

고분자 기반 유기열전소재 연구 동향

Research Trends of Organic Thermoelectric Materials based on Conductive Polymers

김지현 · 조강현 · 김병관 | Jihyun Kim · Kanghyun Jo · Byeonggwan Kim

Department of Chemical Engineering and Applied Chemistry, Chungnam National University,
99 Daehak-ro, Yuseong-gu, Daejeon 34134, Korea
E-mail: bg_kim@cnu.ac.kr

1. 서론

대부분의 엔진 발전, 기계 구동, 공정 제어, 냉난방 산업, 데이터 계산/저장 및 모빌리티에서 사용되는 에너지원은 인간에게 유용한 에너지로 변환하는 과정에서 총 에너지의 60% 이상이 폐열로 낭비되어 심각한 환경/에너지 문제를 야기한다.^{1,2} 일반적으로 300 °C 이상의 고급 열 에너지는 산업에서 쉽게 재활용할 수 있는 반면, 300 °C 이하의 저급 열 에너지는 대부분 소산되어 유용한 에너지원으로써 사용하기 힘들다. 따라서 이러한 폐열을 유용한 에너지로 전환하여 친환경적으로 에너지를 재활용할 수 있는 기술 개발이 현 세대의 심각한 지구 에너지 문제를 해결하는데 중요하다. 열전 효과(thermoelectric effect)는 열과 전기 에너지의 상관관계를 지칭하며, 그 중 제벡 효과(Seebeck effect)는 소재 사이에 온도구배가 주어지면 전위차가 형성되어 전류가 흐르게 되는 현상이다. 폐열을 유용한 형태의 전기 에너지로 전환할 수 있기 때문에 차세대 청정에너지원으로서 전세계적으로 무기, 유기, 복합체 소재 개발이 활발하게 이루어지고 있다.

열전성능지수 (figure of merit)는 $ZT = \sigma S^2 T / \kappa$ 로 정의되며, S 는 제벡 계수, σ 는 전기 전도도, κ 는 열 전도도이다.³ 제벡 계수는 소재(전극) 양단의 전압차(ΔV)를 온도구배(ΔT)로 나누어($S = \Delta V / \Delta T$) 얻을 수 있고, σS^2 은 전력 계수(power factor, PF)로 부른다. ZT 값을 높이려면 전기 전도도와 제벡 계수를 높이고 열 전도도는 낮추어야 한다. 무기 반도체를 기반으로 하는 기존의 열전 소재는 높은 공정 비용, 무거움, 중금속 독성, 비유연성, 낮은 제벡 계수 측면에서 상업적으로 다양한 응용에 활용하기에는 큰 한계가 있다.⁴ 이러한 한계를 극복하고자 최근 전도성 고분자를 기반으로 한 유기 소재가 친환경성, 낮은 공정 비용, 유연성, 대면적 인쇄성, 낮은 열전도도로 많은 주목을 받고 있다.⁵ 또한, 최근에는 Soret 효과에 기반한 이온성 열전(ionic thermoelectric) 소재가 이온 채널 조절을 통한 단일 이온 이동 제어를 촉진하여 제벡 계수가 크게 증가하여 전력 계수 및 성능 지수가 향상되었다.^{6,7}

Author



김지현

2024

2024-현재

충남대학교 응용화학공학과 (학사)
충남대학교 응용화학공학과 석박사 통합과정



조강현

2025

2025-현재

충남대학교 응용화학공학과 (학사)
충남대학교 응용화학공학과 석사 과정



김병관

2010

2015

2018-2019

2023-현재

연세대학교 화공생명공학과 (학사)
연세대학교 화공생명공학과 (박사)
Sorbonne Université (Post Doc.)
충남대학교 응용화학공학과 조교수

이러한 유기 소재들은 웨어러블 전자 장치, 전기 활성 액추에이터, 센서 및 자가 구동 장치와 같은 인간 친화적 장치로서의 잠재력을 가지고 있다. 특히, 인간/기기/데이터 출력/저장이 상호 연결되는 사회 시스템이 빠르게 정립됨에 따라 인간의 삶의 질에 도움이 될 수 있는 신체 동작 모니터링, 생리 신호 감지, 혈액 내 주요 구성요소 감지 등의 건강관리를 실시간으로 모니터링할 수 있는 웨어러블 전자 소자에 대한 수요가 크게 증가하고 있고 웨어러블 자기 전원 시스템을 포함하여 앞으로도 시장이 크게 확장될 것으로 전망된다. 따라서 인체에서 지속적으로 외부로 빠져나가는 열 에너지를 한 번에 전기로 직접 변환할 수 있는 열전 기술의 개발이 중요하다. 본 총설에서는 다양한 고분자 기반 최근 대표적 유기열전소재에 대해 소개하고 소재의 화학구조와 복합체 형성이 열전 성능에 어떻게 영향을 미치는지와 응용 분야에 대해서 살펴보고자 한다.

2. 본론

2.1 열전 메커니즘

열전 소재의 활용성과 상용화를 위해서는 열전성능지수의 비약적인 향상이 가장 큰 장벽이다. 반도체 재료의 ZT 값을 향상시키려면 PF를 주로 높여야하는데 제백 계수와 전기 전도도는 Mott's 식에 따라 전하농도에 서로 상충관계를 가지고 있기 때문이다.^{7,8} 일반적으로 소재의 화학조성이 정해지면 소재의 ZT 값은 전하농도의 조절로부터 최적화시킬 수 있지만 극적으로 높이는 어렵다. 고분자 기반 유기열전소재들은 무기소재와 비교했을 때 전기 전도도가 낮은 단점이 있지만 열 전도도도 낮아 낮은 열원으로부터 큰 온도 구배를 이룰 수 있다.

열전 소재의 구동은 크게 세 가지 메커니즘에 의해 분류할 수 있다(그림 1).^{5,11} 첫 번째로 전자 열전소재에서는 따뜻한

면에서 차가운 면으로 자유 전하 캐리어(정공 또는 전자)가 이동하게 되는데 이러한 p타입 또는 n타입 제백 효과로 전기 에너지가 생성된다. 따뜻한 면의 자유 전하 캐리어 증가로 인하여 차가운 쪽의 엔트로피보다 큰 엔트로피가 유도되어 전압이 발생되고, 자유 전하 캐리어의 연속적인 흐름이 차가운 쪽을 향해 발생하여 주어진 온도 구배에서 전류를 생성하게 된다.

두 번째 메커니즘으로 열 배터리에 사용되는 열전갈바닉 효과(thermoelectric effect)를 활용한 갈바닉 소재가 있다. 산화환원 활성 전이금속 복합체는 온도에 따라 산화 상태와 환원 상태를 가역적으로 유지할 수 있는데, 따뜻한 면에서 전해질에 녹아있는 전이금속 복합체가 산화(p-type) 또는 환원(n-type)되고 이러한 일련의 화학반응에 의해 화학평형이 변형되기 때문에 복합체는 반대 전극으로 확산하여 이동하게 되며 차가운 면에서는 반대로 환원 또는 산화가 일어난다. 이러한 메커니즘에 따라 전기화학적 반쪽 반응의 전압의 합으로 열전갈바닉 소자 전체의 전압이 결정되고 가역적으로 반응이 지속되어 전류를 얻을 수 있다. 일반적으로 첫 번째와 두 번째 메커니즘의 경우 1 K의 온도 차이 당 수백 μV 의 전압을 얻을 수 있고 전자소자 구동을 위해 수 V 이상의 높은 전압과 충분한 전류를 수확하려면 적게는 수 백 개에서 수천개까지 많은 수의 개별 p-형과 n-형 소자(leg) 쌍이 직렬로 연결되어야 한다. 이러한 열전소자(thermoelectric generator, TEG)를 모듈 형태로 만들어 응용소자로 활용할 수 있다. 하지만 액체형 열전갈바닉 소자의 경우 용액 상에 전이금속 복합체 소재들이 녹아있는 형태이기 때문에 각 소자마다 큰 저항이 걸리게 되어 직렬 연결 시 전압 대비 전류 값이 줄어드는 단점이 발생할 수 있다.

세 번째 메커니즘으로 이온 열전 효과가 있다. 이는 이온 자체가 온도 구배 하에서 열확산함으로써 전압과 전류를 생성시킬 수 있는 시스템으로 Ludwig와 Soret에 의해 초기에 이론이 정립되었다.¹⁰ Soret 효과는 전해질 상에 온도 차이가 가해졌을 때 차가운 면의 이온 농도가 뜨거운 면의 이온 농도보다 높아지는 효과이고 이러한 정상 상태의 온도 구배로부터 전압이 유지될 수 있다. 이는 전해질 내의 엔트로피 변화와도 밀접하게 연관되어 있으며, 각 이온의 열확산 계수와 용매/매트릭스 특성에 따라 이온 열전 성능이 달라질 수 있다. 이때 소재 내부의 온도 구배에 의해 한 가지 전하의 이온만 주로 이동하게 되면 열적으로 유발된 농도 차이로 인하여 양이온과 음이온 농도의 불균형이 발생하고 출력 전압을 생성한다. 이러한 원리로 이온 열전 소재의 열전 전하 원리는 앞서 소개한 열전압과 열전류가 일정하게 생성되는 전자 열전소재나 열갈바닉 소재와 다르게 이온 커패시터로 작동한다. 지속적인 온도 구배 하에서 이온이 차가운 면으로 이동하고 농도가 높아지게 되면 온도 구배에 의해 반대로 역확산이 일어날 수 있어 역전압과 역전류가 소자의 효율을 감소시킬 수 있다.

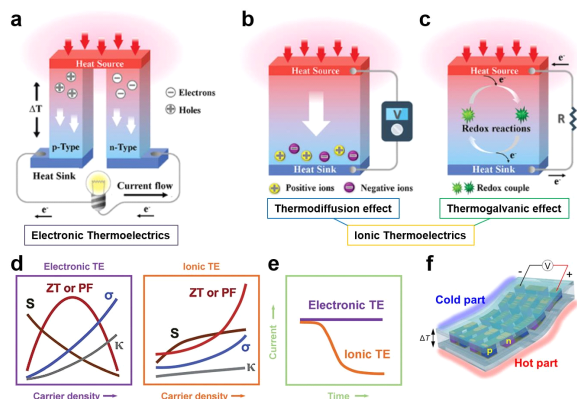


그림 1. (a) p-형 및 n-형 전자 열전 소재, (b) 열확산 이온 열전 소재, (c) 열전갈바닉 이온 열전 소재의 구동 메커니즘 개략도.¹¹ (d) 캐리어 종류와 캐리어 밀도에 따른 열전 특성의 의존성. (e) 일정한 온도 구배에서 외부 회로 전류와 시간 간의 관계.¹¹ (f) 열전소자 모듈의 구동 개략도.

또한 전하 캐리어들이 일정 농도에 도달하면 이온끼리의 반발력으로 더 높은 밀도를 이루지 못하고 정제될 수 있는데 이러한 경우에 전압은 유지되지만 전류는 흐르지 못 하는 상태가 될 수 있다. 이러한 이온 소재만의 특성은 이온이 전자와는 다르게 외부 회로로 빠져나가지 못하고 한쪽 전극에 축적되기 때문이며, 이로 인해 보통 커패시터로 작동된다. 하지만 기존의 열전 소재보다 10^{2-3} 배 높은 제벡 계수를 보이기 때문에 십 수개의 열전 소재 쌍으로 열전소자 모듈을 구성해도 충분한 생성 전압을 유도할 수 있어 단순한 소자 구조로 복잡성을 최소화하고 제작 비용을 줄일 수 있다. 자세한 최근 고분자 기반 대표적 유기열전소재에 대해 소개하고 소재의 어떤 구조적 특성이 열전 성능에 영향을 미치는지와 응용 분야에 대해서 살펴보고자 한다.

2.2 전도성 고분자 기반 유기열전소재

우수한 캐리어 이동도와 폴라론 비편재화를 형성할 수 있는 전자 공여체-수용체(Donor-Acceptor, D-A) 구조의 전도성 고분자는 유기열전소재로서 다양하게 연구되고 있다(그림 2).⁵ 디케토피롤로피롤(DPP) 기반 전도성 고분자는 강한 π - π 스택킹 상호작용과 높은 평면성으로 규칙적인 분자 패키징을 이룰 수 있고 라멜라 간격을 조절하기 용이하다. 페르미 에너지와 전도 밴드 에너지 차이의 증가로 전력 계수를 향상시킬 수 있다. 최근 연구에서 중국 과학원의 C.-a. Di 박사는 DPP-BTz의 분자 배향을 edge-on과 face-on과

혼합 상태로 제어함으로써 혼합 상태의 박막에서 최대화된 p-형 $346 \mu\text{W m}^{-1} \text{K}^{-2}$ 의 PF와 0.40의 ZT를 보고했다.¹² 존스홉킨스대의 H. E. Katz 교수는 PDPIN 고분자를 이온 고분자 PSpF로 도핑했을 때, 호스트 고분자의 분자 배열에 적은 영향을 미치면서도 높은 도펀트 비율로 혼합이 되었을 때 최적의 열전 성능(전기 전도도 78 S cm^{-1} , PF $163 \mu\text{W m}^{-1} \text{K}^{-2}$, ZT 0.53)을 보임을 보고하였다.¹³ 이러한 완전 고분자 시스템은 기존의 n-형 도펀트로 많이 연구되고 있는 N-DMBI 도펀트 보다 훨씬 우수한 75일의 박막상 공기 안정성을 보였다. 베이징대학교의 J. Pei 교수는 트리아미노메탄 유도체인 TAM 도펀트를 개발하여 고분자 패킹 구조를 유지시키면서 고농도로 균일하게 도핑할 수 있는 n-형 FBDPPV 고분자 박막을 보고하였다.¹⁴ $10 \mu\text{m}$ 이상의 두꺼운 박막에서 전기 전도도 21 S cm^{-1} , PF $51 \mu\text{W m}^{-1} \text{K}^{-2}$ 의 높은 n-형 열전 성능을 보였다. 중국 과학원의 J. Liu 교수는 비융합고리(non-fused-ring) 전략을 이용하여 티오펜 단위 구조에 전자 끌개 시아노기를 도입하여 n-PT1을 제시하였다.¹⁵ 이 전도성 고분자는 낮은 LUMO/HOMO 에너지 준위와 0.39 eV 의 높은 전자 이동도를 보였고, TDAE로 도핑하였을 때 전기 전도도 61.2 S cm^{-1} , PF $141.7 \mu\text{W m}^{-1} \text{K}^{-2}$ 의 우수한 n-형 열전 특성을 보였다. 이러한 연구들은 열전 소재의 성능 극대화에 있어 분자 배향과 전도성 고분자와 도펀트의 에너지 레벨 디자인의 중요성을 강조한다.

2.3 열전갈바닉 유기열전소재

열전갈바닉 소재는 온도 구배에 따른 산화환원쌍의 엔트로피 변화가 열전 성능을 결정한다. 대표적으로 가장 널리 알려진 $\text{K}_3\text{Fe}(\text{CN})_6/\text{K}_4\text{Fe}(\text{CN})_6$ 산화환원쌍은 수용액에서 제벡 상수 1.4 mV K^{-1} 을 갖는 다고 알려졌다(그림 3).⁵ 최근에는 남방과학기술대학교의 W. Liu 교수는 열확산과 열전갈바닉 효과를 복합한 젤라틴/ $[\text{Fe}(\text{CN})_6]^{3-/4-}/\text{KCl}$ 준고체 이온 열전소재를 개발하여 제벡 상수 17.0 mV K^{-1} 을 보였고, 전력 출력 밀도 $8.9 \text{ mW m}^{-2} \text{K}^{-2}$ 와 2시간 에너지 밀도 80 J m^{-2} 를 달성하였다.¹⁶ 최종적으로 장갑에 부착할 수 있는 모듈 소자를 제작하여 웨어러블 소자로서 2.2 V의 전압을 유도하는데 성공하였다. 광둥과학원의 W. Zeng 박사는 폴리아크릴아미드 기반의 이온성 겔을 구성하고 철(II/III) 피틴산이 부착된 탄소 천 전극을 도입하여 순간 및 연속 전력 밀도 $20.3 \text{ mW m}^{-2} \text{K}^{-2}$ 와 $15.0 \text{ mW m}^{-2} \text{K}^{-2}$ 를 보고하였다.¹⁷ 산화환원 쌍이 적재된 전극과 이온성 겔의 통합은 전극 표면으로의 빠른 이온 이동과 효과적인 전자 전달을 유도하여 뛰어난 출력 전력에 기여하였다. 최근 화중과학기술대학교의 J. Zhou 교수는 높은 감열성 용해도를 가지는 구아니딘륨 이온을 첨가하여 온도에 따른 $[\text{Fe}(\text{CN})_6]^{4-}$ 의 선택적 결정화를 유도함으로써 농도 엔트로피 증가를 통한 제벡 상수 3.73 mV K^{-1} 을 보였다.¹⁸

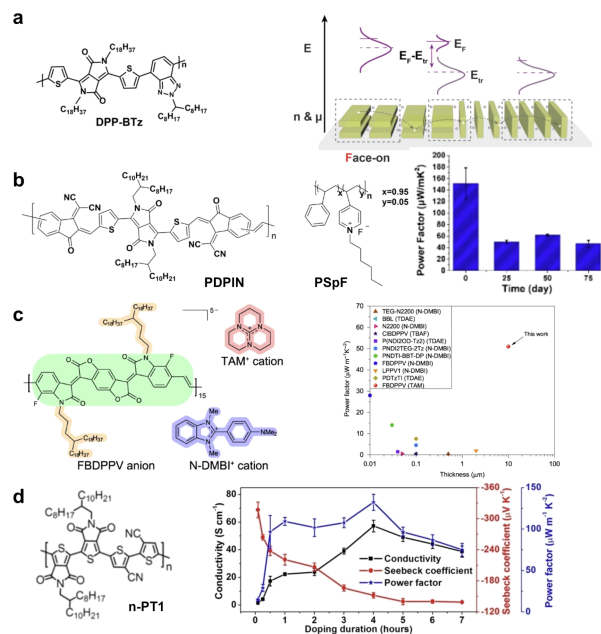


그림 2. (a) DPP-BTz의 화학구조와 에너지 준위 조절 모식도,¹² (b) PDPIN호스트와 PSpF 게스트 고분자의 화학구조와 공기 중 시간에 따른 전력계수 그래프,¹³ (c) FBDPPV 고분자와 TAM&N-DMBI 도펀트의 화학구조와 다양한 n-형 공액고분자의 열전 성능 비교,¹⁴ (d) n-PT1의 화학구조와 도핑 시간에 따른 열전 성능 분석 그래프.¹⁵

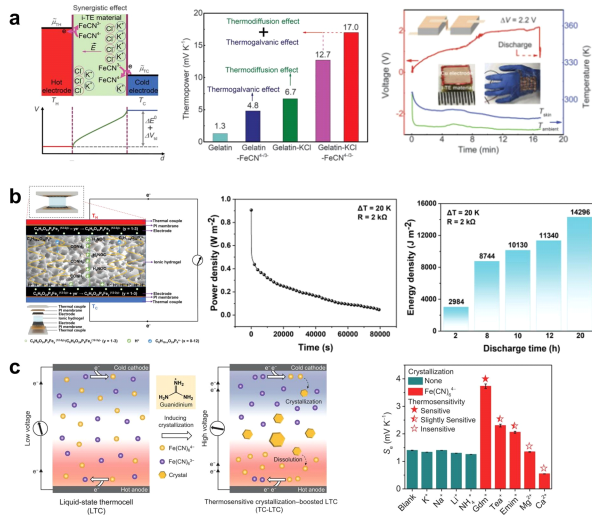


그림 3. (a) 젤라틴/[Fe(CN)₆]^{3-/4-}/KCl 준고체 이온 열전소재의 열전 성능과 웨어러블 소자 응용,¹⁶ (b) 폴리아크릴아미드/철(II/III) 피탄산 이온성젤의 구조 모식도와 소자 성능 그래프,¹⁷ (c) 구아니딘 이온과 [Fe(CN)₆]⁴⁻의 결정 형성과 열전 성능 그래프.¹⁸

산화환원 쌍의 엔트로피 차이를 유도하는 것 외에도 작동 가능한 온도 범위를 넓히는 전략을 통해 성능을 향상시킬 수 있다. 이를 위해 공용 용매 사용을 통해 어는점을 낮춰 극저온 온도에서 작동 가능하도록 하는 연구가 보고된 바 있으며, 이는 액체 열전지의 카르노 상대 효율을 11.1%까지 올려 저급 열 수확의 비용 효율적인 가능성을 제시하였다.

2.4 이온 유기열전소재

이온성 고분자와 이온 캐리어 조절을 통한 이온 유기열전 소재는 높은 제벡 상수를 바탕으로 고습도 환경에서 우수한 순간 전력 계수를 나타내며, 이러한 특성으로 인해, 다양한 소재들이 연구되고 있다(그림 4).^{5,10} 광동과학원의 W. Zeng 박사님은 온도에 민감한 상전이 거동을 갖는 상호 침투형 네트워크 구조(interpenetrating polymer network, IPN)의

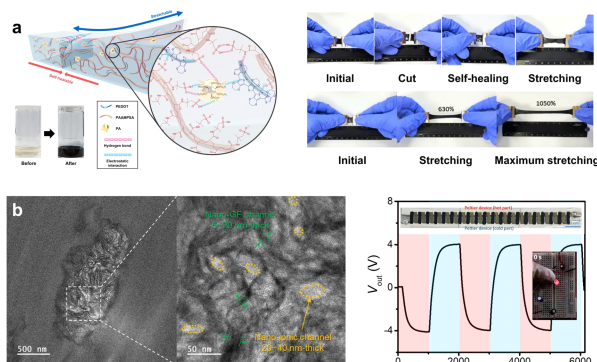


그림 4. (a) PAAMPSA이 도핑된 PEDOT/피탄산의 모식도와 신축성/자가치유성 사진,²¹ (b) PAMPS/K₃[Fe(CN)₆]/GF 복합체의 미세구조 투과전자현미경 이미지와 모듈 소자의 열전 성능 그래프.⁷

P(AA-AM)/CMC/H₂SO₄ 이온젤을 설계하여 높은 제벡 상수 40.6 mV K⁻¹를 보고하였다. 폴리아닐린(PANI)/탄소 직조 직물(CWF) 전극과의 통합을 통해서 출력 성능을 향상시켰으며, 20 K의 온도 구배에서 1시간 출력 에너지 밀도 570 J m⁻²와 순간 전력 밀도 11.31 mW m⁻² K⁻²를 달성하였다.¹⁹ 싱가포르 국립대학교의 J. Ouyang 교수님은 PVDF-HFP/EMIM:DCA 이온젤을 Na:DCA로 도핑하여 이온종 간의 상호작용과 이동도 차이를 조절하였고, 제벡 상수 43.8 mV K⁻¹, 이온 전도도 19.4 mS cm⁻¹, ZT 6.1을 보고하여 커패시터로 활용하였다.²⁰ 울산과학기술원의 장성연 교수님은 PAAMPSA이 도핑된 PEDOT과 피탄산이 결합된 고분자 복합체를 구성하여 양성자 이동을 극대화시켜 신축성/자가치유성 소재를 개발하였고, 제벡 상수 21.9 mV K⁻¹, 이온 전도도 0.309 S cm⁻¹, ZT 12.3의 높은 열전 특성을 보고하였다.²¹ 연세대학교 김은경 교수님은 PAMPS/K₃[Fe(CN)₆]/GF 복합체를 구성하여 GF의 함량에 변화를 주며 전기 전도도와 이온 전도도의 기여를 조절하였다. 제벡 상수 -40 mV K⁻¹를 보여 에너지 밀도 36.0 J m⁻², 출력 밀도 18.6 mW m⁻²를 얻어 광열전 시스템 응용과 유기열전 소재에서는 보기 힘든 장시간 LED 구동의 다재다능함을 보고하였다.⁷

3. 결론

최근 고분자 기반 고성능 유기열전소재에 대해 소개하고 소재의 화학구조와 복합체 형성이 열전 성능에 어떻게 영향을 미치는지와 다양한 응용 분야에 대해서 소개하였다. 유기 열전소재는 학술적/산업적인 응용 가능성에 비해 아직까지 실제 적용된 분야가 적어 다양한 분야로의 확장 가능성이 남아있다. 이를 위해 소재의 오비탈 에너지 레벨과 복합체 형성을 통한 분자 배열, 에너지 조절, 캐리어 활성화 등을 효과적으로 제어하는 기초 연구와 무기열전소재가 사용되지 못 하는 근본적인 응용 분야를 개발하여 미래첨단소재로서 다양한 학문/응용 분야에 적용될 것으로 기대한다.

감사의 글

본 연구는 충남대학교 학술연구비에 의해 지원되었음.

참고문헌

1. G. Schierning, *Nat. Energy*, **3**, 92 (2023).
2. P. Ying, R. He, J. Mao, Q. Zhang, H. Reith, J. Sui, Z. Ren, K. Nielsch, and G. Schierning, *Nat. Commun.*, **12**, 1121 (2021).
3. G. J. Snyder and E. S. Toberer, *Nat. Mater.*, **7**, 105 (2008).
4. T. Sun, B. Zhou, Q. Zheng, L. Wang, W. Jiang, and G. J. Snyder, *Nat. Commun.*, **11**, 572 (2020).

5. M. Massetti, F. Jiao, A. J. Ferguson, D. Zhao, K. Wijeratne, A. Würger, J. L. Blackburn, X. Crispin, and S. Fabiano, *Chem Rev.*, **121**, 12465 (2021).
6. C. Cho, B. Kim, S. Park, and E. Kim, *Energy Environ. Sci.*, **15**, 2049 (2022).
7. C. Cho, B. Kim, S. Park, and E. Kim, *Energy Environ. Sci.*, **18**, 1294 (2025).
8. M. Cutler and N. F. Mott, *Phys. Rev.*, **181**, 1336 (1969).
9. S. A. Gregory, R. Hanus, A. Atassi, J. M. Rinehart, J. P. Wooding, A. K. Menon, M. D. Losego, G. J. Snyder, and S. K. Yee, *Nat. Mater.*, **20**, 1414 (2021).
10. H. Wang, U. Ail, R. Gabrielsson, M. Berggren, and X. Crispin, *Adv. Energy Mater.*, **5**, 1500044 (2015).
11. S. Sun, M. Li, X.-L. Shi, and Z.-G. Chen, *Adv. Energy Mater.*, **13**, 2203692 (2023).
12. D. Wang, J. Ding, X. Dai, L. Xiang, D. Ye, Z. He, F. Zhang, S.-H. Jung, J. K. Lee, C.-a. Di, and D. Zhu, *Adv. Mater.*, **35**, 2208215 (2023).
13. J. Han, Y. J., E. Tiernan, C. Ganley, Y. Song, T. Lee, A. Chiu, P. McGuiggan, N. Adams, P. Clancy, T. P. Russell, P. E. Hopkins, S. M. Thon, J. D. Tovar, and H. E. Katz, *Angew. Chem. Int. Ed.*, **62**, e202219313 (2023).
14. C.-Y. Yang, Y.-F. Ding, D. Huang, J. Wang, Z.-F. Yao, C.-X. Huang, Y. Lu, H.-I. Un, F.-D. Zhuang, J.-H. Dou, C.-a. Di, D. Zhu, J.-Y. Wang, T. Lei, and J. Pei, *Nat. Commun.*, **11**, 3292 (2020).
15. S. Deng, C. Dong, J. Liu, B. Meng, J. Hu, Y. Min, H. Tian, J. Liu, and L. Wang, *Angew. Chem. Int. Ed.*, **135**, e202216049 (2023).
16. B. Yu, J. Duan, H. Cong, W. Xie, R. Liu, X. Zhuang, H. Wang, B. Qi, M. Xu, Z. L. Wang, and J. Zhou, *Science*, **370**, 342 (2020).
17. C.-G. Han, X. Qian, Q. Li, B. Deng, Y. Zhu, Z. Han, W. Zhang, W. Wang, S.-P. Feng, G. Chen, and W. Liu, *Science*, **368**, 1091 (2020).
18. W. Zhang, L. Qiu, Y. Lian, Y. Dai, S. Yin, C. Wu, Q. Wang, W. Zeng, and X. Tao, *Adv. Sci.*, **10**, 2303407 (2023).
19. K. Jiang, J. Jia, Y. Chen, L. Li, C. Wu, P. Zhao, D. Y. Zhu, and W. Zeng, *Adv. Energy Mater.*, **13**, 2204357 (2023).
20. Z. Liu, H. Cheng, Q. Le, R. Chen, J. Li, and J. Ouyang, *Adv. Energy Mater.*, **12**, 2200858 (2022).
21. D.-H. Kim, Z. A. Akbar, Y. T. Malik, J.-W. Jeon, and S.-Y. Jang, *Nat. Commun.*, **14**, 3246 (2023).