

Semitransparent Organic Solar Cells based on Non-Fullerene Electron Acceptors

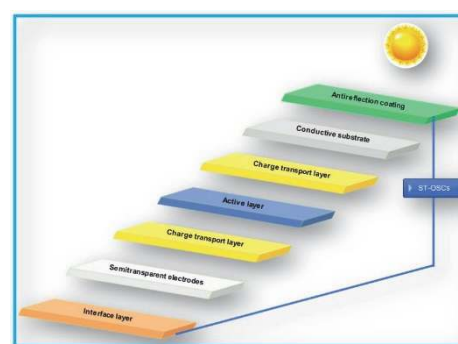
Baiqiao Liu¹, Yunhua Xu^{1,*}, Dongdong Xia³, Chengyi Xiao^{2,*}, Zhaofan Yang², Weiwei Li^{2,*}

¹ Department of Chemistry, School of Science, Beijing Jiaotong University, Beijing 100044, China.

² State Key Laboratory of Organic-Inorganic Composites, Beijing University of Chemical Technology, Beijing 100029, China.

³ Beijing National Laboratory for Molecular Sciences, Key Laboratory of Organic Solids, Institute of Chemistry, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China.

Abstract: Semitransparent organic solar cells (ST-OSCs) have attracted attention for use in building integrated photovoltaics because of their large range tunability in colors, transparency, and high efficiency. However, the development of semitransparent devices based on fullerene acceptors remained almost stagnant in the early period. This was due to the weak absorption of fullerene small molecules in the visible and near-infrared regions as well as the large non-radiative energy loss, resulting in drastic open-circuit voltage loss. In addition, the energy level and chemical structure of fullerene molecules cannot be easily regulated, and the strong aggregation characteristics of fullerenes greatly limit the development of OSCs. In contrast, the designability of the chemical structures and controllability of the energy levels of non-fullerene electron acceptors has encouraged researchers to explore high-performance organic solar cells while and simultaneously stimulating the development of ST-OSCs. In this review, the recent progress in non-fullerene small molecule acceptors for ST-OSCs is summarized. The article focuses on ST-OSCs from the aspects of device structures and active layers. In view of the semitransparent device structure, except for replacing the traditional electrodes with semitransparent electrodes, researchers have introduced suitable interface layers to regulate the absorption and reflection of sunlight. The interface layers mainly contain a reflective layer (evaporated on the top electrode to reflect near-infrared light); an anti-reflection layer (located below ITO (indium tin oxide)) to mitigate light reflection at the air-glass interface and thus enhance the absorption of sunlight); and an optical outcoupling layer (simultaneously increasing reflection and transmission). From the active layer, it is mainly divided into two categories. First, researchers have optimized the photovoltaic performance of semitransparent devices from the perspective of molecular structures, mainly by broadening the absorption window of non-fullerene small molecule acceptors, thus improving the crystallinity and charge mobility of small molecules, and regulating the stacking behavior and orientation of molecules in the films. Second, regarding the active layer processing, much effort has been undertaken to optimize the light absorption, morphology, and charge carrier transport channels of blended films.



From the active layer, it is mainly divided into two categories. First, researchers have optimized the photovoltaic performance of semitransparent devices from the perspective of molecular structures, mainly by broadening the absorption window of non-fullerene small molecule acceptors, thus improving the crystallinity and charge mobility of small molecules, and regulating the stacking behavior and orientation of molecules in the films. Second, regarding the active layer processing, much effort has been undertaken to optimize the light absorption, morphology, and charge carrier transport channels of blended films.

Key Words: Semitransparent organic solar cell; Non-fullerene acceptor; Average visible-light transmittance; Power conversion efficiency

Received: September 17, 2020; Revised: October 19, 2020; Accepted: October 30, 2020; Published online: November 12, 2020.

*Corresponding authors. Emails: yhxu@bjtu.edu.cn (Y.X.); xiaocy@mail.buct.edu.cn (C.X.); liweiwei@iccas.ac.cn (W.L.).

The project was supported by the National Natural Science Foundation of China (52073016, 21905018) and the Fundamental Research Funds for the Central Universities (XK1802-2).

国家自然科学基金(52073016, 21905018)和中央高校基础研究经费(XK1802-2)资助项目

© Editorial office of Acta Physico-Chimica Sinica

基于非富勒烯电子受体的半透明有机太阳能电池

刘柏乔¹, 许韵华^{1,*}, 夏冬冬³, 肖承义^{2,*}, 杨兆凡², 李韦伟^{2,*}

¹ 北京交通大学理学院化学系, 北京 100044

² 北京化工大学有机无机复合材料国家重点实验室, 北京 100029

³ 中国科学院化学研究所有机固体实验室北京分子科学国家实验室, 北京 100190

摘要: 半透明有机太阳能电池以其独特的光电特性在建筑集成光伏上具有广阔的应用前景。非富勒烯小分子受体近几年发展十分迅速。其中, 基于非富勒烯小分子受体的半透明有机太阳能电池具有较高的光电转换效率和平均可见光透过率, 因而得到了广泛关注。本文总结了近几年来非富勒烯受体型半透明有机太阳能电池的最新研究进展, 探究活性层材料设计及器件构型优化对半透明有机太阳能电池的影响, 希望为半透明有机太阳能电池在今后研究中新材料体系的优选提供一定的参考。

关键词: 半透明有机太阳能电池; 非富勒烯受体; 平均可见光透射率; 光电转换效率

中图分类号: O646

1 引言

半透明有机太阳能电池具有在建筑物、汽车、温室等窗口上的应用前景^{1,2} (如图1左半部分所示), 是太阳能电池的商业化的一个突破口, 从而成为近几年的研究热点³⁻⁶。衡量半透明有机太阳能电池性能的指标包括: (1)色坐标(Commission Internationale de l'Éclairage, CIE, 1931 color coordinates), 是色度图(为人眼感知所设计)上的坐标值, 通过相应的透射光进行计算, 2010年Ameri首次引入色坐标来评估半透明有机太阳能电池的颜色属性⁷; (2)显色指数(color rendering index, CRI), 可以通过半透明有机太阳能电池的透射光与照射光的匹配程度进行计算, 数值为0-100, 数值越高, 表明器件的显色性越好⁸; (3)光电转换效率(Power Conversion Efficiency, PCE)是指有机太阳能电池器件的最大输出功率 P_{\max} 与照射到器件的光的功率 P_{in} 之比, 其计算公式为:



图1 建筑物上集成有机光伏模组(左半部分)和色彩艳丽的集成光伏模组(右半部分)

Fig. 1 Building integrated photovoltaics with semitransparent organic solar cell modules (the left part) and with vivid colors (the right part).

The left part is reproduced with permission², Copyright 2019, Wiley-VCH. The right part is reproduced with permission¹³, Copyright 2015, Springer Nature.

$$\text{PCE} = \frac{P_{\max}}{P_{\text{in}}} = \frac{J_{\text{sc}} \times V_{\text{oc}} \times FF}{P_{\text{in}}} \times 100\% \quad (1)$$

公式(1)中 J_{sc} (short current density)为短路电流密度, V_{oc} (open circuit voltage)为开路电压, FF (fill factor)为填充因子。以上参数可以通过材料的设计进行调控⁹⁻¹¹; (4)平均可见光透过率(Average Visible-light transmittance, AVT)一般指有机太阳能电池器件在370-740 nm¹²的波长范围内的平均



许韵华, 北京交通大学教授, 博士生导师。主要研究方向为光电材料及应用、精细化工品、应用电化学、材料工程、光学。



肖承义, 2017年获得中国科学院化学研究所博士学位, 现为北京化工大学讲师。主要研究方向为有机场效应晶体管, 有机太阳能电池及有机柔性器件。



李韦伟, 北京化工大学教授, 博士生导师, 研究方向为新型有机共轭材料的开发, 有机太阳能电池、有机场效应晶体管、柔性器件。

透过率, 其计算公式为:

$$AVT = \frac{\int T(\lambda) \times V(\lambda) \times AM1.5G(\lambda) \times d(\lambda)}{\int V(\lambda) \times AM1.5G(\lambda) \times d(\lambda)} \quad (2)$$

公式(2)中 $T(\lambda)$ 为半透明器件的透射光谱, $V(\lambda)$ 为入眼的可见光响应, $AM1.5G(\lambda)$ 为AM1.5G光照条件下的光子通量。其中, 最为关键的指标为AVT和PCE。

半透明有机太阳能电池的光电性能和透光率主要与器件结构以及活性层材料相关。对于器件结构, 与传统的有机光电器件相似, 研究者主要将传统的电极更换为半透明电极, 从而提升半透明器件的透光率。而活性层材料主要集中在聚合物给体: 小分子受体共混体系, 其中小分子受体包括富勒烯类小分子和非富勒烯类小分子两大类。以富勒烯类小分子为受体的半透明有机太阳能电池从2007年发展至今, 其光电转换效率仅达到7%左右^{7,14-22}。这是由于富勒烯类小分子在可见光以及近红外区域表现出较弱的吸收²³, 并且以富勒烯类小分子为受体的有机太阳能电池存在着较大的非辐射损失导致其具有较大的开路电压损失²⁴。此外, 富勒烯类分子的能级和化学结构不易调控、聚集性强等特点也极大地限制了有机太阳能电池的发展。与此相比, 非富勒烯类小分子受体具有以下优势: 1)分子结构可设计性强; 2)分子轨道能级灵活可调; 3)成本低, 易于纯化等^{25,26}。这些特点使基于非富勒烯受体的半透明太阳能电池可实现色彩的连续调节, 对于实现颜色艳丽的半透明有机太阳能电池具有重要的作用¹³ (如图1右半部分所示)。此外, 目前基于非富勒烯受体的有机太阳能电池光电转换效率已经超过18%⁹, 这也极大的促进了其在半透明有机太阳能电池中的应用, 基于非富勒烯受体的半透明有机太阳能电池性能也已经超过了10%²⁷。本文总结了近几年来以非富勒烯材料为受体的半透明有机太阳能电池的研究进展, 从器件结构以及活性层方面探究半透明器件的影响因素。

2 半透明器件结构

半透明器件结构与传统的有机光电器件结构相似, 研究者主要对器件结构中的底电极以及顶电极进行优化, 在保证导电性的同时, 实现高透光率。半透明器件中所使用的电极材料主要有以下几类: 金属氧化物、金属纳米线、碳基材料(石墨烯和碳纳米管)、导电聚合物PEDOT:PSS(聚乙撑二氧噻吩-聚(苯乙烯磺酸盐))、以及超薄金属材料。目前基于非富勒电子受体的半透明器件主要

使用的顶电极为超薄金属。

2.1 金属氧化物半透明电极

早期所使用的金属氧化物半透明电极包括ITO(氧化铟锡), 以及铝(Al)掺杂氧化锌(ZnO)得到的金属氧化物(ZAO)¹⁶。例如, Schmidt等²⁸将ITO溅射于氧化钼上制备反向半透明器件, 器件的PCE达到1.9%, 在大于650 nm的波长范围下透过率达到80%。Yang等²⁹将掺杂山梨醇或庚七醇的PEDOT:PSS旋涂于带有ITO的基底, 并将其作为阳极与带有活性层的基底通过施加外力黏附在一起, 得到的半透明器件PCE可达到3%, 在活性层捕获光子弱的波长范围内, 其透过率可达到70%。对于ZAO, 一般采用溅射法制备半透明电极。2007年, Hanisch等¹⁹首次将ZAO溅射于LiF/Al层作为半透明顶电极材料, 其器件的PCE为3.4%, 在700和500 nm波长处透过率分别达到60.7%和9.3%。2012年, Bauer等³⁰将ZAO溅射于TiO_x/Al层, 制备的正向半透明器件PCE为3.9%, 其AVT可达到34%。

2.2 金属纳米线半透明电极

金属纳米线半透明电极一般分为两大类, 银纳米线(Silver nanowire, Ag NWs)和铜纳米线(Copper nanowire, Cu NWs)³¹。基于Ag NWs的电极一般具有高的柔韧性、良好的导电性、优异的透明性并且可用溶液法加工处理³²。2012年, Yang等³³报道了一种溶液加工法得到的混合型电极Ag NWs/ITO, 同时使用TiO₂溶胶-凝胶溶液增强电极与活性层之间的粘附力, 其半透明器件的PCE为4%, 在400-650 nm的波长范围透过率可达到61%。随后, Beiley等³⁴使用溶液加工法得到了Ag NWs/ZnO混合型电极, 制备的正向半透明器件从Ag NWs一侧照射时, 其PCE可达到4.3%, 在400-700 nm的波长范围透过率可达34%, 从玻璃基底一侧照射时, 其PCE可达到5.0%, 器件性能差异的原因主要为顶电极与底电极的透光性不同以及光从不同方向照射时活性层中电荷传输效率有差异。除了对Ag NWs本身的改性以外, 研究者们还从与Ag NWs接触的界面上进行了优化。2016年, Min等³⁵报道了一种组合的界面层ZnO/PDINO(perylenediimide functionalized with amino N-oxide)去优化基于Ag NWs的半透明器件, 其中界面层的引入可以减少载流子传输和电荷收集的能量损耗。Ma等³⁶将磷钼酸(phosphomolybdic acid, PMA)和PEDOT:PSS组成的有机-无机复合物做为活性层与Ag NWs电极之间的界面层, 其中该复合物对于活性层和电极表现出优异的润湿性, 其半透明器件PCE达到5.01%, 在400-780 nm的波长范

围AVT达到50.3%。Makha等³⁷将掺杂山梨醇的PEDOT:PSS旋涂于带有银网格的PET (polyethylene terephthalate, 聚对苯二甲酸乙二醇酯)基底上,并通过层压的方法将其作为顶电极制备半透明器件,其PCE可达到3%,AVT可达到51%。对于铜纳米线半透明电极,Zhai等³⁸制备了一种低成本、环境友好型且底、顶电极均为铜纳米线的半透明器件,光从不同方向照射时PCE均接近2%,在可见光区域的透射率可达42%。

2.3 碳基材料半透明电极

基于碳基材料的半透明电极主要有两类,碳纳米管(Carbon nanotube, CNT)和石墨烯。CNT适合用作半透明电极由于其具有以下优势:良好的透明性、导电性、柔韧性、稳定性以及可用溶液法加工处理^{4,32}。2010年,Xia等³⁹利用化学气相沉积的方法将CNT用作半透明器件的顶电极,该器件的PCE达到2.5%,在670–1200 nm的波长范围下AVT可达80%。Kim等⁴⁰利用溶液加工和层压的方法将独立式多壁碳纳米管用作半透明器件的顶电极,光从顶电极以及底电极方向照射时器件性能均为1%左右。2016年,Joen等⁴¹利用层压方法将单壁碳纳米管用作顶电极,同时利用HNO₃和MoO₃掺杂单壁碳纳米管以提升其导电性和透过率,其实验结果表明,经过改性后的半透明器件其PCE提高了1%–2%,透过率相同,器件性能提升的主要原因为HNO₃和MoO₃的引入提高了单壁碳纳米管的导电性。石墨烯具有出色的导电性和透明性,也被应用到半透明器件的底电极与顶电极^{32,42}。Lee等⁴³使用石墨烯薄膜作为顶电极,氧化石墨烯作为空穴传输层,制备反向半透明器件,具有十层石墨烯的半透明器件获得最优的PCE为2.5%。Yan等⁴⁴使用掺杂金纳米粒子和PEDOT:PSS溶液(调整石墨烯的功函和电阻)的单层石墨烯作为半透明器件的顶电极,半透明器件的PCE达到2.7%,器件面积为20 mm²,值得注意的是,当光从石墨烯一侧照射时器件的PCE更高,这是由于石墨烯有十分优异的透射率。Lin等⁴⁵制备了一种基于石墨烯的混合型半透明电极,电极结构为单层石墨烯/金网格/PET,将掺杂山梨醇的PEDOT:PSS旋涂于混合电极上,并用层压法将其与带有活性层的基底粘合制备半透明器件,器件PCE约为3%。Yan等⁴⁶制备的半透明顶电极为石墨烯/聚甲基丙烯酸甲酯(poly(methyl methacrylate), PMMA)/聚二甲基硅氧烷(polydimethylsiloxane, PDMS),利用层压法制备反向半透明器件,其PCE约为4%左右,在可见光区的透射率约为40%。随后,Kong等⁴⁷同样将石墨

烯/PMMA/PDMS作为顶电极,通过优化石墨烯的层数去平衡电极的电阻和透过率,结果表明电极结构中具有两层石墨烯时半透明器件性能最佳。Shin等⁴⁸使用双(三氟乙烷磺酰基)-酰胺(bis(trifluoronethanesulfonyl)-amide, TFSA)的石墨烯作为底电极,三亚乙基四胺(triethylene tetramine, TETA)掺杂的石墨烯作为顶电极,制备柔性半透明器件,器件的PCE约为3%,在400–550 nm的波长范围具有30%–40%的透过率,在650 nm波长处其透过率可达70%。

2.4 基于导电聚合物PEDOT:PSS的半透明电极

导电聚合物PEDOT:PSS由于在可见光区域表现出较高的透射率(>90%)因而适用于制备高性能半透明有机太阳能电池⁴⁹。然而原始的PEDOT:PSS薄膜电导率较低,需要对其改性才能满足高性能半透明有机太阳能电池的要求。一般提升PEDOT:PSS电导率的方法包括掺杂极性溶剂⁵⁰、强酸^{51–53}以及离子液体⁵⁴,改性后的PEDOT:PSS其电导率可提升2–3个数量级⁵⁵。研究者们在高性能有机光电子器件^{56,57}中普遍采用的PEDOT:PSS是德国贺利氏公司(CLEVIOS)所生产的PH500、PH510、PH1000、CPP105D。例如,Dong等⁵⁸使用PH500作为顶电极制备反向半透明器件,其中使用聚丙烯胺盐酸盐和右旋糖酐(poly(allylaminehydrochloride) and dextran, PAH-D)改善活性层的润湿性,获得的PCE约为1.86%,在650–800 nm波长范围下,AVT约为60%。值得注意的是,该器件制备过程中均采用的是溶液加工的方法,未使用真空处理。Zhou等⁵⁹将PH1000和其另外一种配方CPP105D共混后制得的薄膜作为顶电极,得到的半透明器件光电转换效率可达2.4%,在400–800 nm波长范围下其最大透过率可达70%。Colsmann等¹⁷在PEDOT:PSS中添加体积比为5%的二甲亚砷和体积比为10%的异丙醇,并将改性后的PEDOT:PSS与中性的m-PEDOT:PSS组成双层结构用作半透明器件的顶电极,半透明器件的PCE为1.9%,在可见光区的透射率约为40%。Fan等⁶⁰利用一种新颖的浸入式转移法得到了具有高导电性以及拉伸性的半透明顶电极PEDOT:PSS-PDMS,基于该电极制备的半透明器件的最优PCE为3.75%,AVT为35%。

2.5 基于超薄金属的半透明电极

前面所讨论的半透明电极包括金属氧化物、金属纳米线、碳材料以及导电聚合物PEDOT:PSS,但是基于以上电极的半透明器件所使用的活性层材料主要为富勒烯类材料,近几年基于非富勒烯材料的半透明器件主要采用的是基于超薄金属的

半透明电极。对这类超薄金属的电极优化方法主要为以下几类，第一类与传统的反向电池相同，最简单的器件结构为ITO/ZnO/Active Layer/MoO₃/Ag，研究者主要在金属层或者界面层的厚度上进行优化，例如Ma等⁶¹在Ag电极具有20 nm的情况下，半透明器件获得最优的AVT和PCE，而Durrant等⁶²使用8 nm Ag和30 nm MoO₃制备半透明器件。第二类是将传统的MoO₃/Ag电极更换为MoO₃/Ag/MoO₃⁶³，该电极的优势在于可见光在金属层的透射率较高(由于高折射率材料(MoO₃)和低折射率材料(Ag)交替而产生的干涉效应)⁶⁴，并且该器件结构可以通过蒸镀方法制备。第三类反向半透明器件是使用双金属电极代替单金属电极。例如Jia等⁶⁵在沉积Ag膜之前，预先在界面层上沉积1 nm Au，这样做的优势在于Au可以形成致密的成核中心，可以减少Ag的渗滤，使得金属膜形成平滑且连续的形态，增强Ag膜的均匀性，从而有利于提高电极的导电性以及可在可见光区的透射率⁶⁶。第四类是使用金属/氧化物/金属电极(法布里-珀罗谐振腔)，又叫F-P电极，金属电极一般使用Ag电极，中间的金属氧化物层也有利于减少Ag岛的形成，其优势在可以利用光的干涉效应使得半透明器件实现对光的反射的同时可以通过特定波长的光⁶⁷⁻⁶⁹。例如Yang等⁷⁰使用Ag/Sb₂O₃/Ag作为顶电极，同时提高半透明器件的AVT和PCE，而Li等⁷¹采用Ag/TeO₂/Ag为顶电极(TeO₂其折射率为2.2，在金属层和介电层界面可以实现良好的光透射，同时其消光系数接近于0，可以减少F-P电极的本征吸收)，并且为了提高半透明电极的电导率以及透射率，使用Bis-FIMG作为活性层与电极之间的界面层⁷²。

第五类是在金属电极上添加耦合层或者反射

层去调节对光的透射率以及反射率。例如Forrest等⁷³在电极表面通过真空热蒸发的方法镀上耦合层(基底底部界面层降低光在空气-玻璃界面的反射，提高整个器件对光的捕获)，如图2所示，主要通过调节不同波长的光的相位差(相位差为 π 的偶数倍有利于透射，相位差为 π 的奇数倍有利于反射)。值得注意的是，该工作中使用的电极为共蒸发获得的Cu-Ag合金电极，由此大幅度降低了Ag的聚集使得电极对可见光的反射降低，从而提高了器件对可见光的透射率以及光电转换效率。而Zhang等⁷⁴使用三对MoO₃/LiF作为反射层增加对近红外光的反射从而增加活性层对光的利用率，将其蒸镀于Au/Ag电极，在实现高效率和高透射率的同时，其体系的CRI接近于100。Sun等⁷⁵使用两对MoO₃/LiF作为反射层，结合具有近红外吸收的非富勒烯受体材料，使得半透明有机光电器件实现了良好的隔热性能，其中红外辐射的抑制率超过80%。考虑到实际过程中入射光的角度并不总是垂直照射，Liu等⁷⁶使用LiF/MoO₃/LiF作为反射层，在入射光角度为50°时，其PCE可达到9.67%。除此之外，半透明有机太阳能电池实现颜色可调以及具有较高色纯度的透色光等特点对于其商业化也起着至关重要的作用。

Yao等¹将气致变色层(WO₃/Pt)做为反射层制成颜色和透明度皆可调节的半透明器件。在氢气的诱导下，半透明器件可以在“着色”和“褪色”状态之间迅速地切换。由于色彩的转变需要用到氢气，因此研究者们提出可以将其作为氢能源汽车顶端的天窗，以实现其商业应用，如图3所示。

Wang等²⁷受甲壳虫表皮整合吸光层、滤光层等多种功能层的启发，设计了一种光谱选择性电

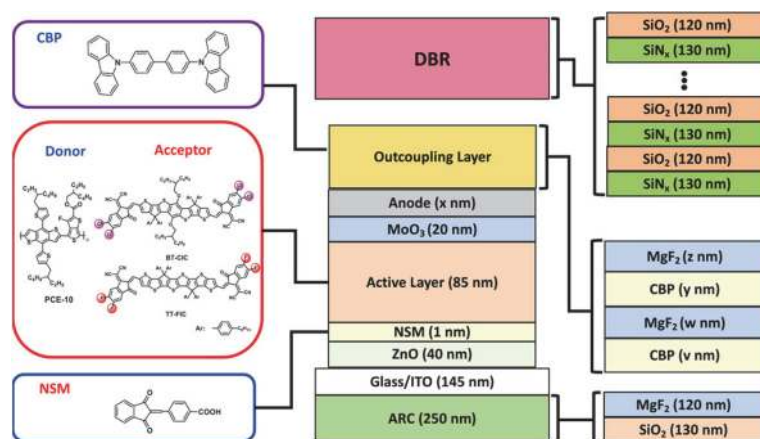


图2 带有光学耦合层的半透明器件结构

Fig. 2 The device structure of semitransparent organic solar cell using an optical outcoupling Architecture.

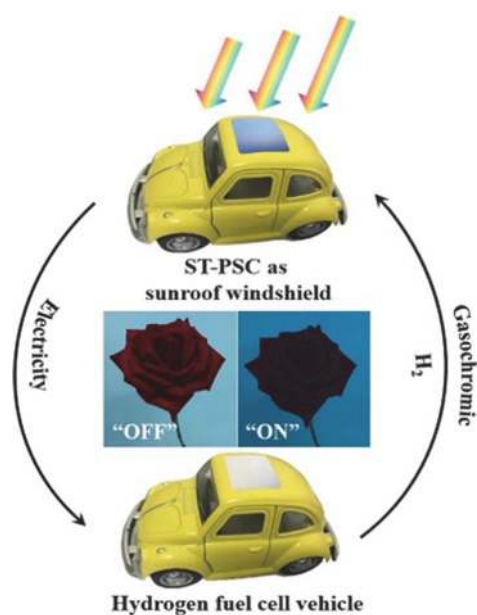


图3 半透明器件作为氢能源汽车天窗的示意图

Fig. 3 Schematic diagram of semitransparent device as a skylight of the hydrogen energy vehicle.

Reproduced with permission¹. Copyright 2019 Science China Press.

极(SSE, spectrally selective electrode), 器件结构如图4所示, 实现了半透明器件从紫色到红色区域颜色可调节, 同时半透明器件的透色光谱范围较窄, 其色纯度接近于100, 透射率的峰值接近于30%。

2.6 非富勒烯柔性半透明器件

除了制备传统的半透明有机光伏器件之外, 研究者们将刚性衬底ITO导电玻璃更换成柔性基底, 制备柔性半透明器件。2016年, Wang等⁷⁷制备了第一个基于非富勒烯材料的柔性半透明器件, 器件的AVT可达50%, 器件的光电转换效率高于同等条件下基于富勒烯类材料的半透明器件, 并且该器件表现出优异的弯折性能。

Liu等⁷⁸使用PET(polyethylene terephthalate, 聚对苯二甲酸乙二醇酯)为柔性基底, 银网格为底电极从而提高对光的透过率, 同时为了提高底电极的导电性, 将PEDOT:PSS(聚乙撑二氧噻吩-聚(苯乙烯磺酸盐), PH1000)旋涂于银网格上, 器件结构如图5b所示。并且将该柔性半透明器件做为光伏电源应用于温室中植物的光合作用, 如图5a所示, 以绿豆为例, 在经过13天以后, 半透明器件下的绿豆与正常阳光下生长的绿豆相比生长状况良好(如图5c所示)。Song等⁷⁹以多羟基化合物戊五醇(俗名木糖醇)和甲磺酸改性PEDOT:PSS, 从而改善底电极的光学、电学和形貌学特性。改性后的D-PEDOT:PSS与基底PET由于氢键的作用也可以提高器件的机械柔韧性, 制成的柔性半透明器件其

AVT为21%, 其PCE可达到10.53%。值得注意的是, 该器件表现出优异的抗弯折性能, 在循环弯折1000次后, 器件性能仍可维持到初始性能的80%, 除此之外, 将该半透明器件应用在模拟的温室屋顶, 结果表明, 植物的生长速度与阳光生长下的相当。以上的柔性半透明器件的研究结果都充分证明了半透明有机太阳能电池在实际生活中具有巨大的潜在应用价值。

3 活性层材料的选取及优化

在半透明器件结构中, 由于使用了半透明电极代替传统的镜面电极, 这就导致半透明器件对于光子的捕获能力降低, 进而损耗半透明器件的光电转换效率, 因此活性层材料的选取以及优化对于半透明器件实现高AVT和高PCE起着至关重要的作用^{80,81}。由于有机光电器件的短路电流和AVT均与材料的吸收有着密不可分的关系, 这就使得窄带隙材料成为了半透明有机太阳能电池的最佳选择。窄带隙材料的一般设计策略是将给电子基团(donor, D)与吸电子基团(acceptor, A)结合, 利用分子内电荷转移作用实现减小材料带隙的目的。目前应用在半透明有机太阳能电池中的窄带隙聚合给体为D-A型(donor-acceptor)共聚物⁸², 其共聚单元中使用的给电子单元有BDT-T(4,8-二(噻吩-2-基)苯并[1,2-b:4,5-b']二噻吩)、TT(噻吩并[3,2-b]噻吩), 吸电子单元包括BDD(1,3-双(噻吩-2-基)-5,7-双(2-乙基己基)苯并[1,2-c:4,5-c']二噻吩-4,8-二酮)、DPP(吡咯并吡咯二酮)、FTAZ(氟取代的苯并三唑)以及酯基取代的TT单元, 共聚物的结构式如图6所示。

而使用的窄带隙受体材料为A-D-A型(acceptor-donor-acceptor)小分子^{83,84}, 中心的给电子基团是由多个富电子单元组成的稠环结构, 两端的吸电子单元为1,1-二氰亚甲基-3-茚酮(IC)以及它的卤素取代衍生物(IC-F、IC-Cl、IC-Br、IC-I等⁸⁵)。这类受体分子内给电子单元与吸电子单元之间存在强推拉电子的作用, 可以降低材料的带隙, 进而将材料的吸收拓展至近红外区域, 端基IC类结构的强吸电子性也更容易获得具有深能级的受体材料^{86,87}。此外这类受体分子间 π - π 堆积形成的J-聚集体也可以使材料的吸收光谱发生红移⁸⁸。研究者们将窄带隙D-A型聚合物给体与窄带隙A-D-A型小分子受体的共混体系应用到了半透明有机光伏器件, 器件性能参数见表1, 并主要从受体的分子结构以及活性层工艺方面进行优化, 以提升半透明器件的光电性能。

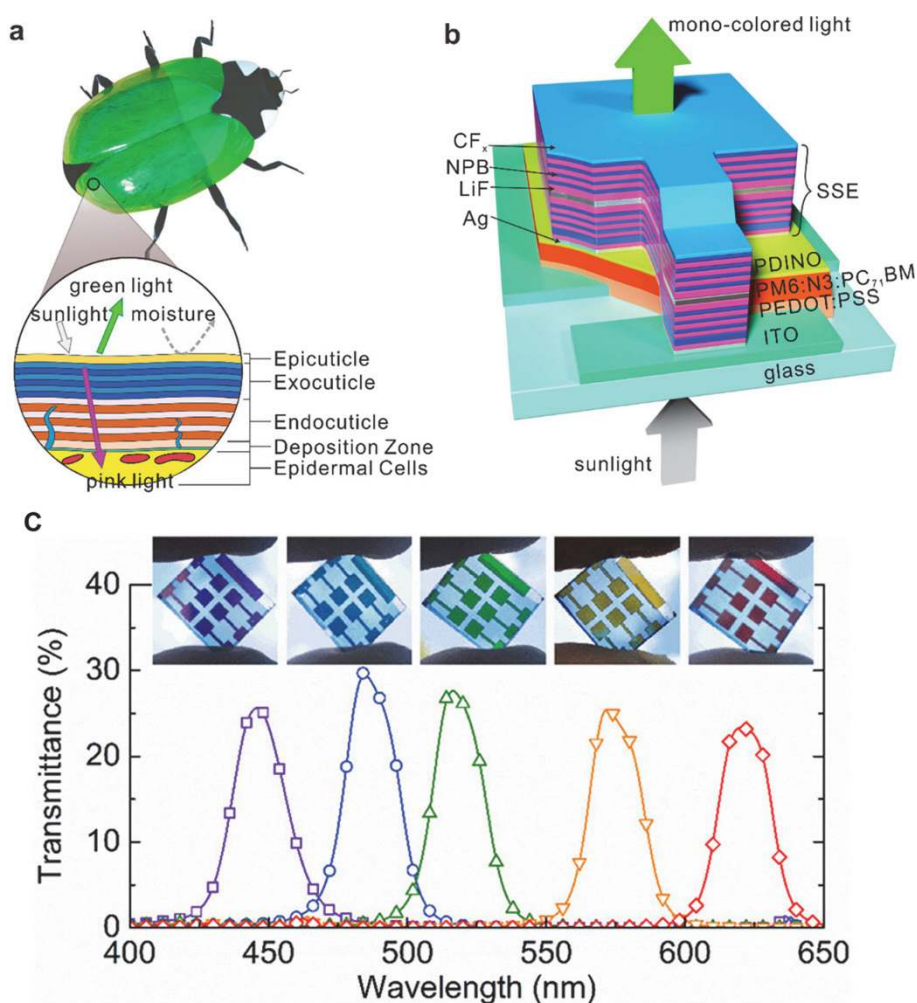


图 4 (a)甲壳虫背部整合多种功能层的示意图, (b)带有光谱选择性电极的半透明器件结构, (c)具有不同颜色的半透明器件以及他们的透射光谱

Fig. 4 (a) cross-section schematic of the beetle cuticle, (b) semitransparent device with the spectrally selective electrodes, (c) semitransparent device with different vivid colors.

Reproduced with permission²⁷. Copyright 2020, American Chemical Society.

3.1 分子结构对半透明有机太阳能电池的影响

在半透明器件使用的小分子受体材料中, 研究者主要从中心稠环的结构、稠环的数量、稠环上的侧链、刚性侧链在稠环上的相对位置、共轭单元上侧链的取向以及端基IC的结构等方面优化半透明器件的光电性能, 分子结构式如图7所示。

对于稠环结构的优化, Lu等⁸⁹将稠环结构上最外环的噻吩单元更换为吡咯单元, 如图7所示, 得到受体分子P6IC。将其与F6IC⁹⁰对比, 其研究表明: P6IC相对于F6IC, 其吸收红移, 并且具有更高的能级、更优异的结晶性以及更高的电子迁移率。与给体PTB7-Th⁹¹匹配, 半透明器件结构为ITO/ZnO/D:A/MoO_x/Au/Ag(D:A指给受体共混异质结组成的活性层, 下同), 以F6IC为受体的器件, AVT为18.4%, 其PCE可达到5.26%。以P6IC为受体

的器件, AVT为17.0%, 其PCE可达到10.2%。Zhu等⁹²使用萘二噻吩(NDT)为核, 得到受体分子IOIC2, 然而IOIC2的吸收边仅在800 nm左右, 为了拓宽其吸收到近红外区域, 将NDT核上的己基取代基替换为己氧基, 得到分子IOIC3⁹³。由于氧原子的诱导效应以及它和稠环核结构的共轭效应, IOIC3相对于IOIC2其前线分子轨道的能级差变小, 使其吸收红移。除此之外, IOIC3分子表现出更强的 π - π 堆积以及更高的电子迁移率。基于PTB7-Th:IOIC3的半透明器件其PCE可达10.8%, AVT为16.4%, 参数均高于基于PTB7-Th:IOIC2的半透明器件(PCE = 7.32%, AVT = 13.1%)。Li等⁹⁴将明星分子ITIC中心核结构的苯环更换成TT单元, IC-F封端, 得到受体分子FOIC, 将ITIC的端基IC-2F更换为IC-F, 得到受体分子ITIC3。其中FOIC

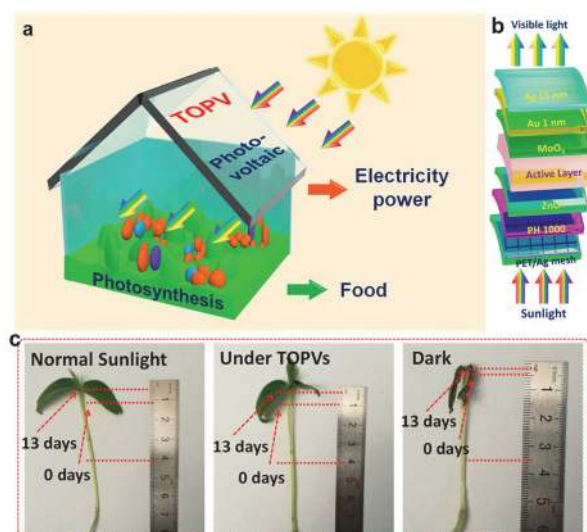


图 5 (a)温室上安装柔性半透明器件的示意图, (b)柔性半透明器件结构, (c)不同条件处理下 13 天后绿豆的生长情况

Fig. 5 (a) Schematic diagram of installation of flexible TOPVs on a greenhouse (b) Flexible STOPV structure (c) Optical photographs of the length change of mungs after 13 days (the original length was 3 cm).

Reproduced with permission⁷⁸. Copyright 2019, American Chemical Society.

吸收红移, 具有更高的电荷迁移率。基于FOIC的半透明器件其PCE可达10.3%, AVT为37.4%。

对于稠环数量的优化, Shi等⁹⁵合成出了含有6个稠环噻吩的6TIC, 与含有四个稠环噻吩的

4TIC(IHIC)对比, 结果表明, 6TIC相对于4TIC, 其吸收光谱发生红移, 分子间具有更强的 $\pi-\pi$ 堆积, 并且其具有更高的电子迁移率。并且他们将6TIC与给体PTB7-Th共混, 应用到半透明器件ITO/ZnO/D:A/MoO₃/Al(1 nm)/Ag(10 nm), AVT为23.3%, PCE可达到7.62%。对于稠环上侧链的优化, Forrest等⁹⁶改变稠环上的侧链得到了受体分子A134和A078。与A078相比, A134的吸收光谱有轻微的红移, 二者能级结构相似。与聚合物给体PTB7-Th匹配, 使用1-苯基萘做为添加剂, PTB7-Th:A078的混合膜中分子面朝上取向的比例多于PTB7-Th:A134的混合膜, 从而有利于电荷传输, 实现了更高的光电转换效率。进一步结合防反射层与耦合层, 其PCE可达到10.8%, 透过率可达到45.7%, 光利用率超过了5%, 为目前报道的最高值。对于刚性侧链在稠环上相对位置的优化, Wang等⁹⁷合成了两个异构化的稠环电子受体, FNIC1和FNIC2。与FNIC1相比, FNIC2表现出红移的吸收峰、较大的电子亲和力、较小的电离能以及更高的电子迁移率。当其与给体PTB7-Th结合, 半透明器件结构为ITO/ZnO/D:A/MoO₃/Ag, 在AVT均为20%左右的条件下, PTB7-Th:FNIC2表现出更高的光电转换效率9.51%。随后Xiao等⁹⁸利用FNIC1与FNIC2探究不同膜深度处的结晶性对半透明器件电荷传输与透过率的影响, 其研究表明, 结晶性对膜深度依赖性较小且具有中等结晶性的薄膜具有良好的光伏性能和透过率。具有较高结晶性

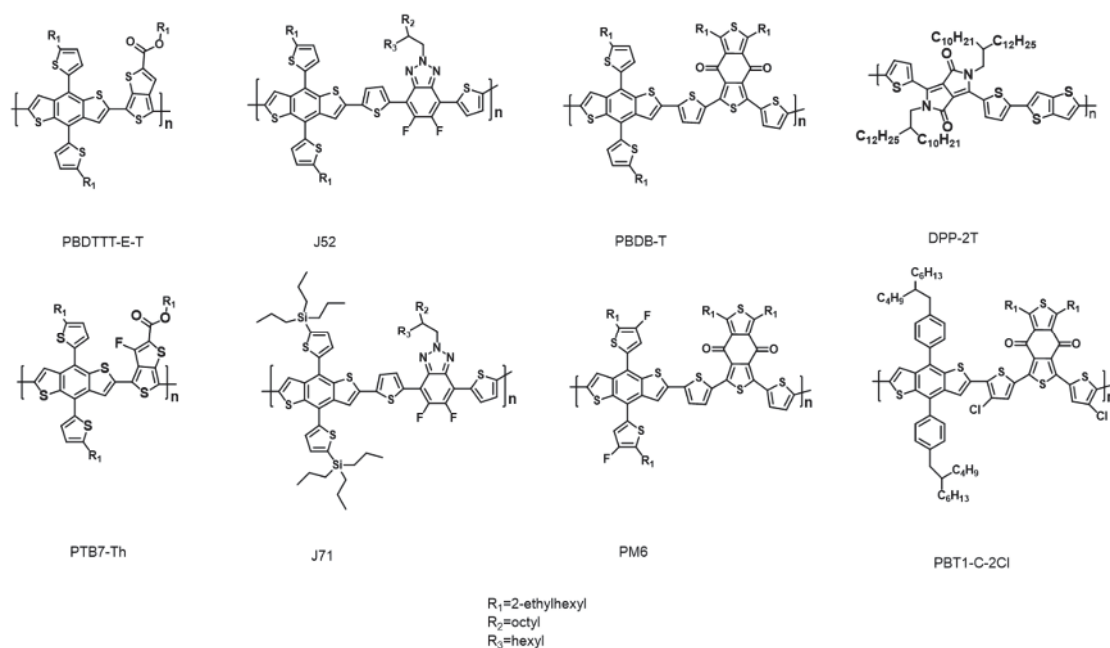


图 6 D-A 型聚合物给体

Fig. 6 Polymer donor containing D and A units.

表 1 文献中报道的二元非富勒烯半透明有机太阳能电池的光伏参数以及平均可见光透过率
 Table 1 Photovoltaic parameters and average visible light transmittance of binary non-fullerene semitransparent organic solar cells in literatures.

Donor	Acceptor	$\lambda_{\text{peak}}/\text{nm}$	$\lambda_{\text{onset}}/\text{nm}$	Device structure	PCE/%	AVT/%	Year
PBDTTT-E-T	IEICO	805	925	ITO/PEDOT:PSS/D:A/PFN-2TNDI-Br/Ag/LiF/MoO ₃ /LiF/MoO ₃	6.4	25.0	2018 ⁷⁵
PTB7-Th	ATT-2	835	940	ITO/ZnO/D:A/MoO ₃ /Ag	7.74	37	2017 ⁹⁹
	(400–600 nm)						
	BT-CIC	820	930	ITO/ZnO/D:A/MoO ₃ /Ag	7.1	43	2017 ¹⁰⁰
	IHIC	796	898	ITO/ZnO/D:A/MoO ₃ /Au/Ag	9.41	36	2017 ¹⁰¹
	6TIC	About 700–800	905	ITO/ZnO/D:A/MoO ₃ /Al/Ag	7.62	23.3	2018 ⁹⁵
	ITVfIC	772, 700	900	ITO/PEDOT:PSS/D:A/PDINO/Ag	8.2	33.7	2018 ¹⁰²
	IUIC	788	879	ITO/ZnO/D:A/MoO ₃ /Au/Ag	10.2	31	2018 ⁶⁵
	CO ₂ DFIC	830	984	ITO/ZnO/D:A/MoO ₃ /Ag	7.12	20	2018 ⁶¹
	IOIC2	730	805	ITO/ZnO/D:A/MoO ₃ /Au/Ag	7.3	13.1	2018 ⁹³
	IOIC3	765	855	ITO/ZnO/D:A/MoO ₃ /Au/Ag	10.8	16.4	2018 ⁹³
	FOIC	836	942	ITO/ZnO/D:A/MoO ₃ /Au/Ag	10.3	37.4	2018 ⁹⁴
	IEICO-4F	About 860	About 1000	ITO/PEDOT:PSS/D:A/PDIN/Au/Ag	9.06	27.1	2019 ¹⁰³
	IEICO-4Cl	887	About 1010	ITO/PEDOT:PSS/D:A/PFN-Br/Au	8.38	33.5	2019 ¹⁰⁴
	BDTThIT-4F	760	About 830	ITO/PEDOT:PSS/D:A/PDIN/Au/Ag	7.53	24	2019 ¹⁰⁵
	FOIC	–	–	PET/Ag mesh/PH 1000/ZnO/D:A/MoO ₃ /Au/Ag	8.86	31	2019 ⁷⁸
	F8IC	862	976	PET/Ag mesh/PH 1000/ZnO/D:A/MoO ₃ /Au/Ag	8.69	34	2019 ⁷⁸
	FNIC1	752	837	ITO/ZnO/D:A/MoO ₃ /Ag	7.58	20	2019 ⁹⁷
	FNIC2	794	898	ITO/ZnO/D:A/MoO ₃ /Ag	9.51	20	2019 ⁹⁷
	F6IC	799	905	ITO/ZnO/D:A/MoO ₃ /Au/Ag	5.26	18.4	2020 ⁸⁹
	P6IC	853	953	ITO/ZnO/D:A/MoO ₃ /Au/Ag	10.2	17.0	2020 ⁸⁹
DTG-IW	822	940	ITO/PEDOT:PSS/D:A/ZnO/Ag/Sb ₂ O ₃ /Ag	6.19	50	2020 ⁷⁰	
(500–550 nm)							
J52	IEICO-4Cl	–	–	ITO/PEDOT:PSS/D:A/PFN-Br/Au	6.37	35.1	2019 ¹⁰⁴
J71	IHIC	–	–	ITO/PEDOT:PSS/D:A/PDINO/Au/Ag	8.26	28.1	2019 ⁷⁴
PBDB-T	ITIC	702	780	ITO/ZnO/D:A/MoO ₃ /Ag/MoO ₃	7.3	25.2	2017 ⁶³
	IEICO-4Cl	–	–	ITO/PEDOT:PSS/D:A/PFN-Br/Au	6.24	35.7	2019 ¹⁰⁴
	Y14	853	954	ITO/SnO ₂ /D:A/MoO ₃ /Ag	12.67	23.69	2019 ¹⁰⁶
PM6	Y6	821	931	ITO/PEDOT:PSS/D:A/PDIN/Au/Ag	12.37	18.6	2019 ¹⁰⁷
	ID-4Cl	755	820	ITO/PEDOT:PSS/D:A/PDINO/Au	6.99	44	2019 ¹⁰⁸
PBT1-C-2Cl	Y6	–	–	ITO/ZnO/D:A/MoO ₃ /Au	8.2	44.2	2020 ¹⁰⁹
DPP-2T	IEICO-4F	–	–	ITO/ZnO/D:A/MoO ₃ /Ag/MoO ₃	5.74	60	2020 ⁶²
(400–600 nm)							

的薄膜其吸收红移并且会诱导较多的激子在电极附近产生，从而会导致严重的电荷重组。除此之外，沿薄膜深度方向结晶性变化较大会导致电荷传输能级变化较大，进而会在薄膜中形成低能量的陷阱，降低电荷传输能力以及器件的光伏性能。对于共轭单元上侧链取向的优化，Yang等⁷⁰合成出了带有朝内侧链的受体DTG-IW和带有朝外侧链

的受体DTG-OW。研究结果表明，侧链取向的不同会造成受体分子在薄膜中的堆积方式有差异，如图8所示，其中DTG-IW分子在薄膜中倾向于面堆积，分子平面平行于基底，而DTG-OW分子在薄膜中倾向于站立堆积，分子平面垂直于基底。因此在与给体PTB7-Th共混时，以DTG-IW为受体的器件表现出更高的光电转换性能。基于PTB7-Th:DTG-

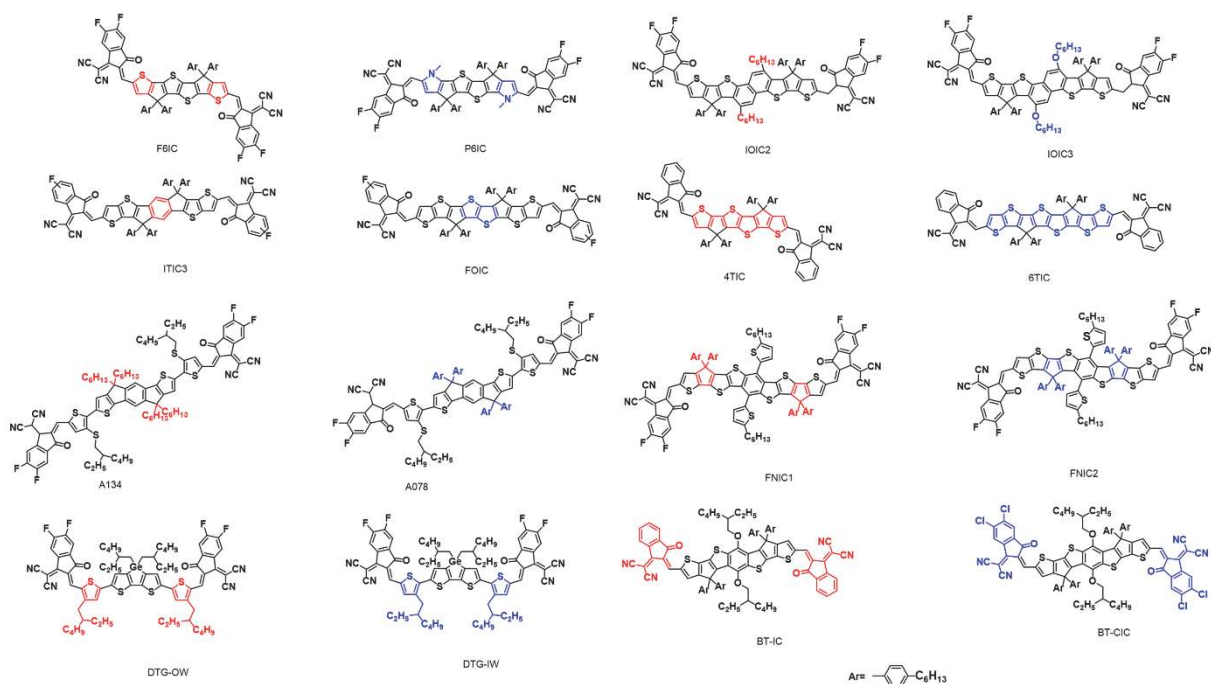


图 7 不同受体分子结构的对比

Fig. 7 Comparison of different small molecule acceptors.

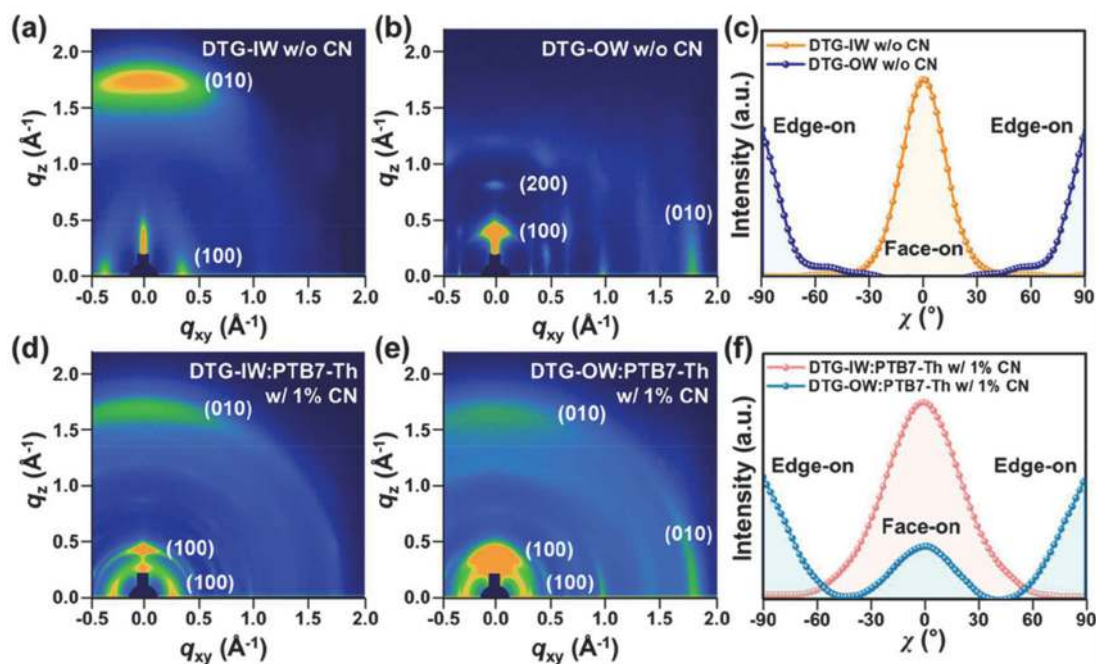


图 8 (a)和(b)纯膜的 2D GIWAXD (grazing-incidence wide-angle X-ray scattering, 掠入射广角 X 射线散射), (c)纯膜的(010)堆叠轮廓图, (d)和(e)混合膜的 2D GIWAXD 图, (f)混合膜的(010)堆叠轮廓图

Fig. 8 2D GIWAXD pictures of neat (a) DTG-IW and (b), DTG-OW films without CN, (c) their circular cut profiles of π - π (010) stacking; two-dimensional GIWAXD pictures of optimized blend films of (d) DTG-IW/PTB7-Th (1.5 : 1 with 1% CN) and (e) DTG-OW/PTB7-Th (2 : 1 with 1% CN), (f) their circular cut profiles of π - π (010) stacking.

Reproduced with permission⁷⁰. Copyright 2020, American Chemical Society.

IW的半透明有机光伏器件实现了6.19%的光电转换效率, 并且在绿色波段区表现出50.4%的透射率。对于端基IC的优化, Forrest等¹⁰⁰在BT-IC的端

基上引入四个氯原子, 得到受体分子BT-CIC。氯原子的引入增强了分子内的电荷转移作用, 从而降低了材料的带隙, 使得材料的吸收光谱红移。此

外CI-S和CI-CI的分子内相互作用也使得给体和受体在混合膜中形成有序的分子堆积。因而在与给体PTB7-Th匹配时,以BT-CIC为受体的有机光电器件表现出了更高的光电转换效率。基于PTB7-Th:BT-CIC的半透明器件PCE可达到7.1%,AVT可达到43%。

3.2 半透明有机太阳能电池活性层薄膜的优化

在活性层未经后处理的条件下获得高性能半透明有机太阳能电池可以简化器件的制备工艺,这对于半透明器件的商业化起到重要的作用。Huang等¹⁰²以PTB7-Th:ITVfIC为活性层材料,半透明器件结构为ITO/PEDOT:PSS/Active Layer/PDINO/Ag,在没有添加剂以及热处理的条件下获得了高性能的半透明有机太阳能电池,其AVT为33.7%,PCE可达到8.21%,其中该器件还表现出优异的热稳定性,在长达2 h的200 °C退火后,器件性能仍可以维持到初始性能的91%。Jia等⁶⁵使用PTB7-Th:IUIC作为活性层,半透明器件结构为ITO/ZnO/D:A/MoO₃/Au(1 nm)/Ag(15 nm),同样在活性层未经后处理的条件下获得了高性能的半透明器件,AVT为31%,PCE可达到10.2%。但是,大部分的活性层材料需要经过一定的优化,才能实现较高的光电性能。因此,在选取了合适的窄带隙给体与窄带隙受体材料后,研究者们对活性层薄膜进行了细致的优化,包括优化给受体的凝聚态结构以及利用三元策略和叠层等方法增加光谱利用率。

3.2.1 给受体凝聚态结构的优化

活性层中给体和受体的凝聚态结构对于实现高性能的半透明有机太阳能电池具有重要的作用。对于非富勒半透明有机太阳能电池,从活性层

工艺方面对给受体凝聚态结构的优化方法主要包括以下几类:优化给受体比例、双层策略以及纤维网状策略。对于给受体比例的优化,Hu等将PTB7-Th:IEICO-4F从1.2:1.5降低到0.8:1.5,器件的光电转换效率轻微降低(9.48%降低到9.06%),由于降低了活性层中给体的含量,器件的AVT也从23.7%,提高到了27.1%¹⁰³。在半透明器件中增加活性层厚度势必会导致给体材料在可见光区域的吸收增加,同时会引起半透明器件的AVT和PCE发生变化。Song等¹¹⁰将BHJ的共混膜更换为给体、受体双层膜,其优势在于可以通过增加受体IEICO-4F¹¹¹的厚度提高近红外光的捕获从而提高光电转换效率,并且对AVT的影响较小。

Xie等¹⁰⁹使用给体PBT1-C-2Cl¹¹²,该给体可自组装成良好的纤维网状结构,利于空穴传输,与受体Y6¹¹³匹配,二者可形成良好的互穿网络结构,如图9a所示,半透明器件结构为ITO(110 nm)/ZnO(20 nm)/D:A/MoO₃(3 nm)/Au(12 nm),AVT为44.2%,PCE可达到8.2%。该实验结果表明:给受体相形成良好的互穿网络结构有利于同时提高半透明器件的AVT和PCE。

3.2.2 三元策略与叠层策略

在二元BHJ体系中引入第三组分有助于提升活性层对光子的收集以及优化活性层形貌和载流子传输通道¹¹⁴。例如Hu等¹⁰⁵在FNIC1分子的基础上将噻吩上的烷基直链更换为烷基叉链,得到受体分子BDTThIT-4F¹¹⁵,其吸收光谱与FNIC1相似(BDTThIT-4F吸收峰在760 nm, FNIC1吸收峰在752 nm)。将PTB7-Th:BDTThIT-4F的体系应用到半透明器件ITO/PEDOT:PSS/D:A/PDIN/Au(1 nm)/Ag(10 nm),AVT为24.2%时,PCE可达到

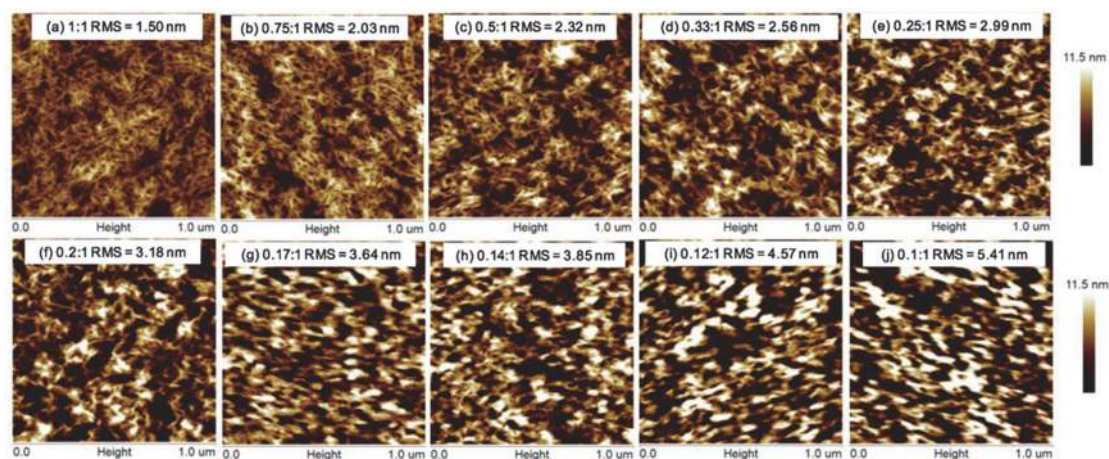


图9 不同给受体比例 PBT1-C-2Cl:Y6 混合膜的 AFM (atomic force microscope, 原子力显微镜)高度图

Fig. 9 AFM height images (1 μm × 1 μm) for PBT1-C-2Cl:Y6 blend films with different weight ratios.

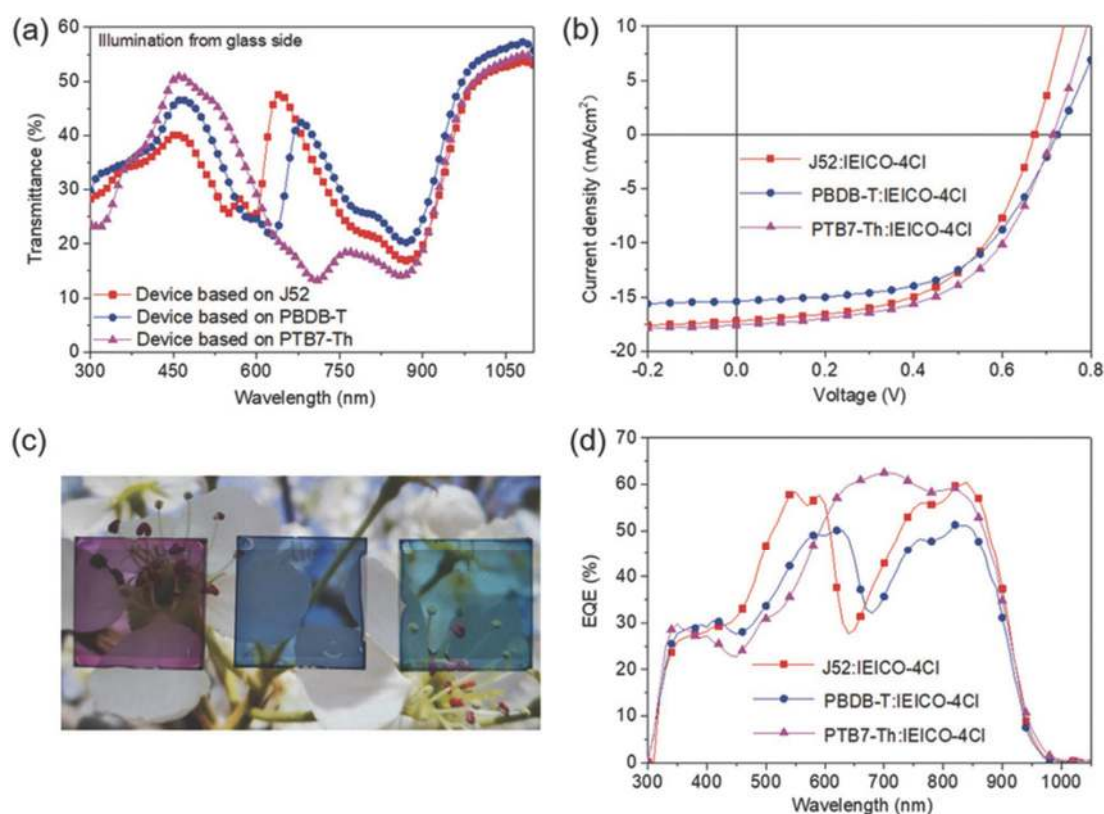


图 10 (a)不同 BHJ 体系的透射光谱, (b)不同 BHJ 体系的 $J-V$ 曲线, (c)从左到右依次为 J52:IEICO-4Cl, PBDB-T:IEICO-4Cl, PTB7-Th:IEICO-4Cl 的半透明器件, (d)不同 BHJ 体系的 EQE 曲线

Fig. 10 (a) Transmission spectra of different Bulk heterojunction; (b) $J-V$ curves of different Bulk heterojunction; (c) photograph of the three semitransparent devices, from left to right are J52:IEICO-4Cl-, PBDB-T:IEICO-4Cl-, and PTB7-Th:IEICO-4Cl- based devices; (d) External quantum efficiency (EQE) curves of different Bulk heterojunction.

Reproduced with permission¹¹⁶. Copyright 2017 WILEY-VCH.

7.53%。以IEICO-4F作为第三组分掺入体异质结体系, 其AVT为24.6%时, PCE可达到9.40%。Wang等¹¹⁶将PM6:Y6:BTTPC三元体系应用到半透明器件ITO/PEDOT:PSS/D:A/PFN-Br/Ag (12 nm), AVT为22.35%时, PCE可达到13.1%。Shi等¹¹⁷以PC₇₁BM作为第三组分掺入到J52:IEICO-4F体系, 其中第三组分的引入抑制了电荷重组, 提高了电荷提取效率, 以及提升了半透明器件的开路电压, 获得的半透明器件具有光谱选择性, 其透射光谱利于植物生长。Cheng等¹¹⁸提出了一种“透明空穴传输框架”策略, 其中使用超大带隙的p型聚合物PTAA (2.9 eV)部分取代活性层中的给体材料, 该方法的优势在于PTAA的引入可以降低给体材料在可见光区的吸收并且保持良好的空穴传输通道以及薄膜形貌。其中基于PBDB-T:PTAA:Y1 = 6:1:9的半透明器件, PCE约为12%, 高于未添加PTAA的PBDB-T:Y1的共混体系(PCE约为11%), AVT约为20%。为了验证该方法的普适性, 研究者们将其引入其他的给受体体系, PTB7-Th:F8IC、PTB7-

Th:FOIC、PTB7-Th:IEICO-4F, 基于以上材料的半透明器件PCE可达10.6%–10.9%, AVT可达30%–35%。除了引入第三组分增加对光子的捕获, 研究者们制备了叠层半透明器件提高对光的吸收。Chen等¹¹⁹以PTB7-Th:IEICS-4F为后置电池的活性层, P3TEA:FTTB-PDI₄¹²⁰为前置电池的活性层, 其叠层半透明器件表现出300–1000 nm的宽吸收, AVT为20%, PCE达到10.5%。

对于半透明器件色彩的调节, 除了选取合适的半透明电极¹²¹, 研究者还从活性层方面进行了优化。Cui等¹⁰⁴使用窄带隙受体IEICO-4Cl, 分别使用给体J52¹²², PBDB-T¹²³, PTB7-Th, 实现了半透明器件从紫色, 蓝色到青色的调节(如图10c所示), 获得的PCE为6%–7%, 其AVT均在35%左右。

4 总结与展望

为了获得具有高AVT以及高PCE的半透明有机太阳能电池, 研究者们选取了吸收边达到近红外区域以及红外区域的IC类小分子作为受体材

料,与窄带隙聚合物给体共混,对器件的光伏性能进行探究。研究者们主要从以下两方面来提升半透明器件的光伏性能:1)从半透明器件结构方面,除了将传统的电极更换为半透明电极,研究者们还引入合适的界面层以调控对太阳光的吸收和反射,其中界面层主要有反射层(一般蒸镀于顶电极反射近红外光)、防反射层(位于ITO以下,降低光在空气-玻璃界面的反射,提升器件对光的吸收)和耦合层(同时具有增加反射和透射的作用);2)活性层方面,主要分为两类,第一,从分子结构方面优化半透明器件的光伏性能,主要通过拓宽分子的吸收,提高分子的结晶性以及电荷迁移率,调控分子在薄膜中的堆积以及取向;第二,从活性层薄膜优化方面,主要是优化对光的吸收,形貌以及载流子传输通道。然而,从材料的选取方面,应用在非富勒烯半透明有机光电器件的窄带隙给体数量较少,研究者们可以组合或开发新的窄带隙给受体体系去提升半透明器件的光伏性能。

对于非富勒烯半透明器件,其具有鲜艳的色彩之外,同时可以利用太阳能进行发电,丰富人类视觉的同时又起到了绿色能源的作用,兼具娱乐性和实用性,除此之外,材料设计和器件结构设计的灵活性又给予了研究者们更大的想象空间和操作空间,相信在不久的将来,伴随着有机光伏的商业化,非富勒烯半透明有机太阳能电池将在未来的生产生活中成为重要的组成部分。

References

- (1) Yao, M. N.; Li, T. F.; Long, Y. B.; Shen, P.; Wang, G. X.; Li, C. L.; Liu, J. S.; Guo, W. B.; Wang, Y. F.; Shen, L.; Zhan, X. W. *Sci. Bull.* **2020**, *65*, 217. doi: 10.1016/j.scib.2019.11.002
- (2) Brus, V. V.; Lee, J.; Luginbuhl, B. R.; Ko, S. J.; Bazan, G. C.; Nguyen, T. Q. *Adv. Mater.* **2019**, *31*, 1900904. doi: 10.1002/adma.201900904
- (3) Yan, N. F.; Zhao, C. W.; You, S. Y.; Zhang, Y. F.; Li, W. W. *Chin. Chem. Lett.* **2020**, *31*, 643. doi: 10.1016/j.ccl.2019.08.022
- (4) Li, Y.; Xu, G.; Cui, C.; Li, Y. *Adv. Energy Mater.* **2018**, *8*, 1701791. doi: 10.1002/aenm.201701791
- (5) Xue, Q. F.; Xia, R. X.; Brabec, C. J.; Yip, H. L. *Energy Environ. Sci.* **2018**, *11*, 1688. doi: 10.1039/c8ee00154e
- (6) Xu, G.; Shen, L.; Cui, C.; Wen, S.; Xue, R.; Chen, W.; Chen, H.; Zhang, J.; Li, H.; Li, Y.; Li, Y. *Adv. Funct. Mater.* **2017**, *27*, 1605908. doi: 10.1002/adfm.201605908
- (7) Ameri, T.; Dennler, G.; Waldauf, C.; Azimi, H.; Seemann, A.; Forberich, K.; Hauch, J.; Scharber, M.; Hingerl, K.; Brabec, C. J. *Adv. Funct. Mater.* **2010**, *20*, 1592. doi: 10.1002/adfm.201000176
- (8) Lynn, N.; Mohanty, L.; Wittkopf, S. *Build. Environ.* **2012**, *54*, 148. doi: 10.1016/j.buildenv.2012.02.010
- (9) Liu, Q. S.; Jiang, Y. F.; Jin, K.; Qin, J. Q.; Xu, J. G.; Li, W. T.; Xiong, J.; Liu, J. F.; Xiao, Z.; Sun, K.; *et al. Sci. Bull.* **2020**, *65*, 272. doi: 10.1016/j.scib.2020.01.001
- (10) An, N.; Cai, Y.; Wu, H.; Tang, A.; Zhang, K.; Hao, X.; Ma, Z.; Guo, Q.; Ryu, H. S.; Woo, H. Y.; *et al. Adv. Mater.* **2020**, *32*, 2002122. doi: 10.1002/adma.202002122
- (11) Cui, Y.; Yao, H.; Zhang, J.; Xian, K.; Zhang, T.; Hong, L.; Wang, Y.; Xu, Y.; Ma, K.; An, C.; *et al. Adv. Mater.* **2020**, *32*, 1908205. doi: 10.1002/adma.201908205
- (12) Miao, J. L.; Zhang, F. J. *J. Mater. Chem. C* **2019**, *7*, 1741. doi: 10.1039/c8tc06089d
- (13) Debije, M. *Nature* **2015**, *519*, 298. doi: 10.1038/519298a
- (14) Chang, C. Y.; Zuo, L.; Yip, H. L.; Li, C. Z.; Li, Y.; Hsu, C. S.; Cheng, Y. J.; Chen, H.; Jen, A. K. Y. *Adv. Energy Mater.* **2014**, *4*, 1301645. doi: 10.1002/aenm.201301645
- (15) Chen, K. S.; Salinas, J. F.; Yip, H. L.; Huo, L. J.; Hou, J. H.; Jen, A. K. Y. *Energy Environ. Sci.* **2012**, *5*, 9551. doi: 10.1039/c2ee22623e
- (16) Colmann, A.; Puetz, A.; Bauer, A.; Hanisch, J.; Ahlswede, E.; Lemmer, U. *Adv. Energy Mater.* **2011**, *1*, 599. doi: 10.1002/aenm.201000089
- (17) Czolk, J.; Puetz, A.; Kutsarov, D.; Reinhard, M.; Lemmer, U.; Colmann, A. *Adv. Energy Mater.* **2013**, *3*, 386. doi: 10.1002/aenm.201200532
- (18) Guo, F.; Zhu, X. D.; Forberich, K.; Krantz, J.; Stubhan, T.; Salinas, M.; Halik, M.; Spallek, S.; Butz, B.; Spiecker, E.; *et al. Adv. Energy Mater.* **2013**, *3*, 1062. doi: 10.1002/aenm.201300100
- (19) Hanisch, J.; Ahlswede, E.; Powalla, M. *Eur. Phys. J. Appl. Phys.* **2007**, *37*, 261. doi: 10.1051/epjap:2007041
- (20) Jagadamma, L. K.; Hu, H. L.; Kim, T.; Ndjawa, G. O. N.; Mansour, A. E.; El Labban, A.; Faria, J. C. D.; Munir, R.; Anjum, D. H.; McLachlan, M. A.; Amassian, A. *Nano Energy* **2016**, *28*, 277. doi: 10.1016/j.nanoen.2016.08.019
- (21) Ren, X. G.; Li, X. C.; Choy, W. C. H. *Nano Energy* **2015**, *17*, 187. doi: 10.1016/j.nanoen.2015.08.014
- (22) Shen, P.; Wang, G.; Kang, B.; Guo, W.; Shen, L. *ACS Appl. Mater. Interfaces* **2018**, *10*, 6513. doi: 10.1021/acsami.7b18765
- (23) Zhan, X.; Tan, Z.; Domercq, B.; An, Z.; Zhang, X.; Barlow, S.; Li, Y.; Zhu, D.; Kippelen, B.; Marder, S. R. *J. Am. Chem. Soc.* **2007**, *129*, 7246. doi: 10.1021/ja071760d
- (24) Cheng, P.; Li, G.; Zhan, X. W.; Yang, Y. *Nat. Photonics* **2018**, *12*, 131. doi: 10.1038/s41566-018-0104-9
- (25) Yan, C.; Barlow, S.; Wang, Z.; Yan, H.; Jen, A. K. Y.; Marder, S. R.; Zhan, X. *Nat. Rev. Mater.* **2018**, *3*, 18003. doi: 10.1038/natrevmats.2018.3

- (26) Lin, Y.; Wang, J.; Zhang, Z. G.; Bai, H.; Li, Y.; Zhu, D.; Zhan, X. *Adv. Mater.* **2015**, 27, 1170. doi: 10.1002/adma.201404317
- (27) Wang, S.; Chen, J.; Li, L.; Zuo, L.; Qu, T. Y.; Ren, H.; Li, Y.; Jen, A. K. Y.; Tang, J. X. *ACS Nano* **2020**, 14, 5998. doi: 10.1021/acsnano.0c01517
- (28) Schmidt, H.; Flügge, H.; Winkler, T.; Bülow, T.; Riedl, T.; Kowalsky, W. *Appl. Phys. Lett.* **2009**, 94, 243302. doi: 10.1063/1.3154556
- (29) Huang, J.; Li, G.; Yang, Y. *Adv. Mater.* **2008**, 20, 415. doi: 10.1002/adma.200701101
- (30) Bauer, A.; Wahl, T.; Hanisch, J.; Ahlswede, E. *Appl. Phys. Lett.* **2012**, 100, 073307. doi: 10.1063/1.3685718
- (31) Zhang, D.; Wang, R.; Wen, M.; Weng, D.; Cui, X.; Sun, J.; Li, H.; Lu, Y. *J. Am. Chem. Soc.* **2012**, 134, 14283. doi: 10.1021/ja3050184
- (32) Tai, Q.; Yan, F. *Adv. Mater.* **2017**, 29, 1700192. doi: 10.1002/adma.201700192
- (33) Chen, C. C.; Dou, L.; Zhu, R.; Chung, C. H.; Song, T. B.; Zheng, Y. B.; Hawks, S.; Li, G.; Weiss, P. S.; Yang, Y. *ACS Nano* **2012**, 6, 7185. doi: 10.1021/nn3029327
- (34) Beiley, Z. M.; Christoforo, M. G.; Gratia, P.; Bowring, A. R.; Eberspacher, P.; Margulis, G. Y.; Cabanetos, C.; Beaujuge, P. M.; Salleo, A.; McGehee, M. D. *Adv. Mater.* **2013**, 25, 7020. doi: 10.1002/adma.201301985
- (35) Min, J.; Bronnbauer, C.; Zhang, Z. G.; Cui, C.; Luponosov, Y. N.; Ata, I.; Schweizer, P.; Przybilla, T.; Guo, F.; Ameri, T.; *et al.* *Adv. Funct. Mater.* **2016**, 26, 4543. doi: 10.1002/adfm.201505411
- (36) Ji, G.; Wang, Y.; Luo, Q.; Han, K.; Xie, M.; Zhang, L.; Wu, N.; Lin, J.; Xiao, S.; Li, Y. Q.; *et al.* *ACS Appl. Mater. Interfaces* **2018**, 10, 943. doi: 10.1021/acsami.7b13346
- (37) Makha, M.; Testa, P.; Anantharaman, S. B.; Heier, J.; Jenatsch, S.; Leclaire, N.; Tisserant, J. N.; Veron, A. C.; Wang, L.; Nuesch, F.; Hany, R. *Sci. Technol. Adv. Mater.* **2017**, 18, 68. doi: 10.1080/14686996.2016.1261602
- (38) Zhai, H.; Li, Y.; Chen, L.; Wang, X.; Shi, L.; Wang, R.; Sun, J. *Nano Res.* **2018**, 11, 1956. doi: 10.1007/s12274-017-1812-z
- (39) Xia, X.; Wang, S.; Jia, Y.; Bian, Z.; Wu, D.; Zhang, L.; Cao, A.; Huang, C. *J. Mater. Chem.* **2010**, 20, 8478. doi: 10.1039/C0JM02406F
- (40) Kim, Y. H.; Müller-Meskamp, L.; Zakhidov, A. A.; Sachse, C.; Meiss, J.; Bikova, J.; Cook, A.; Zakhidov, A. A.; Leo, K. *Sol. Energy Mater. Sol. Cells* **2012**, 96, 244. doi: 10.1016/j.solmat.2011.10.001
- (41) Maruyama, S. *ECS Meeting Abstracts* **2018**. doi: 10.1149/ma2018-01/5/642
- (42) Bae, S.; Kim, H.; Lee, Y.; Xu, X.; Park, J. S.; Zheng, Y.; Balakrishnan, J.; Lei, T.; Kim, H. R.; Song, Y. I.; *et al.* *Nat. Nanotechnol.* **2010**, 5, 574. doi: 10.1038/nnano.2010.132
- (43) Lee, Y. Y.; Tu, K. H.; Yu, C. C.; Li, S. S.; Hwang, J. Y.; Lin, C. C.; Chen, K. H.; Chen, L. C.; Chen, H. L.; Chen, C. W. *ACS Nano* **2011**, 5, 6564. doi: 10.1021/nn201940j
- (44) Liu, Z.; Li, J.; Sun, Z. H.; Tai, G.; Lau, S. P.; Yan, F. *ACS Nano* **2012**, 6, 810. doi: 10.1021/nn204675r
- (45) Li, X.; Choy, W. C. H.; Ren, X.; Xin, J.; Lin, P.; Leung, D. C. W. *Appl. Phys. Lett.* **2013**, 102, 153304. doi: 10.1063/1.4802261
- (46) Liu, Z.; You, P.; Liu, S.; Yan, F. *ACS Nano* **2015**, 9, 12026. doi: 10.1021/acsnano.5b04858
- (47) Song, Y.; Chang, S.; Gradedecak, S.; Kong, J. *Adv. Energy Mater.* **2016**, 6, 1600847. doi: 10.1002/aenm.201600847
- (48) Shin, D. H.; Jang, C. W.; Lee, H. S.; Seo, S. W.; Choi, S. H. *ACS Appl. Mater. Interfaces* **2018**, 10, 3596. doi: 10.1021/acsami.7b16730
- (49) Hu, Z.; Wang, J.; Ma, X.; Gao, J.; Xu, C.; Yang, K.; Wang, Z.; Zhang, J.; Zhang, F. *Nano Energy* **2020**, 78, 105376. doi: 10.1016/j.nanoen.2020.105376
- (50) Kim, N.; Kang, H.; Lee, J. H.; Kee, S.; Lee, S. H.; Lee, K. *Adv. Mater.* **2015**, 27, 2317. doi: 10.1002/adma.201500078
- (51) Fan, X.; Xu, B.; Liu, S.; Cui, C.; Wang, J.; Yan, F. *ACS Appl. Mater. Interfaces* **2016**, 8, 14029. doi: 10.1021/acsami.6b01389
- (52) Xia, Y.; Sun, K.; Ouyang, J. *Adv. Mater.* **2012**, 24, 2436. doi: 10.1002/adma.201104795
- (53) Kim, N.; Kee, S.; Lee, S. H.; Lee, B. H.; Kahng, Y. H.; Jo, Y. R.; Kim, B. J.; Lee, K. *Adv. Mater.* **2014**, 26, 2268. doi: 10.1002/adma.201304611
- (54) Wang, Y.; Zhu, C.; Pfattner, R.; Yan, H.; Jin, L.; Chen, S.; Molina-Lopez, F.; Lissel, F.; Liu, J.; Rabiah, N. I.; *et al.* *Sci. Adv.* **2017**, 3, 1602076. doi: 10.1126/sciadv.1602076
- (55) Fan, X.; Nie, W.; Tsai, H.; Wang, N.; Huang, H.; Cheng, Y.; Wen, R.; Ma, L.; Yan, F.; Xia, Y. *Adv. Sci.* **2019**, 6, 1900813. doi: 10.1002/advs.201900813
- (56) Zheng, W.; Lin, Y.; Zhang, Y.; Yang, J.; Peng, Z.; Liu, A.; Zhang, F.; Hou, L. *ACS Appl. Mater. Interfaces* **2017**, 9, 44656. doi: 10.1021/acsami.7b14395
- (57) Shi, H.; Liu, C.; Jiang, Q.; Xu, J. *Adv. Electron. Mater.* **2015**, 1, 1500017. doi: 10.1002/aelm.201500017
- (58) Dong, Q.; Zhou, Y.; Pei, J.; Liu, Z.; Li, Y.; Yao, S.; Zhang, J.; Tian, W. *Org. Electron.* **2010**, 11, 1327. doi: 10.1016/j.orgel.2010.04.012
- (59) Zhou, Y.; Cheun, H.; Choi, S.; Fuentes-Hernandez, C.; Kippelen, B. *Org. Electron.* **2011**, 12, 827. doi: 10.1016/j.orgel.2011.02.017
- (60) Fan, X.; Xu, B.; Wang, N.; Wang, J.; Liu, S.; Wang, H.; Yan, F. *Adv. Electron. Mater.* **2017**, 3, 1600471. doi: 10.1002/aelm.201600471
- (61) Ma, X.; Xiao, Z.; An, Q.; Zhang, M.; Hu, Z.; Wang, J.; Ding, L.; Zhang, F. *J. Mater. Chem. A* **2018**, 6, 21485. doi: 10.1039/c8ta08891h
- (62) Lee, J.; Cha, H.; Yao, H.; Hou, J.; Suh, Y. H.; Jeong, S.; Lee, K.; Durrant, J. R. *ACS Appl. Mater. Interfaces* **2020**, 12, 32764. doi: 10.1021/acsami.0c08037

- (63) Upama, M. B.; Wright, M.; Elumalai, N. K.; Mahmud, M. A.; Wang, D.; Xu, C.; Uddin, A. *ACS Photonics* **2017**, 4, 2327. doi: 10.1021/acsp Photonics.7b00618
- (64) Upama, M. B.; Wright, M.; Elumalai, N. K.; Mahmud, M. A.; Wang, D.; Chan, K. H.; Xu, C.; Hague, F.; Uddin, A. *Curr. Appl. Phys.* **2017**, 17, 298. doi: 10.1016/j.cap.2016.12.010
- (65) Jia, B. Y.; Dai, S. X.; Ke, Z. F.; Yan, C. Q.; Ma, W.; Zhan, X. W. *Chem. Mater.* **2018**, 30, 239. doi: 10.1021/acs.chemmater.7b04251
- (66) Schubert, S.; Meiss, J.; Müller-Meskamp, L.; Leo, K. *Adv. Energy Mater.* **2013**, 3, 438. doi: 10.1002/aenm.201200903
- (67) Kim, Y.; Son, J.; Shafian, S.; Kim, K.; Hyun, J. K. *Adv. Opt. Mater.* **2018**, 6, 1800051. doi: 10.1002/adom.201800051
- (68) Li, Z. Y.; Butun, S.; Aydin, K. *ACS Photonics* **2015**, 2, 183. doi: 10.1021/ph500410u
- (69) Lu, J. H.; Lin, Y. H.; Jiang, B. H.; Yeh, C. H.; Kao, J. C.; Chen, C. P. *Adv. Funct. Mater.* **2018**, 28, 1703398. doi: 10.1002/adfm.201703398
- (70) Cho, Y.; Lee, T. H.; Jeong, S.; Park, S. Y.; Lee, B.; Kim, J. Y.; Yang, C. *ACS Appl. Energy Mater.* **2020**, 3, 7689. doi: 10.1021/acsaem.0c01097
- (71) Li, X.; Xia, R.; Yan, K.; Ren, J.; Yip, H. L.; Li, C. Z.; Chen, H. *ACS Energy Lett.* **2020**, 3115. doi: 10.1021/acsenerylett.0c01554
- (72) Yan, K. R.; Liu, Z. X.; Li, X.; Chen, J. H.; Chen, H. Z.; Li, C. Z. *Org. Chem. Front.* **2018**, 5, 2845. doi: 10.1039/c8qo00788h
- (73) Li, Y.; Ji, C.; Qu, Y.; Huang, X.; Hou, S.; Li, C. Z.; Liao, L. S.; Guo, L. J.; Forrest, S. R. *Adv. Mater.* **2019**, 31, 1903173. doi: 10.1002/adma.201903173
- (74) Zhang, J.; Xu, G.; Tao, F.; Zeng, G.; Zhang, M.; Yang, Y. M.; Li, Y.; Li, Y. *Adv. Mater.* **2019**, 31, 1807159. doi: 10.1002/adma.201807159
- (75) Sun, C.; Xia, R. X.; Shi, H.; Yao, H. F.; Liu, X.; Hou, J. H.; Huang, F.; Yip, H. L.; Cao, Y. *Joule* **2018**, 2, 1816. doi: 10.1016/j.joule.2018.06.006
- (76) Liu, Q.; Gerling, L. G.; Bernal-Texca, F.; Toudert, J.; Li, T. F.; Zhan, X. W.; Martorell, J. *Adv. Energy Mater.* **2020**, 10, 1904196. doi: 10.1002/aenm.201904196
- (77) Wang, Y.; Jia, B.; Qin, F.; Wu, Y.; Meng, W.; Dai, S.; Zhou, Y.; Zhan, X. *Polymer* **2016**, 107, 108. doi: 10.1016/j.polymer.2016.11.015
- (78) Liu, Y.; Cheng, P.; Li, T.; Wang, R.; Li, Y.; Chang, S. Y.; Zhu, Y.; Cheng, H. W.; Wei, K. H.; Zhan, X.; et al. *ACS Nano* **2019**, 13, 1071. doi: 10.1021/acsnano.8b08577
- (79) Song, W.; Fanady, B.; Peng, R. X.; Hong, L.; Wu, L. R.; Zhang, W. X.; Yan, T. T.; Wu, T.; Chen, S. H.; Ge, Z. Y. *Adv. Energy Mater.* **2020**, 10, 2000136. doi: 10.1002/aenm.202000136
- (80) Yue, Q.; Liu, W.; Zhu, X. *J. Am. Chem. Soc.* **2020**, 142, 11613. doi: 10.1021/jacs.0c04084
- (81) Geng, Y. H. *Acta Phys. -Chim. Sin.* **2019**, 35, 1311. [耿延候. 物理化学学报, **2019**, 35, 1311.] doi: 10.3866/PKU.WHXB201909019
- (82) Xie, Y.; Xia, R.; Li, T.; Ye, L.; Zhan, X.; Yip, H. L.; Sun, Y. *Small Methods* **2019**, 3, 1900424. doi: 10.1002/smt.201900424
- (83) Dai, S.; Zhan, X. *Adv. Energy Mater.* **2018**, 8, 1800002. doi: 10.1002/aenm.201800002
- (84) Feng, S. Y.; Lu, H.; Liu, Z. K.; Liu, Y. H.; Li, C. H.; Bo, Z. S. *Acta Phys. -Chim. Sin.* **2019**, 35, 355. [冯诗语, 路皓, 刘泽坤, 刘亚辉, 李翠红, 薄志山. 物理化学学报, **2019**, 35, 355.] doi: 10.3866/PKU.WHXB201805161
- (85) Yang, F.; Li, C.; Lai, W.; Zhang, A.; Huang, H.; Li, W. *Mater. Chem. Front.* **2017**, 1, 1389. doi: 10.1039/c7qm00025a
- (86) Hou, J.; Ingnas, O.; Friend, R. H.; Gao, F. *Nat. Mater.* **2018**, 17, 119. doi: 10.1038/nmat5063
- (87) Li, Y.; Xu, Y. H.; Yang, F.; Jiang, X. D.; Li, C.; You, S. Y.; Li, W. W. *Chin. Chem. Lett.* **2019**, 30, 222. doi: 10.1016/j.cclet.2018.09.014
- (88) Han, G.; Hu, T.; Yi, Y. *Adv. Mater.* **2020**, 32, 2000975. doi: 10.1002/adma.202000975
- (89) Lu, B.; Chen, Z.; Jia, B.; Wang, J.; Ma, W.; Lian, J.; Zeng, P.; Qu, J.; Zhan, X. *ACS Appl. Mater. Interfaces* **2020**, 12, 14029. doi: 10.1021/acsaami.0c00733
- (90) Dai, S.; Li, T.; Wang, W.; Xiao, Y.; Lau, T. K.; Li, Z.; Liu, K.; Lu, X.; Zhan, X. *Adv. Mater.* **2018**, 30, 1706571. doi: 10.1002/adma.201706571
- (91) Liao, S. H.; Jhuo, H. J.; Cheng, Y. S.; Chen, S. A. *Adv. Mater.* **2013**, 25, 4766. doi: 10.1002/adma.201301476
- (92) Zhu, J.; Ke, Z.; Zhang, Q.; Wang, J.; Dai, S.; Wu, Y.; Xu, Y.; Lin, Y.; Ma, W.; You, W.; Zhan, X. *Adv. Mater.* **2018**, 30, 1704713. doi: 10.1002/adma.201704713
- (93) Zhu, J.; Xiao, Y.; Wang, J.; Liu, K.; Jiang, H.; Lin, Y.; Lu, X.; Zhan, X. *Chem. Mater.* **2018**, 30, 4150. doi: 10.1021/acs.chemmater.8b01677
- (94) Li, T.; Dai, S.; Ke, Z.; Yang, L.; Wang, J.; Yan, C.; Ma, W.; Zhan, X. *Adv. Mater.* **2018**, 30, 1705969. doi: 10.1002/adma.201705969
- (95) Shi, X. L.; Chen, J. D.; Gao, K.; Zuo, L. J.; Yao, Z. Y.; Liu, F.; Tang, J. X.; Jen, A. K. Y. *Adv. Energy Mater.* **2018**, 8, 1702831. doi: 10.1002/aenm.201702831
- (96) Li, Y.; Guo, X.; Peng, Z.; Qu, B.; Yan, H.; Ade, H.; Zhang, M.; Forrest, S. R. *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* **2020**, 117, 21147. doi: 10.1073/pnas.2007799117
- (97) Wang, J.; Zhang, J.; Xiao, Y.; Xiao, T.; Zhu, R.; Yan, C.; Fu, Y.; Lu, G.; Lu, X.; Marder, S. R.; Zhan, X. *J. Am. Chem. Soc.* **2018**, 140, 9140. doi: 10.1021/jacs.8b04027
- (98) Xiao, T.; Wang, J.; Yang, S.; Zhu, Y.; Li, D.; Wang, Z.; Feng, S.; Bu, L.; Zhan, X.; Lu, G. *J. Mater. Chem. A* **2020**, 8, 401. doi: 10.1039/C9TA11613C
- (99) Liu, F.; Zhou, Z.; Zhang, C.; Zhang, J.; Hu, Q.; Vergote, T.; Liu, F.; Russell, T. P.; Zhu, X. *Adv. Mater.* **2017**, 29, 1606574. doi: 10.1002/adma.201606574

- (100) Li, Y.; Lin, J. D.; Che, X.; Qu, Y.; Liu, F.; Liao, L. S.; Forrest, S. R. *J. Am. Chem. Soc.* **2017**, *139*, 17114. doi: 10.1021/jacs.7b11278
- (101) Wang, W.; Yan, C.; Lau, T. K.; Wang, J.; Liu, K.; Fan, Y.; Lu, X.; Zhan, X. *Adv. Mater.* **2017**, *29*, 1701308. doi: 10.1002/adma.201701308
- (102) Huang, H.; Li, X.; Zhong, L.; Qiu, B.; Yang, Y.; Zhang, Z. G.; Zhang, Z.; Li, Y. *J. Mater. Chem. A* **2018**, *6*, 4670. doi: 10.1039/c8ta00581h
- (103) Hu, Z.; Wang, Z.; Zhang, F. *J. Mater. Chem. A* **2019**, *7*, 7025. doi: 10.1039/c9ta00907h
- (104) Cui, Y.; Yang, C.; Yao, H.; Zhu, J.; Wang, Y.; Jia, G.; Gao, F.; Hou, J. *Adv. Mater.* **2017**, *29*, 1703080. doi: 10.1002/adma.201703080
- (105) Hu, Z.; Wang, J.; Wang, Z.; Gao, W.; An, Q.; Zhang, M.; Ma, X.; Wang, J.; Miao, J.; Yang, C.; Zhang, F. *Nano Energy* **2019**, *55*, 424. doi: 10.1016/j.nanoen.2018.11.010
- (106) Luo, M.; Zhao, C. Y.; Yuan, J.; Hai, J. F.; Cai, F. F.; Hu, Y. B.; Peng, H. J.; Bai, Y. M.; Tan, Z. A.; Zou, Y. P. *Mater. Chem. Front.* **2019**, *3*, 2483. doi: 10.1039/c9qm00499h
- (107) Hu, Z. H.; Wang, Z.; An, Q. S.; Zhang, F. *J. Sci. Bull.* **2020**, *65*, 131. doi: 10.1016/j.scib.2019.09.016
- (108) Li, X.; Meng, H.; Shen, F.; Su, D.; Huo, S.; Shan, J.; Huang, J.; Zhan, C. *Dyes Pigm.* **2019**, *166*, 196. doi: 10.1016/j.dyepig.2019.03.024
- (109) Xie, Y. P.; Cai, Y. H.; Zhu, L.; Xia, R. X.; Ye, L. L.; Feng, X.; Yip, H. L.; Liu, F.; Lu, G. H.; Tan, S. T.; Sun, Y. M. *Adv. Funct. Mater.* **2020**, *30*, 2002181. doi: 10.1002/adfm.202002181
- (110) Song, Y.; Zhang, K.; Dong, S.; Xia, R.; Huang, F.; Cao, Y. *ACS Appl. Mater. Interfaces* **2020**, *12*, 18473. doi: 10.1021/acsami.0c00396
- (111) Yao, H.; Cui, Y.; Yu, R.; Gao, B.; Zhang, H.; Hou, J. *Angew. Chem. Int. Ed.* **2017**, *56*, 3045. doi: 10.1002/anie.201610944
- (112) Ye, L.; Xie, Y.; Weng, K.; Ryu, H. S.; Li, C.; Cai, Y.; Fu, H.; Wei, D.; Woo, H. Y.; Tan, S.; Sun, Y. *Nano Energy* **2019**, *58*, 220. doi: 10.1016/j.nanoen.2019.01.039
- (113) Yuan, J.; Zhang, Y.; Zhou, L.; Zhang, G.; Yip, H. L.; Lau, T. K.; Lu, X.; Zhu, C.; Peng, H.; Johnson, P. A.; *et al.* *Joule* **2019**, *3*, 1140. doi: 10.1016/j.joule.2019.01.004
- (114) Liu, F.; Li, C.; Li, J. Y.; Wang, C.; Xiao, C. Y.; Wu, Y. G.; Li, W. W. *Chin. Chem. Lett.* **2020**, *31*, 865. doi: 10.1016/j.ccllet.2019.06.051
- (115) Zhang, M.; Xiao, Z.; Gao, W.; Liu, Q. S.; Jin, K. B.; Wang, W. B.; Mi, Y.; An, Q. S.; Ma, X. L.; Liu, X. F.; *et al.* *Adv. Energy Mater.* **2018**, *8*, 1801968. doi: 10.1002/aenm.201801968
- (116) Wang, D.; Qin, R.; Zhou, G.; Li, X.; Xia, R.; Li, Y.; Zhan, L.; Zhu, H.; Lu, X.; Yip, H. L.; *et al.* *Adv. Mater.* **2020**, *32*, 2001621. doi: 10.1002/adma.202001621
- (117) Shi, H.; Xia, R. X.; Zhang, G. C.; Yip, H. L.; Cao, Y. *Adv. Energy Mater.* **2019**, *9*, 1803438. doi: 10.1002/aenm.201803438
- (118) Cheng, P.; Wang, H. C.; Zhu, Y.; Zheng, R.; Li, T.; Chen, C. H.; Huang, T.; Zhao, Y.; Wang, R.; Meng, D.; *et al.* *Adv. Mater.* **2020**, *32*, 2003891. doi: 10.1002/adma.202003891
- (119) Chen, S. S.; Yao, H. T.; Hu, B.; Zhang, G. Y.; Arunagiri, L.; Ma, L. K.; Huang, J. C.; Zhang, J. Q.; Zhu, Z. L.; Bai, F. J.; *et al.* *Adv. Energy Mater.* **2018**, *8*, 1800529. doi: 10.1002/aenm.201800529
- (120) Zhang, J.; Li, Y.; Huang, J.; Hu, H.; Zhang, G.; Ma, T.; Chow, P. C. Y.; Ade, H.; Pan, D.; Yan, H. *J. Am. Chem. Soc.* **2017**, *139*, 16092. doi: 10.1021/jacs.7b09998
- (121) Yeom, H. R.; Song, S.; Park, S. Y.; Ryu, H. S.; Kim, J. W.; Heo, J.; Cho, H. W.; Walker, B.; Ko, S. J.; Woo, H. Y.; Kim, J. Y. *Nano Energy* **2020**, *77*, 105146. doi: 10.1016/j.nanoen.2020.105146
- (122) Bin, H.; Zhang, Z. G.; Gao, L.; Chen, S.; Zhong, L.; Xue, L.; Yang, C.; Li, Y. *J. Am. Chem. Soc.* **2016**, *138*, 4657. doi: 10.1021/jacs.6b01744
- (123) Qian, D.; Ye, L.; Zhang, M.; Liang, Y.; Li, L.; Huang, Y.; Guo, X.; Zhang, S.; Tan, Z. A.; Hou, J. *Macromolecules* **2012**, *45*, 9611. doi: 10.1021/ma301900h