

酸碱和客体可调控的延迟 荧光及其逻辑门应用

宋奎柱¹, 龙宇杰^{1,2}, 王亚茹¹, 王嘉麒^{1,2}, 吕海燕¹, 陈传峰^{1,2}

(1. 中国科学院大学, 北京 100049;

2. 中国科学院化学研究所分子识别与功能重点实验室, 北京分子科学国家实验室, 北京 100190)

摘要 报道了一种通过主-客体作用与酸碱刺激调控空间电荷转移(TSCT)路径的延迟荧光体系. 在大环分子C[3]A-1中, 空腔内3-氰基吡啶受体与大环给体之间形成分子内TSCT通道, 产生绿色热激活延迟荧光(TADF)发射. 引入客体2-氰基吡嗪(2-CP)后, 主-客体组装诱导受体构象发生变化, 使分子内TSCT路径关闭, 并在客体与大环侧壁之间构建新的分子间TSCT通道, 体系呈现黄色TADF发射, 实现延迟荧光的可逆切换. 此外, 受体氮位点的质子化/去质子化赋予了体系酸碱响应性, 可实现发光的可逆开关. 基于多重刺激响应特性, 构建了多级分子逻辑门, 为可调控延迟荧光材料的设计提供了新思路.

关键词 主客体作用; 空间电荷转移; 刺激响应性; 热激活延迟荧光; 杯[3]二氢吡啶

中图分类号 O647

文献标志码 A

doi: 10.7503/cjcu20250382

Acid/Base and Guest Controlled Delayed Fluorescence and Its Application in Logic Gate

SONG Kuizhu¹, LONG Yujie^{1,2}, WANG Yaru¹, WANG Jiaqi^{1,2},

LYU Haiyan^{1*}, CHEN Chuanfeng^{1,2*}

(1. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049;

2. Beijing National Laboratory for Molecular Sciences, CAS Key Laboratory of Molecular Recognition and Function, Institute of Chemistry, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190)

Abstract A delayed fluorescence system regulating the space charge transfer (TSCT) pathway *via* host-guest interactions and acid-base stimulation is proposed. Within the macrocyclic molecule C[3]A-1, an intramolecular TSCT pathway forms between the 3-cyanopyridine acceptor in the cavity and the macrocyclic donor, generating green thermally activated delayed fluorescence (TADF) emission. Upon introduction of the guest 2-cyanopyrazine (2-CP), host-guest assembly induces a conformational change in the receptor, shutting down the intramolecular TSCT pathway. Simultaneously, a new intermolecular TSCT pathway is established between the guest and the macrocycle sidewall, leading to yellow TADF emission and enabling reversible switching of delayed fluorescence. Furthermore, protonation/deprotonation at the receptor's nitrogen site confers acid-base responsiveness, enabling reversible switching of luminescence. Leveraging these multi-stimulus-responsive properties, a multi-level molecular logic gate was successfully constructed, offering novel insights for designing tunable delayed-fluorescence materials.

收稿日期: 2025-12-16. 网络首发日期: 2026-03-10.

联系人简介: 陈传峰, 男, 博士, 研究员, 主要从事新型大环主体超分子化学及有机发光材料与器件等方面的研究.

E-mail: cchen@iccas.ac.cn

吕海燕, 女, 博士, 教授, 主要从事有机功能分子材料的合成及其应用方面的研究. E-mail: haiyanlu@ucas.ac.cn

基金项目: 国家自然科学基金(批准号: 22371277, 22031010, 22171272)和中国科学院战略性前沿专项(批准号: XDB0520302)资助.

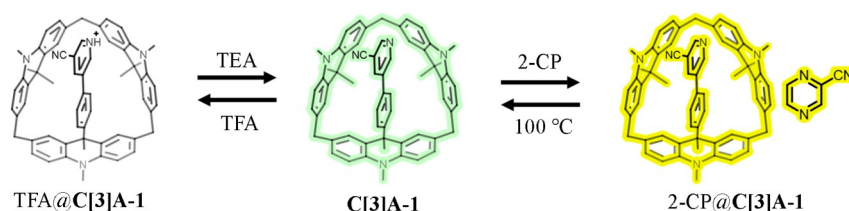
Supported by the National Natural Science Foundation of China(Nos. 22371277, 22031010, 22171272) and the Strategic Priority Research Program of the Chinese Academy of Sciences, China(No.XDB0520302).

Keywords Host-guest interaction; Space charge transfer(TSCT); Stimulus response; Thermally activated delayed fluorescence(TADF); Calix[3]acridans

超分子化学能够利用动态、可逆的非共价相互作用精准地构筑和调控功能组装体^[1-5]. 在此背景下, 超分子发光材料(SLMs)因具有性能可调、刺激响应及制备简便等优势, 已成为新一代的功能性发光材料^[6-12]. 其中, 基于大环主体的SLMs展现出非凡的潜力^[13-16]; 其固有的疏水空腔不仅能选择性识别与限域客体^[17-21], 更能通过独特的空腔效应预组织客体分子^[22-26], 精确控制给体与受体的空间取向与电子耦合, 从而为设计高性能与智能响应的发光体系提供新思路.

在众多发光机制中, 基于电荷转移(CT)的发光, 尤其是具有热活化延迟荧光(TADF)性质的体系, 因其高效利用三线态激子而备受关注^[27]. 传统CT体系的构建要么依赖于复杂的分子内扭曲D-A结构合成, 要么借助物理混合, 但后者往往面临分子间作用力弱、组装有序性差、CT态难以精确调控等问题^[28-30]. 如何实现对CT态的精准可逆的调控, 仍是一个巨大的挑战. 而大环主体的空腔限域作用^[31-33], 为这一挑战提供了新的解决思路: 通过主客体相互作用, 可直接在空间上调控给体与受体的相对位置与电荷转移, 从而调控CT激发态的产生与转换^[34-38].

本文围绕空间电荷转移(TSCT)路径的可调控性, 构建了一种可切换的延迟荧光体系. 在杯[3]吡啶大环衍生物C[3]A-1中, 空腔内3-氰基吡啶受体在构象限制下与大环供体形成分子内TSCT通道, 使体系表现出绿色热激活延迟荧光(TADF)特征. 当引入客体分子2-氰基吡啶(2-CP)时, C[3]A-1与其形成主客体基态复合物2-CP@C[3]A-1. 主-客体基态组装改变了空腔内受体的空间取向与电子耦合方式, 导致原有分子内TSCT路径被关闭, 绿色发射随之猝灭. 同时, 2-CP与大环侧壁供体之间形成新的分子间TSCT通道, 激发态电荷转移模式由分子内向分子间转变, 从而产生黄色TADF发射, 实现了延迟荧光发射波长的切换(Scheme 1). 此外, 体系中受体氮位点的质子化/去质子化过程可进一步调节延迟荧光强度, 使C[3]A-1和2-CP@C[3]A-1在三氟乙酸(TFA)/三乙胺(TEA)刺激下呈现可逆的发光开关行为(Scheme 1). 作为结构对照, 类似物C[3]A-2表现出稳定的黄色TADF发射, 但不具有酸碱响应性. 基于上述刺激响应特性, 进一步构建了一种多刺激响应的分子逻辑门体系, 为动态智能发光材料提供了新策略.



Scheme 1 Schematic diagram of the reversible responses of C[3]A-1 to guest 2-CP and acid/base

1 实验部分

1.1 试剂与仪器

六水合氯化铁($\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$)、3,4-二氰基苯硼酸频哪醇酯、四(三苯基膦)钯($\text{Pd}(\text{PPh}_3)_4$)和碳酸钾(K_2CO_3), 上海皓鸿生物医药科技有限公司. 甲苯、无水乙醇和二氯甲烷, 天津康科德科技有限公司. 所用试剂均为分析纯, 实验用水为去离子水.

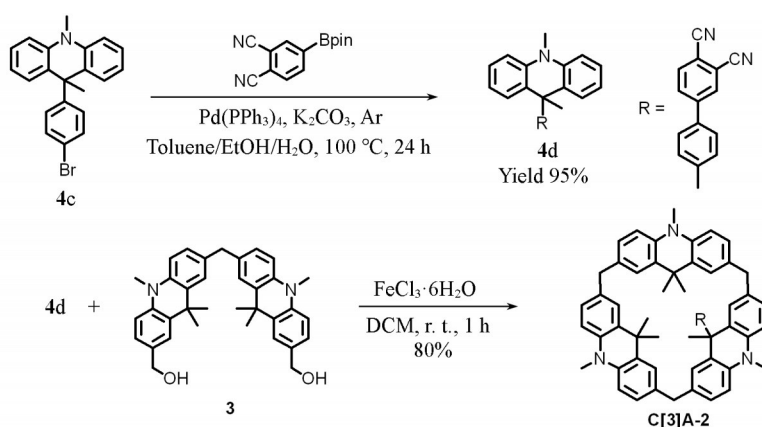
Avance III 500 MHz 型核磁共振波谱仪(NMR)和Bruker Smart APEXII 型 CCD 衍射仪(Single-crystal X-ray), 瑞士Bruker公司; ThermoFisher® Exactive 高分辨液相色谱-质谱联用仪(APCI-MS), 美国赛默飞世尔科技公司; SmartLab 型 X 射线衍射仪(XRD), 日本株式会社理学公司.

1.2 实验过程

参照文献^[39]方法合成化合物4c、化合物3和化合物C[3]A-1.

1.2.1 C[3]A-2 的合成 在 50 mL 封管中加入化合物4c(360 mg, 988 μmol)、3,4-二氰基苯硼酸频哪醇

酯(188 mg, 1.48 mmol)、Pd(PPh₃)₄(23 mg, 200 μmol)和K₂CO₃(560 mg, 4 mmol), 再加入8.5 mL甲苯、1.5 mL乙醇和1.5 mL水的混合溶剂, 在氩气气氛下于100 °C搅拌反应48 h. 待反应体系冷却至室温后, 将混合物倒入10 mL水中, 用二氯甲烷萃取(15 mL×3). 合并有机相, 用无水硫酸钠干燥, 减压浓缩后得到粗产物. 粗产物经柱层析[V(乙酸乙酯):V(石油醚)=1:5]纯化, 得到化合物4d(406 mg, 白色固体), 收率95%. 随后, 将化合物3(200 mg, 385 μmol)、4d(158 mg, 385 μmol)及FeCl₃·6H₂O(21 mg, 77 μmol)溶解于200 mL二氯甲烷中, 于室温下搅拌反应1 h. 加入200 mL水淬灭反应, 有机相用水萃取(200 mL×3). 经无水硫酸钠干燥后, 在真空下浓缩得到粗产物. 粗产物经柱色谱[V(乙酸乙酯):V(石油醚)=1:2]纯化, 得到化合物C[3]A-2(275 mg, 黄色固体), 收率80%. 合成过程如Scheme 2所示.



Scheme 2 Synthesis of C[3]A-2

1.2.2 C[3]A-2 晶体的制备 取5 mg C[3]A-2溶解于3 mL二氯甲烷中, 用0.22 μm滤膜过滤; 在室温下向该溶液中缓慢扩散正己烷蒸气, 持续3~4 d, 最终获得黄色透明的矩形C[3]A-2晶体.

1.2.3 2-CP@C[3]A-1 晶体的制备 室温下用2-CP对C[3]A-1晶体进行熏蒸处理12 h, 即可获得黄色透明的矩形2-CP@C[3]A-1晶体.

2 结果与讨论

2.1 C[3]A-2和2-CP@C[3]A-1的结构表征

首先测定了化合物4d和C[3]A-2的¹H NMR、¹³C NMR和HRMS谱(图S1~S6, 见本文支持信息). 图S4中在δ 3.5~4.0处出现2组单峰, 并且峰面积积分为1:2, 归属为大环上的桥连亚甲基(—CH₂—). 这说明受体键连的二氢吡啶片段的桥连亚甲基的化学环境发生了变化. HRMS谱图进一步证明所得到化合物的分子量符合C[3]A-2的预测分子量(图S6).

2.2 C[3]A-2和2-CP@C[3]A-1的光物理性质

研究了C[3]A-2和2-CP@C[3]A-1在固态下的光物理性质. 为了保证晶体研磨后的结构未被破坏, 首先测试了其PXRD, 通过与标准PXRD结果比较发现, 研磨过程中未发生结构变化(图S7, 见本文支持信息). 因此, 将晶体研磨后研究了C[3]A-2和2-CP@C[3]A-1在77~300 K温度范围内光致发光光谱和瞬态PL衰减光谱的温度依赖性(图1). 结果表明, 随着温度升高, C[3]A-2和2-CP@C[3]A-1的τ_{TADF}与荧光强度均显著增强, 证实了它们的热激活延迟荧光特性^[40].

此外, 如图2(B)和(D)所示, 通过测试不同时间延迟下的瞬态发射光谱, 发现其光谱位置和谱线形状与稳态光致发光光谱高度重叠. 这一结果表明, 延迟荧光组分和瞬时荧光组分的发射均源于相同的辐射跃迁通道, 即第一激发单重态到基态的跃迁(S₁→S₀). 在相同测试条件下进一步对比了真空和空气中的PL光谱强度. 如图2(A)和(C)所示, 与空气条件相比, 真空条件下PL光谱的发射强度显著增强. 这一现象归因于在真空环境中, 氧气对三重态激子的猝灭作用被有效消除, 从而使更多的T₁态激子能够通过反向系间窜越(RISC)过程回到S₁态, 并产生延迟荧光^[41]. 如图S8(见本文支持信息)所

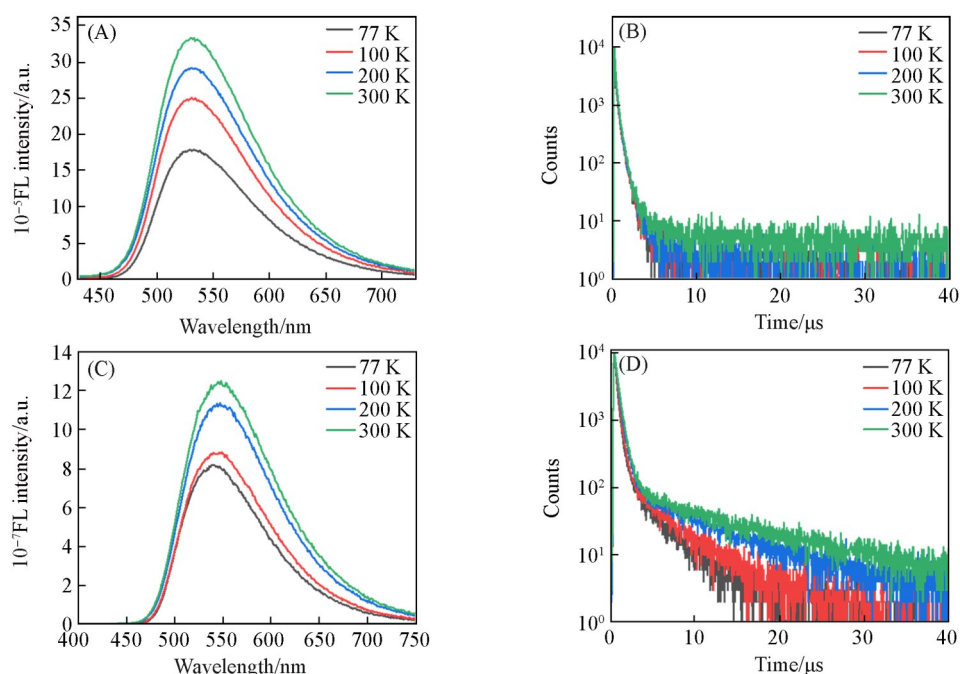


Fig. 1 Temperature-dependent PL spectra of 2-CP@C[3]A-1(A) and C[3]A-2(C) and temperature-dependent transient PL decay curves of 2-CP@C[3]A-1(B) and C[3]A-2(D)

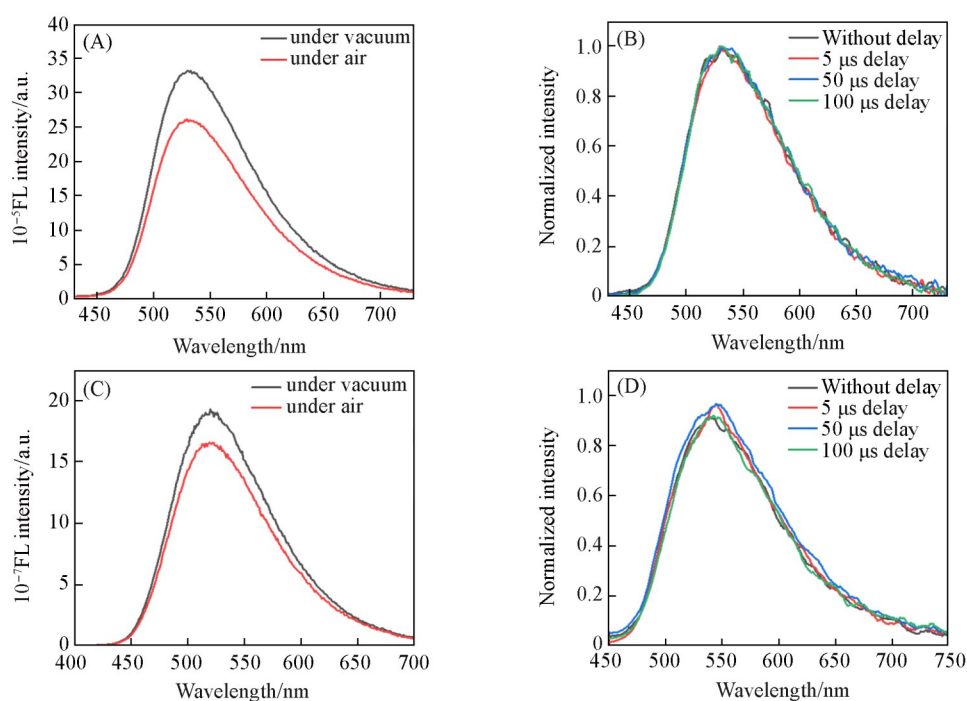


Fig. 2 PL spectra(A, C) under vacuum(dark grey lines) and in air(red lines) at 300 K and time-resolved PL spectra(B, D) under vacuum at 300 K
(A, B) 2-CP@C[3]A-1; (C, D) C[3]A-2.

示, 2-CP@C[3]A-1 的紫外光谱在 350~500 nm 范围出现新的宽吸收峰, 表明 2-CP 的引入使该体系形成了新的 CT 激发态。

2.3 2-CP 可调控的延迟荧光

在 C[3]A-1 中, 3-氰基吡啶受体通过与大环吡啶侧壁之间的氢键相互作用, 被稳定地固定于空腔内部[图 3(C)]. 较大的空腔尺寸(0.9613 nm, 图 S9, 见本文支持信息)确保受体在空腔内的自由旋转能力, 为其形成柔性构象提供了条件. 在结晶过程中, 受体可旋转至最有利于与吡啶侧壁发生 CT 相互

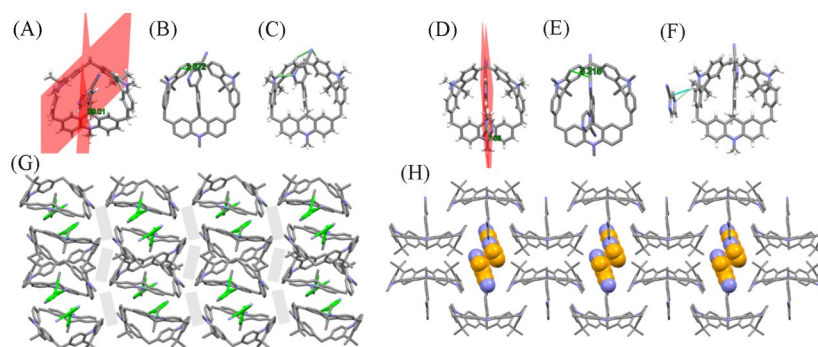


Fig. 3 Dihedral angle between the planes of the 3-cyanopyridine fragment and the adjacent benzene ring: C[3]A-1(A), 2-CP@C[3]A-1(D), distance from the 3-cyanopyridine receptor to the macrocycle: C[3]A-1(B), 2-CP@C[3]A-1(E), intermolecular interactions (blue dashed lines represent C—H··· π interactions, green dashed lines represent hydrogen bonding interactions) of C[3]A-1(C), 2-CP@C[3]A-1(F) and packing mode of C[3]A-1(G), 2-CP@C[3]A-1(H)

Solvent molecules and partial hydrogen atoms are omitted for clarity

作用的角度。这些非共价相互作用显著稳定了主体与客体之间的空间排列，保障了TSCT相互作用，进而使晶体表现出强荧光发射。

值得注意的是，C[3]A-1与C[3]A-2的堆叠模式和空间群存在显著差异(表S1和S2，见本文支持信息)。如图3(G)所示，C[3]A-1呈现单斜晶系 $P2_1n$ 空间群，其中2个取向相反的相邻大环面对面堆积排列，形成更大的分子间空隙，这为后续的组装提供了条件。如图S10(见本文支持信息)所示，C[3]A-2两个相邻大环分子以交错堆叠方式排列且取向相反，呈现三斜晶系 $P-1$ 空间群，这种更紧密的堆积结构，导致分子间间隙更小，以至于C[3]A-2难以进一步进行组装。

大环化合物的空腔设计是调控其发光性质的有效策略，但传统的主客体作用通常局限于单一空腔内的包结行为。研究发现，晶体C[3]A-1中存在尺寸较大的分子间假空腔[图3(G)]，可用来构筑超分子组装。实验选择贫电子的中性受体分子2-CP作为组装单元，通过晶体蒸气熏蒸法实现了从晶体到晶体的转变。在2-CP气氛中，C[3]A-1的荧光由初始的绿色变为黄色。X射线晶体学分析证实，获得了一种新的超分子共组装结构2-CP@C[3]A-1[图3(H)]。将2-CP@C[3]A-1晶体于45 °C活化5 h后进行 ^1H NMR分析，结果表明，C[3]A-1与2-CP以1:1的化学计量比进行组装(图S11，见本文支持信息)。

在2-CP@C[3]A-1的晶体结构中，2-CP选择性地嵌入C[3]A-1大环分子的分子间假空腔中，通过氢键和C—H··· π 非共价相互作用[图3(F)]，形成紧密堆积的共组装结构。相比之下，原始空腔内客体3-氰基吡啶因空间位阻影响，其分子平面与相邻苯环平面的间距显著增大(从0.38 nm增加至0.52 nm)[图3(B)和(E)]，同时二者之间的二面角明显减小(从39.01°降至7.56°，图3(A)和(D))，导致其无法形成有效的CT激发态，即原CT通道关闭。由图4(C)可见，2-CP@C[3]A-1的光致发光(PL)光谱(530 nm)与C[3]A-1(500 nm)相比发生显著红移，这主要归因于新引入的2-CP具有更强的吸电子能力，使其与大环主体之间产生了新的CT相互作用。其次，2-CP@C[3]A-1的光致发光量子产率(59%)明显高于C[3]A-1(35%)(图S12和S13，见本文支持信息)，表明前者的紧密堆积增加环境刚性，抑制了分子振动和旋转，从而提高了量子产率。

值得注意的是，由于2-CP在室温下为液态，将2-CP@C[3]A-1加热(100 °C，24 h)可使其恢复为C[3]A-1。通过2-CP的熏蒸与加热处理，实现了C[3]A-1与2-CP@C[3]A-1的可逆TSCT双通道切换。如图4(A)所示，经过5次循环后，C[3]A-1仍保持对2-CP的荧光识别性能。C[3]A-1向2-CP@C[3]A-1的转化过程可进一步通过粉末X射线衍射(PXRD)验证。如图4(B)所示，随着2-CP熏蒸时间的延长，其PXRD在衍射角度为15°的特征峰逐渐明显，这证明了C[3]A-1向2-CP@C[3]A-1的逐渐转变。密度泛函理论(DFT)计算分析进一步揭示了C[3]A-1与2-CP共组装激发态下的空穴-电子分布：空穴仍局域于大环供体上，而电子分布则从原来的3-氰基吡啶受体转移至客体2-CP(图5)，表明原有的电荷转移途径被完全抑制。上述研究结果为设计动态响应型荧光传感器提供了新策略。

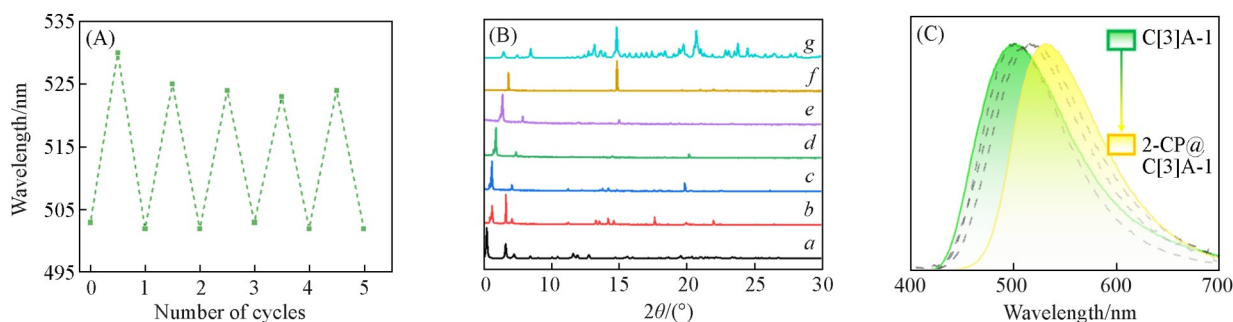


Fig. 4 Fluorescence changes of C[3]A-1 to 2-CP@C[3]A-1 powders in five cycles(A), PXRD patterns of (I)C[3]A-1(a), C[3]A-1 after exposure to 2-cyanopyrazine for 0 min(b), 10 min(c), 20 min(d), 30 min(e), 60 min(f), PXRD patterns of (VII) 2-CP@C[3]A-1(g)(B) and time-dependent normalized fluorescence spectra of C[3]A-1 after exposure to 2-CP(C)

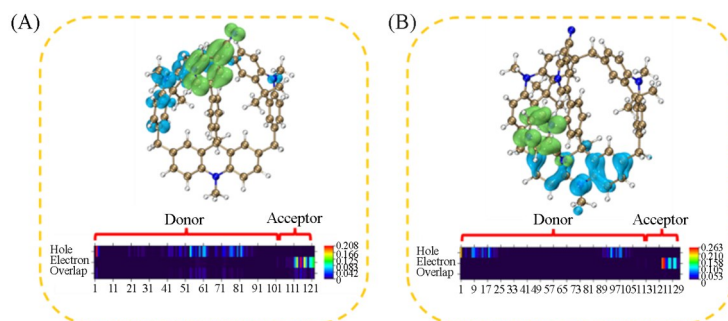


Fig. 5 Heat map of atomic contributions of C[3]A-1(A) and 2-CP@C[3]A-1(B)

2.4 C[3]A-1和2-CP@C[3]A-1的酸碱响应性

在C[3]A-1和2-CP@C[3]A-1的结构中, 3-氰基吡啶和2-CP单元暴露于酸蒸气时会发生质子化, 从而破坏其原来的CT激发态发光. 具体而言, 酸处理会导致荧光猝灭, 而后续用碱处理则可使荧光恢复至初始状态. 为探究C[3]A-1在酸碱刺激下可逆荧光切换的机理, 对比研究了C[3]A-1在酸碱处理前后的¹H NMR谱图以分析其分子结构变化. 如图6所示, 在DMSO-d₆介质中, 添加TFA前C[3]A-1的¹H NMR谱图显示2个特征峰 δ_a 8.96和 δ_b 8.94, 分别归属于3-氰基吡啶单元氮原子附近氢原子的信

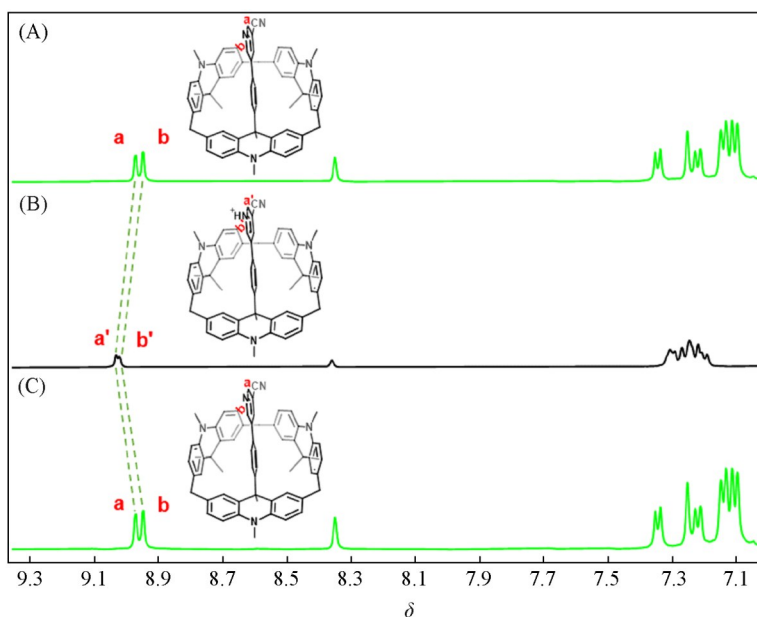


Fig. 6 ¹H NMR spectrum(500 MHz) of C[3]A-1(A), C[3]A-1 mixed with TFA(B) and C[3]A-1 mixed with TFA and TEA(C) in DMSO-d₆

号. 加入2当量TFA后, 这些氢原子的化学位移向低场移动至 δ_a 9.03和 δ_b 9.02, 表明3-氰基吡啶单元氮原子发生了质子化. 值得注意的是, 在继续加入4当量TEA后, 3-氰基吡啶单元上a位和b位氢原子的化学位移恢复至TFA处理前的初始状态. 这一结果进一步证实了该大环化合物在酸碱刺激下具有可逆的结构转变特性. 而C[3]A-2空腔内的受体为1,2-二氰基苯, 结构上未可以发生质子化的氮原子, 因此, C[3]A-2不能表现出对酸碱的荧光响应性质.

2.5 多级逻辑门中的应用

如图7(A)所示, 经TFA处理后, C[3]A-1的荧光颜色由绿色变为无色; 后续经TEA处理, 其荧光颜色恢复为绿色. 基于C[3]A-1对2-CP和酸碱的可逆响应, 设计了具备多信息输入和输出功能的分子逻辑门. 为构建高效逻辑电路, 将未处理C[3]A-1晶体的发光状态设定为逻辑门初始态, 输入信号包括紫外照射的C[3]A-1(输入1)、C[3]A-2(输入2)、TFA蒸气熏蒸(输入3)、TEA蒸气熏蒸(输入4)及2-CP蒸气熏蒸(输入5), 其中逻辑值“1”与“0”分别对应刺激的存在与否. 输出信号定义为无荧光(O1)、绿色荧光(O2)和黄色荧光(O3), 逻辑值“1”与“0”分别代表荧光信号存在与否. 当检测到绿色或黄色荧光时, 输出均定义为“1”. 由真值表(表1)和原理图[图7(B)]可见, 在紫外照射的C[3]A-1(输入1,1)条件下, TFA蒸气熏蒸(输入3,1)、TEA蒸气熏蒸(输入4,1)及2-CP蒸气熏蒸(输入5,1)的对应输出值分别为0, 0和1. 这一设计为构建具有复杂功能的分子逻辑电路提供了新思路, 在化学传感与加密防伪领域展现出潜在的应用前景.

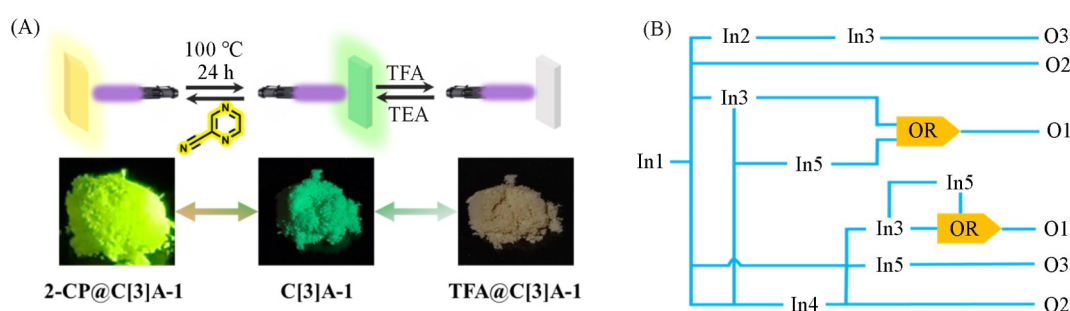


Fig. 7 Color change of C[3]A-1 after treatment with 2-CP and TEA/TFA(A) and symbolic representation of the integrated logic gate system using C[3]A-1, C[3]A-2, TFA, TEA and 2-CP as inputs 1, 2, 3, 4 and 5, respectively(B)(No FL, green FL and yellow FL signal were defined as O1, O2, O3)

Table 1 Truth table and schematic diagram of the logic gate

INPUT		INPUT					OUTPUT		
In1	In2	In3	In4	In5	O1	O2	O3		
C[3]A-1	C[3]A-2	TFA	TFA	2-CP	No FL	Green FL	Yellow FL		
1	0	0	0	0	0	1	0		
1	0	1	0	0	1	0	0		
1	0	0	0	1	0	0	1		
1	0	1	0	1	1	0	0		
1	0	1	1	0	0	1	0		
1	1	1	1	1	0	0	1		
1	1	1	0	0	0	0	1		

3 结论

构建了一种基于大环主-客体作用和酸碱刺激可调控TSCT路径的可逆延迟荧光体系. 客体分子2-CP的可逆嵌入改变了空腔内受体构象, 使电荷转移模式由分子内转向分子间, 伴随绿色TADF发射猝灭与黄色TADF发射产生, 实现了发光模式的可切换, 并兼具酸碱响应性. 进一步修饰得到的类似物可稳定黄色发射同时失去酸碱响应性. 基于多重刺激响应性质, 该体系被用于构建分子逻辑门, 为开发动态智能发光材料开辟了新途径.

支持信息见 <http://www.cjcu.jlu.edu.cn/CN/10.7503/20250382>.

参 考 文 献

- [1] Li J., Wang J., Li H., Song N., Wang D., Tang B. Z., *Chem. Soc. Rev.*, **2020**, 49(4), 1144—1172
- [2] Guo Y. J., Zhang M. P., Gong Z. T., Zhao Y. L., Shi K. Q., He L. L., *Acta Chim. Sin.*, **2025**, 83, 309—318
- [3] Li Y. X., Liu Y., *Acta Chim. Sin.*, **2023**, 81, 928—936
- [4] Wu X., Duan Q. P., Ni M. F., Hu X. Y., Wang L. Y., *Chin. J. Org. Chem.*, **2014**, 34, 437—449
- [5] Huang S. L., Yang L. P., Wang L. L., Yao H., *Chin. J. Org. Chem.*, **2025**, 45, 3624—3643
- [6] Long Y. J., Han X. N., Han Y., Chen C. F., *Chin. Chem. Lett.*, **2025**, 36(6), 110600
- [7] Narayanan A., Cao D., Frazer L., Tayi A. S., Blackburn A. K., Sue A. C. H., Ketterson J. B., Stoddart J. F., Stupp S. I., *J. Am. Chem. Soc.*, **2017**, 139(27), 9186—9191
- [8] Wu J. R., Wu G., Yang Y. W., *Acc. Chem. Res.*, **2022**, 5, 3191—3204
- [9] Kato K., Kaneda T., Ohtani S., Ogoshi T., *J. Am. Chem. Soc.*, **2023**, 145, 6905
- [10] Li J., Han Y., Chen C. F., *Chin. J. Org. Chem.*, **2020**, 40, 3714—3737
- [11] Wang Y., Wu H., Hu W., Stoddart J. F., *Adv. Mater.*, **2022**, 34(22), 2105405
- [12] Yin C., Yan Z. A., Ma X., *Chem. Commun.*, **2023**, 59(90), 13421—13433
- [13] Han X. N., Han Y., Chen C. F., *Chem. Soc. Rev.*, **2023**, 52(9), 3265—3298
- [14] Chen C. F., Han Y., *Acc. Chem. Res.*, **2018**, 51, 2093—2106
- [15] Zhang Z., Li C., *Chin. J. Org. Chem.*, **2021**, 41, 2923—2924
- [16] Ogoshi T., Shimada Y., Sakata Y., Akine S., Yamagishi T., *J. Am. Chem. Soc.*, **2017**, 139(16), 5664—5667
- [17] Blanco-Gómez A., Cortón P., Barravecchia L., Neira I., Pazos E., Peinador C., García M. D., *Chem. Soc. Rev.*, **2020**, 49(12), 38343862
- [18] Gu M. J., Guo W. C., Han X. N., Han Y., Chen C. F., *Angew. Chem. Int. Ed.*, **2024**, 63(28), e202407095
- [19] Zhou H. Y., Zhang D. W., Li M., Chen C. F., *Angew. Chem. Int. Ed.*, **2022**, 61(15), e202117872
- [20] Yu X. K., Wu W. H., Zhou D. Y., Su D., Zhong Z. H., Yang C., *CCS Chem.*, **2022**, 4, 1806—1814
- [21] Zhang Z. Y., Li C. J., *Acc. Chem. Res.*, **2022**, 55, 916—929
- [22] Niu S., Mao L. L., Xiao H., Zhao Y., Tung C. H., Wu L. Z., Cong H., *Chin. Chem. Lett.*, **2022**, 33, 1970—1974
- [23] Cheng L., Zeng F., Wang X., *Chin. J. Org. Chem.*, **2023**, 43, 352—356
- [24] Yang J., Dai D., Ma L., Yang Y. W., *Chin. Chem. Lett.*, **2021**, 32, 729—734
- [25] Li S., Zhu C., Mao L., Zhang X., Ye Z., Li C., Ma D., *Sci. Chin. Chem.*, **2025**, 68, 3116—3122
- [26] Mi Y., Ma J., Liang W., Xiao C., Wu W., Zhou D., Yao J., Sun W., Sun J., Gao G., Chen X., Chruma J. J., Yang C., *J. Am. Chem. Soc.*, **2021**, 143(3), 1553—1561
- [27] Li M., Liu Y., Duan R., Wei X., Yi Y., Wang Y., Chen C. F., *Angew. Chem. Int. Ed.*, **2017**, 56(30), 8818—8822
- [28] Hu J., Li Q., Wang X., Shao S., Wang L., Jing X., Wang F., *Angew. Chem. Int. Ed.*, **2019**, 58(25), 8405—8409
- [29] Wu J. R., Li D., Wu G., Li M. H., Yang Y. W., *Angew. Chem. Int. Ed.*, **2022**, 61, e202210579
- [30] Yuan W. Z., Gong Y., Chen S., Shen X. Y., Lam J. W. Y., Lu P., Lu Y., Wang Z., Hu R., Xie N., Kwok H. S., Zhang Y., Sun J. Z., Tang B. Z., *Chem. Mater.*, **2012**, 24(8), 1518—1528
- [31] Beldjoudi Y., Narayanan A., Roy I., Pearson T. J., Cetin M. M., Nguyen M. T., Krzyaniak M. D., Alsubaie F. M., Wasielewski M. R., Stupp S. I., Stoddart J. F., *J. Am. Chem. Soc.*, **2019**, 141, 17783—17795
- [32] Gu M. J., Han X. N., Guo W. C., Han Y., Chen C. F., *Angew. Chem. Int. Ed.*, **2023**, 62, e202305214
- [33] Yuan T., Vazquez M., Goldner A. N., Xu Y., Contrucci R., Firestone M. A., Olson M. A., Fang L., *Adv. Funct. Mater.*, **2016**, 26, 8604—8612
- [34] Feng Q., Zhu S., Wang B., Yu F., Li H., Yu M., Xu M., Xie L., *Adv. Funct. Mater.*, **2024**, 34, 2312622
- [35] Han Y., Song K. Z., Long Y. J., Guo W. C., Ji M. J., Han X. N., Chen C. F., *Angew. Chem. Int. Ed.*, **2025**, 64, e202508987
- [36] Ma J. H., Han Y., Guo W. C., Lu H. Y., Chen C. F., *CCS Chem.*, **2025**, 6, 2623—2632
- [37] Wang J. Q., Long Y. J., Song K. Z., Han Y., Chen C. F., *Angew. Chem. Int. Ed.*, **2025**, 64, e202514366
- [38] Ma J. Y., Mao Y. L., Zhao T., Wu, W. H., Ji J. C., Wei L. L., Shi Y. Z., Zhou D. Y., Chen X. C., Li K., Yang C., *CCS Chem.*, **2025**, DOI: 10.31635/ccschem.025.202506868
- [39] Song K. Z., Guo W. C., Ji M. J., Han Y., Lu H. Y., Chen C. F., *Chem. Eur. J.*, **2025**, 31, e02916
- [40] Uoyama H., Goushi K., Shizu K., Nomura H., Adachi C., *Nature*, **2012**, 492, 234—238
- [41] Zhou Z., Qiao C., Wang K., Wang L., Liang J., Peng Q., Wei Z., Dong H., Zhang C., Shuai Z., Yan Y., Zhao Y. S., *Angew. Chem. Int. Ed.*, **2020**, 59, 21677—21682

(Ed.: F, K)