K.; Xu, D. F.; Cheng, L.; Zhang, J. Y.; Yang, G.; Lu, X. H.; Zhu, Y.; Tai, Q. D.; Lin, Q. Q.; Hu, H. L.; Yang, Y.; Li, G. Inorganic perovskite/organic tandem solar cells with 25.1% certified efficiency *via* bottom contact modulation. *Nat. Energy*, **2025**, 10(4), 513–525.
- 26 Wang, S. L.; Sun, H. R.; Wang, P. Y.; Zou, Q. J.; Qi, S. S.; Shi, B.; Du, X. N.; Zhao, Y.; Zhang, X. D. Enhanced interface properties for efficient monolithic inorganic perovskite/silicon tandem solar cell. *Adv. Funct. Mater.*, **2025**, 35(46), 2420249.
- 27 Liu, C.; Yang, Y.; Fletcher, J. D.; Liu, A.; Gilley, I. W.; Musgrave III, C. B.; Wang, Z. W.; Zhu, H. H.; Chen, H.; Reynolds, R. P.; Ding, B.; Ding, Y.; Zhang, X. F.; Skackauskaite, R.; Wan, H. Y.; Zeng, L. W.; Bati, A. S. R.; Shibayama, N.; Getautis, V.; Chen, B.; Rakstys, K.; Dyson, P. J.; Kanatzidis, M. G.; Sargent, E. H.; Nazeeruddin, M. K. Cation interdiffusion control for 2D/3D heterostructure formation and stabilization in inorganic perovskite solar modules. *Nat. Energy*, **2025**, 10(8), 981–990.
- 28 Wang, K.; Wang, P. M.; Li, T. X.; Yue, S. H.; Tong, Y.; Wang, H. Q. Oxygen-assisted chemical reaction enables buried interface optimization for efficient CsPbI₃ perovskite solar cells. *Adv. Funct. Mater.*, **2025**, doi: 10.1002/adfm.202512188.
- 29 He, Z. W.; Yu, R. N.; Dong, Y. M.; Wang, R. Y.; Zhang, Y. L.; Tan, Z. A. Minimized optical/electrical energy loss for 25.1% Monolithic perovskite/organic tandem solar cells. *Nat. Commun.*, **2025**, 16(1), 1773.
- 30 Wu, X.; Zhang, D.; Liu, B. Z.; Wang, Y.; Wang, X.; Liu, Q.; Gao, D. P.; Wang, N.; Li, B.; Wang, L. N.; Yu, Z. X.; Li, X. T.; Xiao, S.; Li, N.; Stolterfoht, M.; Lin, Y. H.; Yang, S. F.; Zeng, X. C.; Zhu, Z. L. Optimization of charge extraction and interconnecting layers for highly efficient perovskite/organic tandem solar cells with high fill factor. *Adv. Mater.*, **2024**, 36(49), 2410692.
- 31 Qin, S. C.; Lu, C. X.; Jia, Z. R.; Wang, Y. Y.; Li, S. G.; Lai, W. B.; Shi, P. J.; Wang, R.; Zhu, C.; Du, J. Q.; Zhang, J. Y.; Meng, L.; Li, Y. F. Constructing monolithic perovskite/organic tandem solar cell with efficiency of 22.0% *via* reduced open-circuit voltage loss and broadened absorption spectra. *Adv. Mater.*, **2022**, 34(11), 2108829.
- 32 Tang, W.; Peng, W. H.; Zhu, M. B.; Jiang, H. X.; Wang, W. C.; Xia, H.; Yang, R. Q.; Inganäs, O.; Tan, H.; Bian, Q. Z.; Wang, E. G.; Zhu, W. G. 17.25% High efficiency ternary solar cells with increased open-circuit voltage using a high HOMO level small molecule guest donor in a PM6: Y6 blend. *J. Mater. Chem. A*, **2021**, 9(36), 20493–20501.
- 33 Kang, H.; Jing, Y. N.; Zhang, Y. Y.; Li, Y. X.; Zhang, H.; Zhou, H. Q.; Zhang, Y. 1,8,9-trihydroxyanthracene as a green solid additive for operational stability in organic solar cells. *Sol. RRL*, **2023**, 7(5), 2201084.
- 34 Jia, Z. R.; Ma, Q.; Chen, Z.; Meng, L.; Jain, N.; Angunawela, I.; Qin, S. C.; Kong, X. L.; Li, X. J.; Yang, Y. M.; Zhu, H. M.; Ade, H.; Gao, F.; Li, Y. F. Near-infrared absorbing acceptor with suppressed triplet exciton generation enabling high performance tandem organic solar cells. *Nat. Commun.*, **2023**, 14(1), 1236.
- 35 Wang, J. Q.; Zheng, Z.; Zu, Y. F.; Wang, Y. F.; Liu, X. Y.; Zhang, S. Q.; Zhang, M. J.; Hou, J. H. A tandem organic photovoltaic cell with 19.6% efficiency enabled by light distribution control. *Adv. Mater.*, **2021**, 33(39), 2102787.

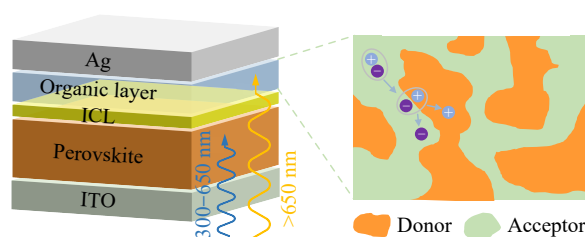
- 36 Zhan, L. L.; Li, S. X.; Li, Y. K.; Sun, R.; Min, J.; Bi, Z. Z.; Ma, W.; Chen, Z.; Zhou, G. Q.; Zhu, H. M.; Shi, M. M.; Zuo, L. J.; Chen, H. Z. Desired open-circuit voltage increase enables efficiencies approaching 19% in symmetric-asymmetric molecule ternary organic photovoltaics. *Joule*, **2022**, 6(3), 662–675.
- 37 Wang, J. Q.; Li, J. Y.; Wang, Y. F.; Ren, J. Z.; Bi, P. Q.; Li, H. X.; Dai, J. B.; Zhang, S. Q.; Hou, J. H. Tandem organic solar cells with 21.5% efficiency. *Adv. Mater.*, **2025**, 37(43), e10378.

Research Article

Component Optical Regulation for High-efficiency and Stable Monolithic All-inorganic Perovskite/Organic Tandem Solar Cells

Ji-xiang Yuan¹, Hai-di Yang¹, Ruo-peng Zhang^{1*}, Peng-peng Dong¹, Wei-jie Chen^{1*}, Yao-wen Li^{1,2}
(¹Laboratory of Advanced Optoelectronic Materials, Suzhou Key Laboratory of Novel Semiconductor-optoelectronics Materials and Devices, State Key Laboratory of Bioinspired Interfacial Materials Science, College of Chemistry, Chemical Engineering and Materials Science, Soochow University, Suzhou 215123)
(²Jiangsu Key Laboratory of Advanced Negative Carbon Technologies, Soochow University, Suzhou 215123)

Abstract Monolithic all-inorganic perovskite/organic tandem solar cells (TSCs) are highly promising for surpassing the single-junction Shockley-Queisser limit. However, the practical performance of such TSCs is often constrained by significant energy losses, primarily stemming from imbalanced photocurrent generation and altered charge carrier dynamics in the organic rear subcell under the optical filtering effect of the wide-bandgap perovskite front cell. Herein, we proposed a component optical regulation strategy to tackle this challenge. By strategically increasing the acceptor content in the organic bulk-heterojunction (BHJ), we concurrently enhanced the near-infrared photon capture and optimize the charge carrier dynamics under filtered illumination. This approach provided additional electron transport pathways, effectively balancing the hole and electron mobility, which in turn suppressed bimolecular recombination and promoted exciton dissociation, as verified by transient absorption spectroscopy. Consequently, the optimized TSC achieved a champion power conversion efficiency of 23.65% with an ultrahigh open-circuit voltage of 2.17 V and an impressive fill factor of 79.58%. Moreover, the device exhibited remarkable operational stability, retaining 88% of its initial efficiency after 1000 h, and superior UV resilience.



Keywords Tandem solar cells; All-inorganic perovskite; Organic photovoltaics; Bulk heterojunction; Charge carrier dynamics; Energy loss

* Corresponding authors: Ruo-peng Zhang, E-mail: zhangruopeng@suda.edu.cn

Wei-jie Chen, E-mail: wjchen@suda.edu.cn