

## 一种热活化延迟荧光黄光材料的合成、性能及高效率电致发光器件

王志强<sup>a</sup> 蔡佳林<sup>b</sup> 张明<sup>b</sup> 郑才俊<sup>\*b</sup> 吉保明<sup>\*a</sup>

(<sup>a</sup> 洛阳师范学院 化学化工学院 河南省功能导向多孔材料重点实验室 洛阳 471934)

(<sup>b</sup> 电子科技大学 光电科学与工程学院 成都 610054)

**摘要** 利用吩噁嗪和嘧啶分别作为电子给体和电子受体,通过Buchwald-Hartwig和Suzuki偶联反应成功合成了一种热活化延迟荧光黄光材料pPBPXZ。密度泛函理论计算显示,pPBPXZ分子中吩噁嗪和嘧啶结构单元间的二面角接近90°,而两个嘧啶结构单元与连接二者的苯环间的二面角接近0°;pPBPXZ的最高电子占据轨道主要分布在吩噁嗪结构单元上,最低电子未占轨道主要分布在嘧啶环和苯环上,两种分子轨道只有很小部分重叠。循环伏安、热重和差热测试表明,pPBPXZ具有高的电化学稳定性和热稳定性。在甲苯溶液中,pPBPXZ在360~495 nm显示出了明显的分子内电荷转移跃迁吸收,室温发光峰出现在535 nm。根据低温(77 K)荧光和磷光光谱,计算得到pPBPXZ的最低激发单重态和最低激发三重态能级分别为2.57 eV和2.48 eV,能级差( $\Delta E_{ST}$ )仅为0.09 eV。利用pPBPXZ作为发光层客体掺杂材料,制备出了高效率的黄光电致发光器件。器件的发射峰出现在552~560 nm,最大电流效率、功率效率和外量子效率分别达到了49.9 cd/A、49.0 lm/W和15.7%,而且发光效率受pPBPXZ掺杂浓度影响较小。

**关键词** 热活化延迟荧光; 有机电致发光器件; 黄光; 嘧啶; 吮噁嗪

## A Novel Yellow Thermally Activated Delayed Fluorescence Emitter For Highly Efficient Organic Light-Emitting Diodes

Wang, Zhiqiang<sup>a</sup> Cai, Jialin<sup>b</sup> Zhang, Ming<sup>b</sup> Zheng, Caijun<sup>\*b</sup> Ji, Baoming<sup>\*a</sup>

(<sup>a</sup> College of Chemistry and Chemical Engineering and Henan Key Laboratory of Function-Oriented Porous Materials, Luoyang Normal University, Luoyang 471934)

(<sup>b</sup> School of Optoelectronic Science and Engineering, University of Electronic Science and Technology of China (UESTC), Chengdu 610054)

**Abstract** A novel yellow thermally activated delayed fluorescence emitter pPBPXZ was successfully synthesized using phenoxazine as electron-donor and pyrimidine as electron-acceptor by Buchwald-Hartwig and Suzuki coupling reactions. Density functional theory calculations show that pPBPXZ has highly twisted structure with the dihedrals of nearly 90° between phenoxazine and pyrimidine units, while the dihedrals between benzene ring and adjacent pyrimidine rings are almost 0°. The highest occupied molecular orbital (HOMO) is mainly confined on two phenoxazine segments, the lowest unoccupied molecular orbital (LUMO) is mainly located on the central pyrimidine and benzene segments, and there is only a slight overlap between HOMO and LUMO. Cyclic voltammetry investigation shows pPBPXZ has reversible redox process, and the HOMO and LUMO energy levels were estimated to be -5.43 eV and -3.23 eV, respectively, from the onsets of oxidation and reduction curves. In diluted toluene solution, pPBPXZ exhibits the absorption band assigned to intramolecular charge-transfer transition and yellow fluorescence with a structureless emission peak at 535 nm. From the onsets of the fluorescence and phosphorescence spectra of pPBPXZ in 2Me-THF at 77 K, the lowest singlet ( $S_1$ ) and the lowest triplet ( $T_1$ ) energy levels are calculated to be 2.57 eV and 2.48 eV, respectively, and thus  $\Delta E_{ST}$  is only 0.09 eV. The doped electroluminescence devices using pPBPXZ as guest emitter were prepared by vacuum evaporation method. These devices with doping ratios ( $w$ ) of 6%, 11%, 16% and 23% show yellow emission at 552~560 nm and low turn-on voltages of 3.1~3.3 V. The device with a doping ratio of 11% exhibits the highest maximum forward-viewing efficiencies of a maximum current efficiency of 49.9 cd/A, a maximum power efficiency of 49.0 lm/W and a maximum external quantum efficiency of 15.7% without any light out-coupling enhancement. Particularly, the efficiencies of these devices are not sensitive to the doping ratios of pPBPXZ, which would benefit the further practical application.

**Keywords** thermally activated delayed fluorescence; organic light-emitting diodes; yellow emission; pyrimidine; phenoxazine

\* E-mail: zhengcaijun@uestc.edu.cn; lyhxxjbm@126.com

Received October 18, 2018; published December 20, 2018.

Supporting information for this article is available free of charge via the Internet at <http://sioc-journal.cn>.

Project supported by the National Natural Science Foundation of China (No. 51773029) and Henan Natural Science Foundation (No. 182300410230).

项目受国家自然科学基金(No. 51773029)和河南省自然科学基金(No. 182300410230)资助。

## 1 引言

有机电致发光器件(OLEDs)具有驱动电压低、响应速度快、视角宽、亮度高、色彩鲜艳、轻薄、柔性好等众多优点，作为下一代平板显示和固态照明技术受到了广泛关注<sup>[1~10]</sup>。荧光材料是最早在 OLEDs 中应用的发光材料，但荧光 OLEDs 只能利用电激发产生的单重态激子发光，基于该类发光材料的 OLEDs 最大理论内量子效率仅为 25%。铱、铂等磷光过渡金属配合物为第二代 OLEDs 发光材料。重金属离子能产生明显的自旋-轨道耦合，导致激发三重态和激发单重态混合，使激发三重态返回到基态的跃迁不再受自旋禁阻限制，从而产生室温磷光；因此，磷光 OLEDs 理论上能够将电激发产生的单重态和三重态激子全部转化为可见光，最大内量子效率为 100%<sup>[11~13]</sup>。然而，制备高发光效率磷光材料所需要的金属价格昂贵、资源有限、毒性较大，限制了过渡金属配合物磷光材料在 OLEDs 中的应用。

近年来，人们对可利用三重态激子的纯有机发光材料进行了探索，包括热活化延迟荧光(TADF)材料、三重态-三重态湮灭(TTA)材料以及局域电荷转移杂化激发态(HLCT)材料等<sup>[14~23]</sup>。其中，TADF 材料发展尤为迅速，已成为 OLEDs 领域的研究热点<sup>[24~31]</sup>。TADF 材料一般为给体-受体(D-A)型分子结构，材料的最高电子占据轨道(HOMO)和最低电子未占轨道(LUMO)分别位于电子给体和电子受体上，两种轨道重叠较少；这种结构使得 TADF 材料的最低激发单重态( $S_1$ )和最低激发三重态( $T_1$ )间能级差( $\Delta E_{ST}$ )较小(一般小于 0.3 eV)，材料从环境中吸收的热能可以将  $T_1$  激子经过反系间窜跃(RISC)过程转化为  $S_1$  激子，再通过辐射跃迁产生荧光<sup>[32~34]</sup>。因此，基于 TADF 材料的 OLEDs 也能够将电激发产生的单重态和三重态激子全部转化为可见光。

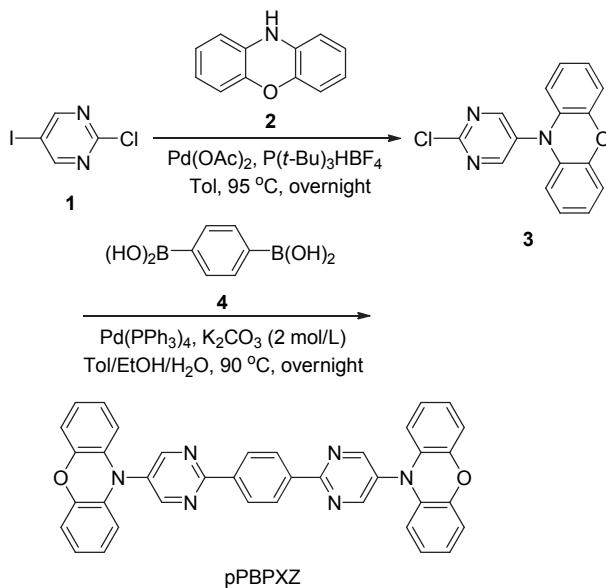
黄光材料不仅能扩大 OLEDs 的色域，使显示效果更自然、逼真，而且能联合蓝光材料制备白光 OLEDs，在固态照明领域具有重要应用价值<sup>[35~43]</sup>。本文以吩噁嗪和嘧啶分别作为电子给体和电子受体，设计、合成了一种黄光 TADF 材料 pPBPXZ。该材料的  $\Delta E_{ST}$  仅为 0.09 eV，发射光具有明显的 TADF 特征。利用 pPBPXZ 作为客体掺杂材料制备出了高效率的黄光 OLEDs ( $\lambda_{max}=552\sim560$  nm)，器件的最大电流效率(CE)、功率效率(PE)和外量子效率(EQE)分别达到了 49.9 cd/A、49.0 lm/W 和 15.7%，而且发光效率受 pPBPXZ 的掺杂浓度影响较小。

## 2 结果与讨论

### 2.1 合成与结构

目标化合物 pPBPXZ 的合成路线如图式 1 所示。以 2-氯-5-碘嘧啶(1)与吩噁嗪(2)作为起始原料，利用二者间的 Buchwald-Hartwig 偶联反应合成中间产物 3；化合

物 3 再与对苯二硼酸(4)发生 Suzuki 偶联反应，即得到 pPBPXZ。目标化合物 pPBPXZ 的结构通过  $^1\text{H}$  NMR、 $^{13}\text{C}$  NMR 以及质谱进行了表征。在测试物理性能和制备器件前，我们用升华法对 pPBPXZ 做了进一步纯化。



图式 1 化合物 pPBPXZ 的合成路线

Scheme 1 The synthetic route of pPBPXZ

利用 Gaussian09 程序和 B3LYP 方法，对 pPBPXZ 进行了密度泛函理论(DFT)和含时密度泛函理论(TD-DFT)计算，C、H、N、O 原子均用 6-31G\*基组。DFT 计算得到的 pPBPXZ 立体结构和前沿分子轨道如图 1 所示。pPBPXZ 中心的苯环与相邻的两个嘧啶环间的二面角接近 0°，三者构成一个  $\pi$  共轭体系；而吩噁嗪结构单元与嘧啶结构单元几乎互相垂直，之间的二面角为 89.9°。pPBPXZ 的 HOMO 主要分布在吩噁嗪结构单元上，LUMO 分别主要分布在嘧啶环和苯环上；通过 TD-DFT 计算得到 pPBPXZ 的  $S_1$  和  $T_1$  能级分别为 2.18 和 2.17 eV， $\Delta E_{ST}$  仅为 0.01 eV。相互分离的 HOMO、

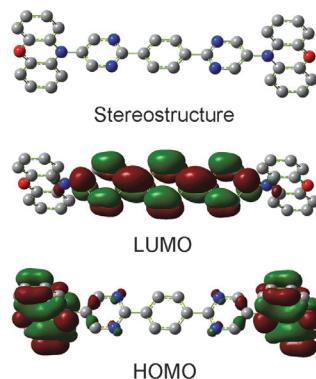


图 1 化合物 pPBPXZ 的立体结构和分子轨道

Figure 1 The stereoselectivity and molecular orbitals of pPBPXZ

LUMO 和非常小的  $\Delta E_{ST}$  意味着 pPBPXZ 可能是一种高效率的 TADF 材料.

## 2.2 电化学性能与热稳定性

循环伏安(CV)测试结果显示, pPBPXZ 的电化学氧化、还原过程均可逆(图 2), 说明该化合物具有良好的电化学稳定性. 根据起始氧化电位计算得到 pPBPXZ 的 HOMO 能级为 -5.43 eV; 结合 pPBPXZ 吸收光谱的边沿波长(543 nm)计算出 LUMO 能级为 -3.15 eV, 这一结果与根据还原电位计算得到的 LUMO 能级(-3.23 eV)基本相当; HOMO 与 LUMO 间的能级差(2.28 eV)对应于黄色发射光. 热重分析(TGA)表明, pPBPXZ 具有高的热稳定性, 在氮气环境下的热分解温度( $T_d$ , 失重 5%)达到了 451 °C (图 S1). 在 pPBPXZ 的差示扫描量热(DSC)测试中, 没有观察到玻璃化转变现象, 说明该化合物具有良好的形貌稳定性. 高的电化学稳定性和热稳定性有助于提高电致发光器件的操作稳定性和寿命.

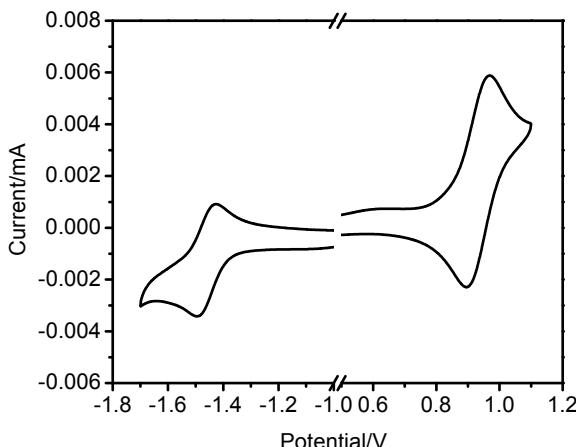


图 2 化合物 pPBPXZ 的 CV 曲线

Figure 2 The CV curve of pPBPXZ

## 2.3 光物理性能

化合物 pPBPXZ 在甲苯溶液中、室温条件下的紫外-可见吸收光谱和发射光谱如图 3 所示. 在吸收光谱中, 波长小于 360 nm 的高强度吸收带( $\lambda_{max}=320$  nm)为  $\pi-\pi^*$  跃迁吸收;  $\lambda_{max}=419$  nm 的吸收带可归属为从电子给体吩噁嗪到电子受体嘧啶的分子内电荷转移(ICT)跃迁. pPBPXZ 在甲苯溶液中发射黄色光, 发光峰出现在 535 nm. 根据 77 K 温度下荧光和磷光光谱的起始波长(图 S2), 计算得到 pPBPXZ 的  $S_1$  和  $T_1$  能级分别为 2.57 eV 和 2.48 eV, 可见 pPBPXZ 的  $\Delta E_{ST}$  仅为 0.09 eV, 如此小的能级差意味着该化合物的室温发射光中含有 TADF 组分. 氧气猝灭实验显示, 溶剂中的氧能大幅度降低 pPBPXZ 的发光强度(图 S3), 这说明激发三重态对 pPBPXZ 的发射光有较大贡献. 为了证实 TADF 的存在, 我们将 pPBPXZ 以 11% 质量浓度( $w$ )掺杂在 4,4'-二(9-咔唑)联苯(CBP)薄膜中, 测试了其在氮气环境中的瞬态荧光衰减. 结果显示, pPBPXZ 的室温发射光中含有纳秒

级(9.24 ns)和微秒级(21.62  $\mu$ s)两种寿命的发光组分; 其中, 短寿命组分对应于瞬时荧光, 而长寿命组分即为来源于三重态激子的延迟荧光. 随测试温度的升高, pPBPXZ 的延迟荧光组分明显增强(图 4), 这证实了 pPBPXZ 的延迟荧光为 TADF, 而不是 TTA. 表 1 中为 pPBPXZ 的各项光物理性能数据.

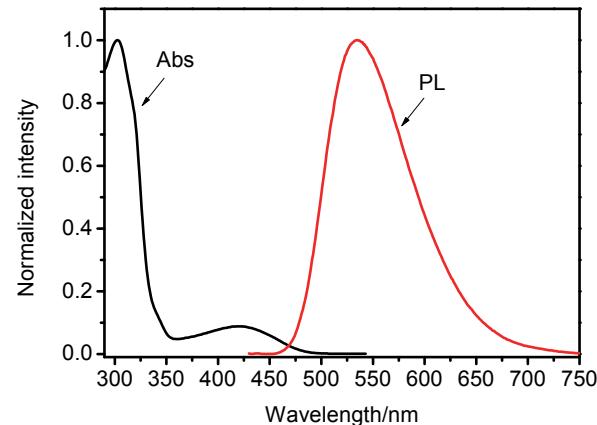


图 3 化合物 pPBPXZ 在甲苯溶液中的紫外吸收与光致发光光谱

Figure 3 The absorption and photoluminescence (PL) spectra of pPBPXZ in toluene solution

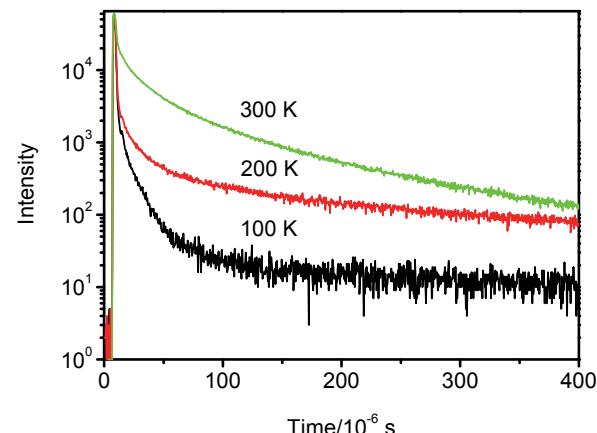


图 4 化合物 pPBPXZ 在 CBP 薄膜中不同温度下的荧光衰减曲线(激发波长为 300 nm, 测试波长为 535 nm)

Figure 4 The temperature-dependent transient PL decay curves of pPBPXZ in CBP film (Excitation wavelength was 300 nm and measurement wavelength was 535 nm)

表 1 pPBPXZ 的光物理性能数据

Table 1 The photophysical data of pPBPXZ

$\lambda_{Abs}/$ nm	$\lambda_{PL}/$ nm	$S_1/$ eV	$T_1/$ eV	$\Delta E_{ST}/$ eV	HOMO/ eV	LUMO/ eV	$\tau_p^a/$ ns	$\tau_d^b/$ $\mu$ s
419	535	2.57	2.48	0.09	-5.43	-3.15	9.24	21.62

<sup>a</sup>Lifetime of prompt fluorescence; <sup>b</sup>Lifetime of delayed fluorescence.

## 2.4 电致发光性能

利用 pPBPXZ 作为发光层客体掺杂材料, 制备了结构为 ITO/TAPC (35 nm)/TCTA (10 nm)/CBP:pPBPXZ (20 nm)/TmPyPb (40 nm)/LiF (1 nm)/Al 的四种电致发光器

件。ITO(氧化铟锡)和 LiF/Al 分别为阳极和阴极; TAPC、TCTA、TmPyPb 和 CBP 分别用作空穴传输层、电子阻挡层、电子传输层和发光层主体材料, 材料结构如图 5 所示。在器件 I、II、III、IV 中, pPBPXZ 的质量掺杂浓度( $w$ )分别为 6%、11%、16%、23%。

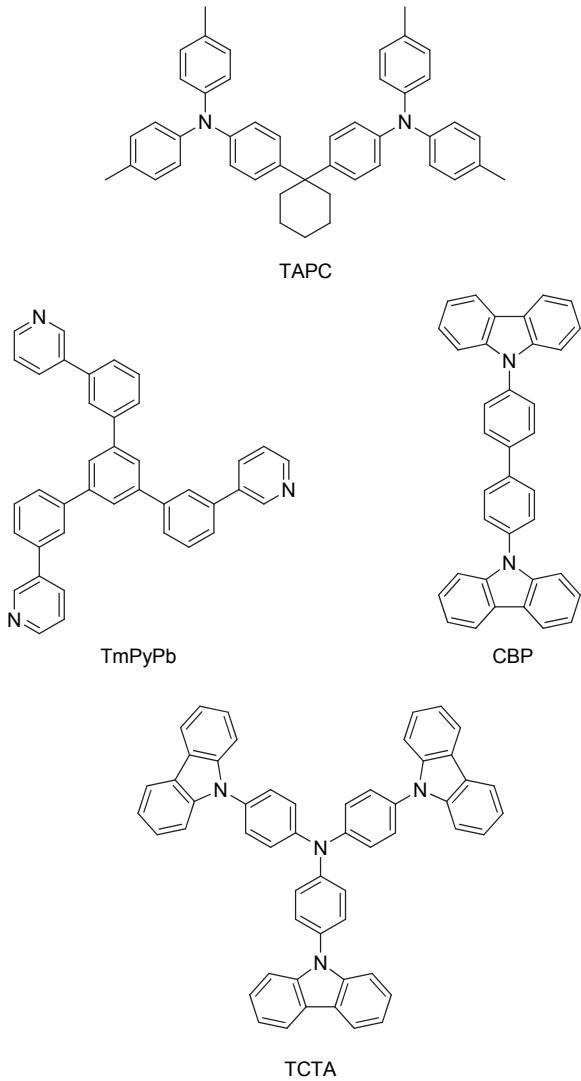


图 5 TAPC、TCTA、TmPyPb 和 CBP 的分子结构  
Figure 5 The molecular structures of TAPC, TCTA, TmPyPb and CBP

表 2 列出了以 pPBPXZ 作为发光层客体材料的四种电致发光(EL)器件的主要性能数据。如图 6 所示, 将 pPBPXZ 掺杂浓度从 6% 提高至 23%, 电致发光光谱仅发生了轻微的红移, 器件 I、II、III、IV 的发射峰分别位于 552 nm、552 nm、556 nm 和 560 nm, 该红移应是由 pPBPXZ 分子间的相互作用引起的。四种器件都具有较低的开启电压( $V_{on} = 3.1 \sim 3.3$  V), 且开启电压随 pPBPXZ 掺杂浓度的增加而降低(图 7)。制备的四种器件均表现出了高发光效率, pPBPXZ 掺杂浓度为 11% 时, 器件 EL 效率最高, 最大电流效率(CE)、最大功率效率

(PE)和最大外量子效率(EQE)分别达到了 49.9 cd/A、49.0 lm/W 和 15.7%。而且, 器件发光效率对 pPBPXZ 掺杂浓度不敏感, 尤其是在 6%~16% 浓度范围内, 效率受 pPBPXZ 掺杂浓度影响很小(图 8), 这对材料的实际应用非常有利。

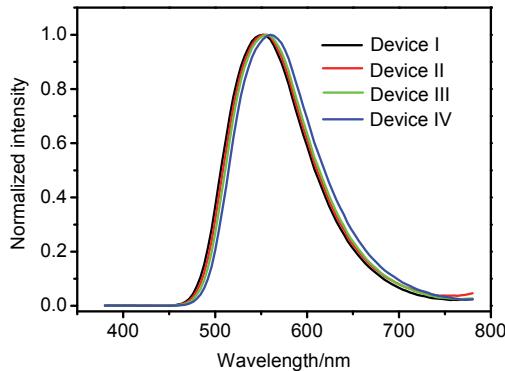


图 6 器件 I、II、III 和 IV 的电致发光光谱

Figure 6 The electroluminescence spectra of devices I, II, III and IV

表 2 器件 I、II、III 和 IV 的电致发光性能数据  
Table 2 The EL performance data of devices I, II, III and IV

Device	$V_{on}^a$ /V	$\lambda_{EL}$ /nm	$CIE_{x,y}$	$CE_{max}/(cd \cdot A^{-1})$	$PE_{max}/(lm \cdot W^{-1})$	$EQE_{max}/\%$
I	3.3	552	(0.40, 0.56)	49.6	47.4	15.5
II	3.2	552	(0.41, 0.56)	49.9	49.0	15.7
III	3.2	556	(0.42, 0.55)	46.2	44.6	15.1
IV	3.1	560	(0.44, 0.54)	43.1	42.3	14.1

<sup>a</sup> Turn-on voltage measured at the luminance of 1 cd/m<sup>2</sup>.

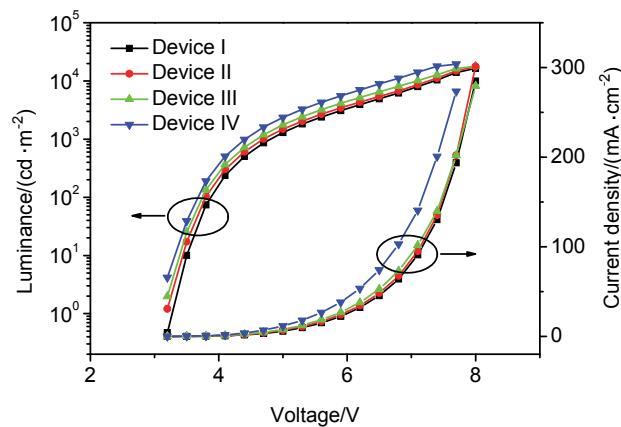


图 7 器件 I、II、III 和 IV 的电流密度-电压-亮度曲线

Figure 7 The current density-voltage-luminance characteristics of devices I, II, III and IV

### 3 结论

利用吩噁嗪和嘧啶分别作为电子给体和电子受体, 成功合成了一种新的黄光 TADF 材料 pPBPXZ, 该化合

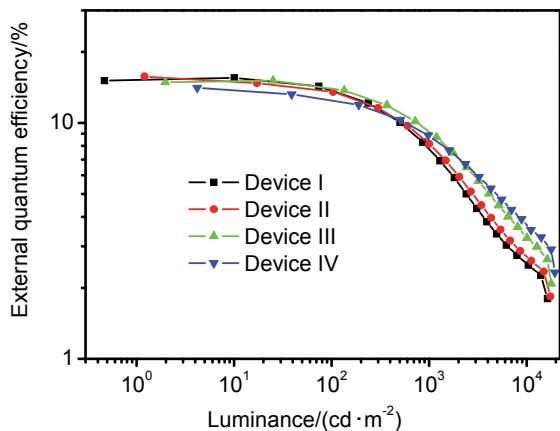


图8 器件I、II、III和IV的外量子效率-亮度曲线

Figure 8 The external quantum efficiency-luminance characteristics of devices I, II, III and IV

物具有高的热稳定性和电化学稳定性。理论计算显示, pPBPXZ 的 HOMO 主要分布在吩噁嗪结构单元上, 而 LUMO 主要分布在嘧啶环和苯环上, 两种分子轨道仅有很小部分重叠。由于 pPBPXZ 实现了 HOMO 与 LUMO 的互相分离, 其  $\Delta E_{ST}$  仅为 0.09 eV, 充分满足了 TADF 材料的要求。室温条件下, pPBPXZ 在甲苯溶液中显示出了明显的 ICT 吸收和黄色荧光( $\lambda_{max}=535$  nm)。瞬态荧光衰减测试结果证实了 pPBPXZ 的室温发射光中包含瞬时荧光和延迟荧光两种组分。以 pPBPXZ 作为发光层客体掺杂材料, 制备出了高效率的黄光电致发光器件。器件最大电流效率、功率效率和外量子效率分别达到了 49.9 cd/A、49.0 lm/W 和 15.7%, 而且器件发光效率受 pPBPXZ 掺杂浓度影响较小, 说明该材料具有较高的实际应用价值。

## 4 实验部分

### 4.1 材料的合成

#### 4.1.1 化合物 3 的合成

将 1.45 g (6 mmol) 2-氯-5-碘嘧啶、734 mg (4 mmol) 吩噁嗪、768 mg (8 mmol) 叔丁醇钠、44 mg (0.2 mmol) 醋酸钯、174 mg (0.6 mmol) 三叔丁基膦四氟硼酸盐和 30 mL 甲苯依次加入 50 mL 烧瓶中, 氮气保护条件下 95 ℃ 回流反应 12 h。待反应液冷却至室温, 用硅藻土过滤, 滤液用旋转蒸发仪蒸干, 固体残留物用柱层析法提纯, 淋洗液为二氯甲烷和石油醚混合溶液[V(二氯甲烷): V(石油醚)=1:3], 得到黄色粉末状产品 652 mg, 产率为 55%。<sup>1</sup>H NMR (600 MHz, CDCl<sub>3</sub>)  $\delta$ : 8.72 (s, 2H), 6.78 (d,  $J=4.2$  Hz, 4H), 6.71~6.67 (m, 2H), 5.94 (d,  $J=7.8$  Hz, 2H); <sup>13</sup>C NMR (150 MHz, CDCl<sub>3</sub>)  $\delta$ : 162.80, 160.16, 144.01, 133.73, 132.69, 123.51, 123.01, 116.32, 113.06. MS (EI)  $m/z$ : calcd for C<sub>16</sub>H<sub>10</sub>ClN<sub>3</sub>O 295.05; found 295.27. Anal. calcd for C<sub>16</sub>H<sub>10</sub>ClN<sub>3</sub>O: C 64.98, H 3.41, N 14.21;

found C 64.87, H 3.40, N 14.25.

#### 4.1.2 pPBPXZ 的合成

将 426 mg (1.44 mmol) 化合物 3、120 mg (0.72 mmol) 对苯二硼酸、116 mg (0.1 mmol) 四(三苯基膦)钯、10 mL 甲苯、5 mL 无水乙醇和 2 mL 浓度为 2 mol·L<sup>-1</sup> 的 K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> 水溶液依次加入 50 mL 烧瓶中, 氮气保护条件下 90 ℃ 回流反应 12 h。待反应液冷却至室温, 用二氯甲烷萃取, 萃取液用无水 MgSO<sub>4</sub> 干燥, 然后用旋转蒸发仪蒸干, 固体残留物用柱层析法提纯, 淋洗液为二氯甲烷和石油醚混合溶液[V(二氯甲烷): V(石油醚)=1:3], 得到橙色粉末状产品 174 mg, 产率为 41%。<sup>1</sup>H NMR (600 MHz, CDCl<sub>3</sub>)  $\delta$ : 8.91 (s, 4H), 8.70 (s, 4H), 6.80~6.74 (m, 8H), 6.68 (ddd,  $J=7.9, 7.0, 1.9$  Hz, 4H), 6.05 (dd,  $J=8.0, 1.3$  Hz, 4H); <sup>13</sup>C NMR (150 MHz, CDCl<sub>3</sub>)  $\delta$ : 163.24, 160.39, 145.63, 144.02, 139.04, 133.23, 132.63, 128.88, 123.48, 122.58, 116.12, 113.08. MS (EI)  $m/z$ : calcd for C<sub>38</sub>H<sub>24</sub>N<sub>6</sub>O<sub>2</sub> 596.20, found 596.45. Anal. calcd for C<sub>38</sub>H<sub>24</sub>N<sub>6</sub>O<sub>2</sub>: C 76.50, H 4.05, N 14.09; found C 76.41, H 4.03, N 14.04.

## 4.2 电致发光器件的制备与性能测试

将 ITO 玻璃基片 (15 Ω) 依次用无水乙醇、丙酮和去离子水超声清洗 5 min, 然后 120 ℃ 烘干, 最后用紫外臭氧清洗仪处理 10 min。真空条件下 ( $5 \times 10^{-4}$  Pa), 首先在清洗过的基片上蒸镀各有机层, 蒸镀速率为 1~2 Å/s; 然后, 蒸镀 LiF 和 Al 电极层, 蒸镀速率为 1 Å/s 和 10 Å/s。电致发光光谱、亮度和 CIE 用 PR650 光谱光度计测定, 电流密度和电压用 Keithley 2400 半导体特性测试仪测定。器件性能测试均由计算机控制, 在室温、常压和空气环境中进行。

试剂、仪器、计算软件以及化合物核磁谱图见支持信息(Supporting information)。

## References

- [1] Sun, Y. R.; Giebink, N. C.; Kanno, H.; Ma, B. W.; Thompson, M. E.; Forrest, S. R. *Nature* **2006**, *440*, 908.
- [2] Reineke, S.; Lindner, F.; Schwartz, G.; Seidler, N.; Walzer, K.; Lussem, B.; Leo, K. *Nature* **2009**, *459*, 234.
- [3] Helander, M. G.; Wang, Z. B.; Qiu, J.; Greiner, M. T.; Puzzo, D. P.; Liu, Z. W. *Science* **2011**, *332*, 944.
- [4] Han, T.-H.; Lee, Y.; Choi, M.-R.; Woo, S.-H.; Hong, B. H.; Ahn, J.-H.; Lee, T.-W. *Nat. Photonics* **2012**, *459*, 105.
- [5] Sasabe, H.; Kido, J. *J. Mater. Chem. C* **2013**, *1*, 1699.
- [6] Zhang, Z.; Li, W.; Ye, K.; Zhang, H. *Acta Chim. Sinica* **2016**, *74*, 179 (in Chinese). (张振宇, 李婉君, 叶开其, 张红雨, 化学学报, **2016**, *74*, 179.)
- [7] Yu, Y.; Yang, J.; Ren, Z.; Xie, G.; Li, Q.; Li, Z. *Acta Chim. Sinica* **2016**, *74*, 865.
- [8] Wang, F.; Cao, X.; Mei, L.; Zhang, X.; Hu, J.; Tao, Y. *Chinese J. Chem.* **2018**, *36*, 241.
- [9] Liang, X.; Wang, Z.; Wang, L.; Hanif, M.; Hu, D.; Su, S.; Xie, Z.; Gao, Y.; Yang, B.; Ma, Y. *Chinese J. Chem.* **2017**, *35*, 1559.
- [10] Lin, D.; Song, S.; Chen, Z.; Guo, P.; Chen, J.; Shi, H.; Mai, Y.; Song, H. *Chinese J. Org. Chem.* **2018**, *38*, 103 (in Chinese). (林丹燕, 宋森川, 陈智勇, 郭鹏然, 陈江韩, 史华红, 麦裕良, 宋化灿, 有机化学, **2018**, *38*, 103.)
- [11] Xu, H.; Chen, R.; Sun, Q.; Huang, W.; Liu, X. *Chem. Soc. Rev.* **2014**, *43*, 3259.
- [12] Volz, D.; Wallesch, M.; Fléchon, C.; Danz, M.; Verma, A.; Navarro,

- J. M.; Zink, D. M.; Bräse, S.; Baumann, T. *Green Chem.* **2015**, *17*, 1988.
- [13] Chi, Y.; Tong, B.; Chou, P.-T. *Coord. Chem. Rev.* **2014**, *281*, 1.
- [14] Uoyama, H.; Goushi, K.; Shizu, K.; Nomura, H.; Adachi, C. *Nature* **2012**, *492*, 234.
- [15] Tao, Y.; Yuan, K.; Chen, T.; Xu, P.; Li, H.; Chen, R.; Zheng, C.; Zhang, L.; Huang, W. *Adv. Mater.* **2014**, *26*, 7931.
- [16] Kim, M.; Jeon, S. K.; Hwang, S. H.; Lee, S. S.; Yu, E.; Lee, J. Y. *Chem. Commun.* **2016**, *52*, 339.
- [17] Lee, J.; Aizawa, N.; Yasuda, T. *Chem. Mater.* **2017**, *29*, 8012.
- [18] Tamai, Y.; Ohkita, H.; Benten, H.; Ito, S.; Lee, J.-H.; Kido, J.; Park, J. *J. Mater. Chem. C* **2013**, *1*, 432.
- [19] Chen, W.-C.; Lee, C.-S.; Tong, Q.-X. *J. Mater. Chem. C* **2015**, *3*, 10957.
- [20] Chen, Y.-H.; Lin, C.-C.; Huang, M.-J.; Hung, K.; Wu, Y.-C.; Lin, W.-C.; Chen-Cheng, R.-W.; Lin, H.-W.; Cheng, C.-H. *Chem. Sci.* **2016**, *7*, 4044.
- [21] Pan, Y.; Li, W.; Zhang, S.; Yao, L.; Gu, C.; Xu, H.; Yang, B.; Ma, Y. *Adv. Opt. Mater.* **2014**, *2*, 510.
- [22] Konidena, R. K.; Thomas, K. R. J.; Dubey, D. K.; Sahoo, S.; Jou, J.-H. *Chem. Commun.* **2017**, *53*, 11802.
- [23] Chen, W.-C.; Yuan, Y.; Ni, S.-F.; Tong, Q.-X.; Wong, F.-L.; Lee, C.-S. *Chem. Sci.* **2017**, *8*, 3599.
- [24] Wang, Z.; Li, Y.; Cai, X.; Chen, D.; Xie, G.; Liu, K.; Wu, Y.; Lo, C.-C.; Lien, A.; Cao, Y.; Su, S.-J. *ACS Appl. Mater. Interfaces* **2016**, *8*, 8627.
- [25] Chen, D.-Y.; Liu, W.; Zheng, C.-J.; Wang, K.; Li, F.; Tao, S.-L.; Ou, X.-M.; Zhang, X.-H. *ACS Appl. Mater. Interfaces* **2016**, *8*, 16791.
- [26] Lee, D. R.; Choi, J. M.; Lee, C. W.; Lee, J. Y. *ACS Appl. Mater. Interfaces* **2016**, *8*, 23190.
- [27] Cai, X.; Li, X.; Xie, G.; He, Z.; Gao, K.; Liu, K.; Chen, D.; Cao, Y.; Su, S.-J. *Chem. Sci.* **2016**, *7*, 4264.
- [28] Li, F.; Xie, G.; Gong, S.; Wu, K.; Yang, C. *Chem. Sci.* **2016**, *7*, 5441.
- [29] Rajamalli, P.; Senthilkumar, N.; Gandeepan, P.; Huang, P.-Y.; Huang, M.-J.; Yang, C.-Y.; Chiu, M.-J.; Chu, L.-K.; Lin, H.-W.; Cheng, C.-H. *J. Am. Chem. Soc.* **2016**, *138*, 628.
- [30] Liu, X.; Zhan, C.; Zheng, C.; Liu, C.; Lee, C.; Li, F.; Ou, X.; Zhang, X. *Adv. Mater.* **2015**, *27*, 2378.
- [31] Wang, K.; Zheng, C. J.; Liu, W.; Liang, K.; Shi, Y. Z.; Tao, S. L.; Lee, C. S.; Ou, X. M.; Zhang, X. H. *Adv. Mater.* **2017**, *29*, 1701476.
- [32] Yang, Z.; Mao, Z.; Xie, Z.; Zhang, Y.; Liu, S.; Zhao, J.; Xu, J.; Chi, Z.; Aldred, M. P. *Soc. Rev.* **2017**, *46*, 915.
- [33] Liu, Y.; Li, C.; Ren, Z.; Yan, S.; Bryce, M. R. *Nat. Rev. Mater.* **2018**, *3*, 18020.
- [34] Wong, M. Y.; Zysman-Colman, E. *Adv. Mater.* **2017**, *29*, 1605444.
- [35] Xiang, Y.; Gong, S.; Zhao, Y.; Yin, X.; Luo, J.; Wu, K.; Lu, Z.; Yang, C. *J. Mater. Chem. C* **2016**, *4*, 9998.
- [36] Xie, G.; Li, X.; Chen, D.; Wang, Z.; Cai, X.; Chen, D.; Li, Y.; Liu, K.; Cao, Y.; Su, S. J. *Adv. Mater.* **2016**, *28*, 181.
- [37] Chen, J.-X.; Wang, K.; Zheng, C.-J.; Zhang, M.; Shi, Y.-Z.; Tao, S.-L.; Lin, H.; Liu, W.; Tao, W.-W.; Ou, X.-M.; Zhang, X.-H. *Adv. Sci.* **2018**, *5*, 1800436.
- [38] Chen, X.; Yang, Z.; Xie, Z.; Zhao, J.; Yang, Z.; Aldred, M. P.; Chi, Z. *Mater. Chem. Front.* **2018**, *2*, 1017.
- [39] Chen, Y.; Li, S.; Hu, T.; Wei, X.; Li, Z.; Liu, W.; Liu, J.; Wang, R.; Yi, Y.; Zhao, C.; Wang, Y.; Wang, P. *J. Mater. Chem. C* **2018**, *6*, 2951.
- [40] Xiang, Y.; Zhu, Z.-L.; Xie, D.; Gong, S.; Wu, K.; Xie, G.; Lee, C.-S.; Yang, C. *J. Mater. Chem. C* **2018**, *6*, 7111.
- [41] Huang, J.; Nie, H.; Zeng, J.; Zhuang, Z.; Gan, S.; Cai, Y.; Guo, J.; Su, S.-J. *Angew. Chem. Int. Ed.* **2017**, *56*, 12971.
- [42] Li, J.; Ding, D. X.; Tao, Y. T.; Wei, Y. Y.; Chen, R. F.; Xie, L. H.; Haung, W.; Xu, H. *Adv. Mater.* **2016**, *28*, 3122.
- [43] Pan, K.-C.; Li, S.-W.; Ho, Y.-Y.; Shiu, Y.-J.; Tsai, W.-L.; Jiao, M.; Lee, W.-K.; Wu, C.-C.; Chung, C.-L.; Chatterjee, T.; Li, Y.-S.; Wong, K.-T.; Hu, H.-C.; Chen, C.-C.; Lee, M.-T. *Adv. Funct. Mater.* **2016**, *26*, 7560.

(Cheng, B.; Fan, Y.)