

Redes orgánicas covalentes electroactivas como electrodos orgánicos para baterías recargables

Electroactive covalent organic frameworks as organic electrodes for rechargeable batteries

Sara Trigo, Paula Escamilla y Manuel Souto*

CiQUS, Centro Singular de Investigación en Química Biolóxica e Materiais Moleculares, Departamento de Química-Física, Universidade de Santiago de Compostela.

PALABRAS CLAVE:

Redes orgánicas covalentes
Materiales electroactivos
Electrodos orgánicos
Baterías orgánicas
Baterías de litio

RESUMEN:

Los materiales orgánicos electroactivos han despertado un gran interés como electrodos alternativos para baterías de iones metálicos, debido a su alta capacidad teórica, amplia disponibilidad de recursos y sostenibilidad. En particular, las redes orgánicas covalentes (COFs) redox-activas han surgido recientemente como electrodos prometedores gracias a sus propiedades electroquímicas ajustables, su insolubilidad en electrolitos y su gran versatilidad estructural. En este artículo se revisan algunas estrategias para mejorar la densidad energética de los electrodos basados en COFs, desde la perspectiva del diseño molecular hasta la optimización del electrodo. Asimismo, se abordan otros aspectos relevantes, como la estabilidad y la escalabilidad. Finalmente, se destacan los principales desafíos para mejorar su rendimiento y las perspectivas futuras de las baterías orgánicas basadas en COFs.

KEYWORDS:

Covalent organic frameworks
Electroactive materials
Organic electrode materials
Organic batteries
Lithium batteries

ABSTRACT:

Electroactive organic materials have attracted considerable interest as alternative electrodes for metal-ion batteries due to their high theoretical capacity, resource availability, and sustainability. In particular, redox-active covalent organic frameworks (COFs) have recently emerged as promising electrodes owing to their tunable electrochemical properties, insolubility in electrolytes, and high structural versatility. This article reviews recent strategies for improving the energy density of COF-based electrodes from the perspective of molecular design and electrode optimization. Other relevant aspects, such as stability and scalability, are also discussed. Finally, the main challenges to further enhance their performance and the future prospects of COF-based organic batteries are highlighted.

Introducción

Los dispositivos de almacenamiento de energía son fundamentales para impulsar la transición energética, ya que permiten almacenar la electricidad generada por fuentes renovables. Las **baterías de iones de litio (LIBs)** son particularmente promotoras debido a su amplio uso en la electrónica portátil y en los vehículos eléctricos.^[1,2] Sin embargo, presentan importantes limitaciones en términos de eficiencia y disponibilidad de materias primas. Por ejemplo, los óxidos de metales de transición, comúnmente empleados como cátodos, muestran una densidad energética limitada. Además, su producción a gran escala depende de materiales críticos como el cobalto, cuya extracción plantea problemas ambientales, éticos y de disponibilidad de recursos.^[3-6]

Los **materiales orgánicos electroactivos** han emergido como una alternativa prometedora a los electrodos inorgánicos debido a su gran disponibilidad de recursos, sostenibilidad y versatilidad química.^[4,7-12] Estos compuestos están formados por elementos abundantes (carbono, oxígeno, nitrógeno, etc.) y pueden mostrar capacidades específicas teóricas superiores a la de los electrodos inorgánicos convencionales. No obstante,

algunas moléculas orgánicas pequeñas presentan una alta solubilidad en los electrolitos, lo que provoca una pérdida de capacidad y reduce la vida útil de las baterías.^[9] Una estrategia eficaz para resolver este problema consiste en unir los monómeros electroactivos para formar **polímeros orgánicos**, que suelen ser insolubles en electrolitos tanto orgánicos como acuosos.^[13,14]

Desde finales de la década de 1970, se investigaron numerosos polímeros conductores como electrodos para LIBs.^[15] Algunas empresas desarrollaron baterías comerciales basadas en polipirrol y polianilina,^[14] pero fueron descatalogadas por problemas de rendimiento y autodescarga en comparación con LIBs comercializadas por Sony en 1991.^[16] Tras un periodo de menor interés, el descubrimiento de baterías basadas en radicales orgánicos,^[17,18] entre otros avances, reactivó la investigación en este campo alrededor de 2008.^[3] Desde entonces, se ha desarrollado una gran cantidad de nuevos materiales, incluidos polímeros orgánicos porosos electroactivos,^[9] se ha investigado el mecanismo de transporte de carga mediante el uso de técnicas de caracterización avanzadas y se han utilizado métodos de *machine learning* para acelerar el descubrimiento de electrodos orgánicos prometedores.^[19,21]

CÓMO CITAR: S. Trigo, P. Escamilla, M. Souto. *An. Quím. RSEQ* 2026, 122, 39-47, <https://doi.org/10.62534/rseq.aq.2089>

* C-e: manuel.souto.salom@usc.es

Entre estos nuevos materiales, las **redes orgánicas covalentes (COFs)** destacan por ser polímeros porosos y cristalinos formados por bloques de construcción orgánicos unidos mediante enlaces covalentes, dando lugar a estructuras bidimensionales (2D) o tridimensionales (3D).^[22-25] La topología y el tamaño de los poros de estas estructuras pueden diseñarse según los ligandos utilizados, lo que permite ajustar sus propiedades físicas. En particular, los COFs basados en moléculas orgánicas electroactivas han emergido como electrodos orgánicos prometedores para baterías recargables,^[26-28,33] ya que combinan estabilidad e insolubilidad en electrolito, orden estructural y capacidad para facilitar el movimiento de iones a través de sus canales porosos. Además, la posibilidad de introducir conjugación y mejorar la deslocalización electrónica a través de su estructura puede contribuir a aumentar la conductividad electrónica.^[27] Su naturaleza cristalina también permite que su estructura sea diseñada mediante modelado computacional, lo cual representa una ventaja en el desarrollo de nuevos COFs en comparación con los polímeros amorfos convencionales.

Al igual que otros polímeros redox convencionales, los COFs electroactivos pueden participar de manera reversible en los procesos electroquímicos. En el caso de baterías de litio, en las que se emplea un COF redox-activo tipo *n* como cátodo, los centros electroactivos del COF se reducen durante el proceso de descarga, al mismo tiempo que los cationes Li^+ se incorporan en los poros de la estructura para equilibrar la carga negativa. Durante el proceso de carga, el COF regresa a su estado neutro, mientras que los iones Li^+ son liberados al electrolito.^[28]

Los COFs han sido estudiados como electrodos en diferentes tipos de baterías de iones metálicos,^[34] (Li^+ ,^[35,36] Na^+ ,^[37,38] K^+ ,^[39,40] Mg^{2+} ,^[41] Ca^{2+} ,^[42] Zn^{2+} ,^[43] Al^{3+} ,^[44,45] etc.), así como en baterías de litio-azufre (Li-S).^[46-49] En la Figura 1 se presentan una línea temporal con los principales hitos en la utilización de COFs en diferentes tipos de baterías. También se han incluido los primeros *covalent triazine frameworks* (CTFs) utilizados en baterías, que son polímeros orgánicos porosos con una estructura generalmente más amorfa.

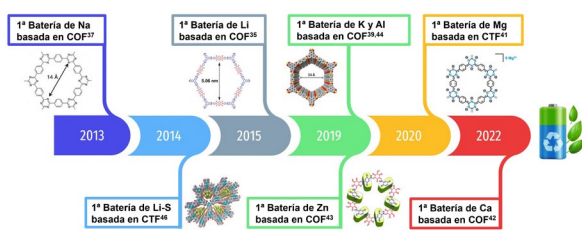


Figura 1. Esquema con una visión general y escala temporal del desarrollo de electrodos basados en redes orgánicas covalentes (COF) y *covalent triazine frameworks* (CTF) para baterías. Adaptado de Ref. [50] con permiso de Royal Society of Chemistry.

Este artículo presenta una revisión de las estrategias de diseño químico más recientes para mejorar el rendimiento electroquímico de los COFs como materiales activos en baterías. Se abordan algunos principios clave para el diseño molecular de cátodos basados en COFs, la optimización del procesado de los materiales y la composición de los electrodos y electrolitos, así como los desafíos actuales y las perspectivas futuras en el uso de estos materiales para baterías recargables.

Diseño molecular de COFs redox-activos para mejorar el rendimiento electroquímico

Densidad energética

Las baterías recargables se evalúan principalmente en función de su densidad energética, densidad de potencia y estabilidad.^[8] La densidad energética (E_d), expresada en la Ecuación (1), está directamente relacionada con la capacidad específica (Q) y el potencial (E). Por lo tanto, para mejorar el rendimiento de la batería, ambos parámetros deben optimizarse mediante el diseño molecular, la composición de los electrodos y la optimización de los electrolitos, entre otros factores.^[8,9]

$$E_d = E \times Q \quad (1)$$

Tanto la capacidad específica teórica como el potencial pueden ajustarse mediante la selección adecuada de ligandos orgánicos electroactivos,^[26] así como mediante el diseño estructural.^[23] No obstante, las capacidades prácticas de los materiales pueden verse afectadas por múltiples factores, como la composición del electrodo, la conductividad electrónica, la difusión de iones, los aglutinantes, el tamaño de las partículas o el tipo de electrolito utilizado.

Las capacidades específicas prácticas máximas (independientemente de la densidad de corriente utilizada) y el potencial medio de descarga reportados para algunos cátodos basados en COFs para LIBs se resumen en la Figura 2.^[35,36,50-66] Como referencia, se indican también la capacidad práctica y el potencial de LiCoO_2 como cátodo inorgánico representativo. Algunos de los COFs mencionados en la Figura 2 serán discutidos en las secciones dedicadas a la Capacidad y Potencial.

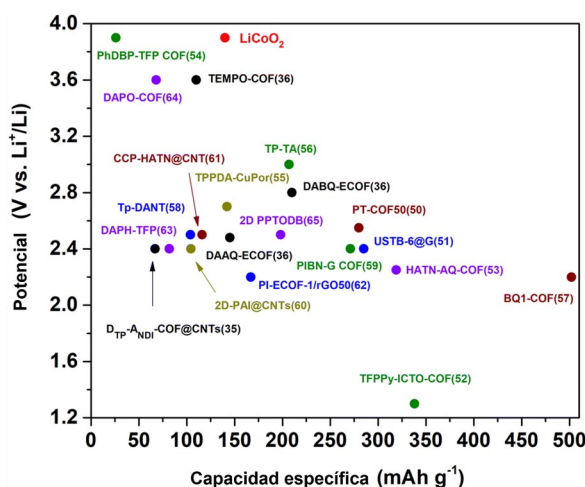


Figura 2. Potencial medio y capacidades específicas de algunos COFs electroactivos investigados como cátodos para LIBs. La capacidad específica se refiere a la máxima capacidad reversible reportada (independientemente de la densidad de corriente utilizada). Adaptado de Ref. [50]. con permiso de Royal Society of Chemistry.

Capacidad específica

De acuerdo con la Ecuación (1), para alcanzar una alta densidad energética es necesaria una elevada capacidad específica, definida como la carga eléctrica que puede almacenarse por unidad de masa del material activo.^[13] La capacidad específica teórica (Q) de un material de electrodo puede calcularse utilizando la ecuación (2).

$$Q_t = \frac{n \times F}{3,6 \times M_w} = 26\,801 \times \frac{n}{M_w} (\text{mAh g}^{-1}) \quad (2)$$

En esta ecuación, n representa el número de electrones transferidos en cada reacción redox, F corresponde a la constante de Faraday ($\text{C}\cdot\text{mol}^{-1}$) y M_w a la masa molar ($\text{g}\cdot\text{mol}^{-1}$).^[13] Por tanto, para incrementar la capacidad específica, es necesario maximizar el número de centros redox activos y, al mismo tiempo, minimizar la masa molar inactiva.

La capacidad teórica de los COFs puede incrementarse mediante la selección adecuada de ligandos electroactivos.^[26] Por ejemplo, la sustitución de antraquinona (AQ) por benzoquinona (BQ), manteniendo el mismo número de centros activos pero reduciendo la masa molar en la estructura de un COF, permite aumentar la capacidad teórica de 155 a 221 $\text{mAh}\cdot\text{g}^{-1}$ (Figura 3).^[30,36] Este valor puede aumentarse incluso hasta 271 $\text{mAh}\cdot\text{g}^{-1}$ al incorporar unidades de pireno-4,5,9,10-tetraona (PTO), ya que en cada unidad PTO participan más electrones en la reacción redox ($4e^-$).^[51]

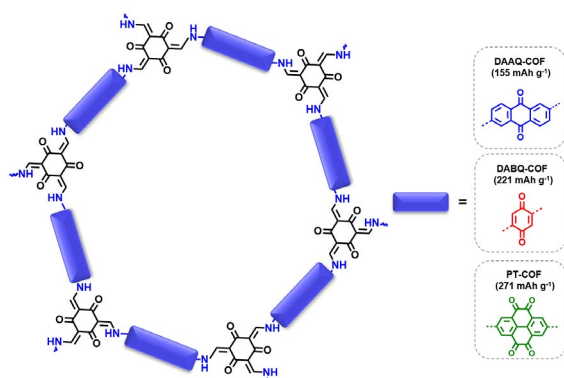


Figura 3. Representación esquemática del DAAQ-COF, DABQ-COF y PT-COF y sus capacidades teóricas correspondientes. Adaptado de Ref. [50]. con permiso de Royal Society of Chemistry.

Otras estrategias para mejorar la capacidad incluyen el uso de ligandos más ligeros y electroactivos. En el PI-COF-1, sustituir una unidad inactiva por trifenilamina reduce el peso molecular y aumenta la capacidad teórica.^[63] Por lo tanto, la conexión de bloques de construcción lineales redox-activos con otras unidades electroactivas multitópicas es una estrategia eficaz para aumentar la densidad de sitios activos, que además puede dar lugar a diversas topologías y tamaños de poro (Figura 4).

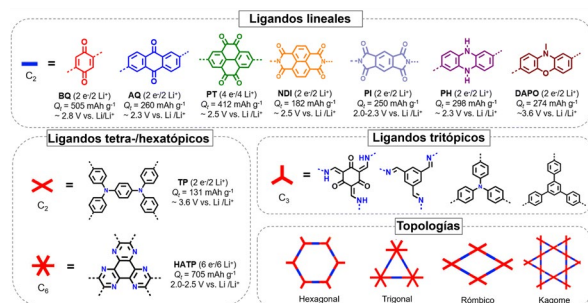


Figura 4. Biblioteca de algunos bloques orgánicos electroactivos representativos (capacidades teóricas y potenciales medios), enlaces y topologías utilizados para la síntesis de cátodos orgánicos basados en COF redox-activos para LIBs. Adaptado de Ref. [50]. con permiso de Royal Society of Chemistry.

Además, la geometría y la longitud de los ligandos son factores determinantes para la topología y el tamaño de los poros, lo que puede influir en la difusión del electrolito y, por ende, en la capacidad práctica. No obstante, los COFs con poros de menor tamaño pueden dar lugar a estructuras más rígidas y ser más eficientes para el transporte de electrones; por lo tanto, el diámetro del poro necesita ser optimizado.^[33]

Como se observa en la Figura 2, la mayoría de los COFs estudiados hasta el momento son de tipo n (que se analiza más adelante), con voltajes no superiores a 3 V vs Li/Li^+ y que presentan capacidades específicas relativamente elevadas. La capacidad práctica más alta registrada hasta la fecha entre los cátodos basados en COF para LIBs es de 502 $\text{mAh}\cdot\text{g}^{-1}$ (a 0.05 C) para el BQ1-COF.^[58] Este notable aumento de capacidad se debe a su alta densidad de grupos funcionales activos ($\text{C}=\text{O}$, $\text{C}=\text{N}$) y a su buena conductividad eléctrica.^[58]

Cabe señalar que las capacidades reportadas suelen referirse únicamente al COF como material activo, sin incluir el resto de electrodo (aglutinantes, aditivos, etc.). Aun así, varios COFs redox activos muestran capacidades superiores a las de los cátodos inorgánicos convencionales (ver Figura 2), posicionándose entre los más prometedores.^[14,58,59]

Potencial

Para aumentar la densidad energética de una batería, no solo es importante la capacidad del material, sino también la diferencia de potencial entre el cátodo y el ánodo (Ecuación 3). Esta diferencia se obtiene mediante el uso de materiales con potenciales de trabajo muy distintos: alto para el cátodo y bajo para el ánodo.

$$E = \text{potencial cátodo} - \text{potencial ánodo} \quad (3)$$

Los materiales orgánicos empleados como electrodos pueden clasificarse en tres categorías según su comportamiento redox: tipo n , que se reducen y se combinan con cationes como Li^+ (p. ej., quinonas, imidas); tipo p , que se oxidan y se combinan con aniones del electrolito (p. ej., fenoxazinas, aminas); y tipo *bipolar*, que pueden oxidarse o reducirse según el voltaje aplicado (p. ej., radicales orgánicos).^[9,62]

Generalmente, los materiales de tipo p suelen ser usados como cátodos porque operan a voltajes más altos ($>3\text{V}$ vs Li/Li^+), mientras que los de tipo n pueden actuar como ánodos debido a su bajo potencial ($<3\text{V}$), aunque presentan mayor capacidad.^[9] Algunos COFs de tipo p , como los basados en fenoxazina,^[65] (3.6 V), dibenzopentaleno,^[55] (3.9 V) o tetratiafulvaleno (TTF) (3.6 V) (Figura 5),^[67] pueden alcanzar altos voltajes, pero su capacidad es limitada. Por el contrario, los COFs con mayor capacidad ($>250\text{mAh}\cdot\text{g}^{-1}$) suelen ser de tipo n , aunque no suelen superar los 2.5 V.

Por tanto, el desafío actual consiste en diseñar COFs que combinen alta capacidad específica y alto potencial. Sorprendentemente, compuestos prometedores como la fenotiazina, ampliamente estudiada en baterías orgánicas, aún no se han explorado de manera extensa en COFs.

COFs bipolares

Uno de los principales retos en el desarrollo de COFs para baterías recargables es lograr simultáneamente una alta capacidad específica y un gran potencial, con el objetivo de alcanzar densidades energéticas elevadas. Una estrategia prometedora para ello es combinar unidades de tipo n y de tipo p en la misma estructura, dando lugar a materiales bipolares.

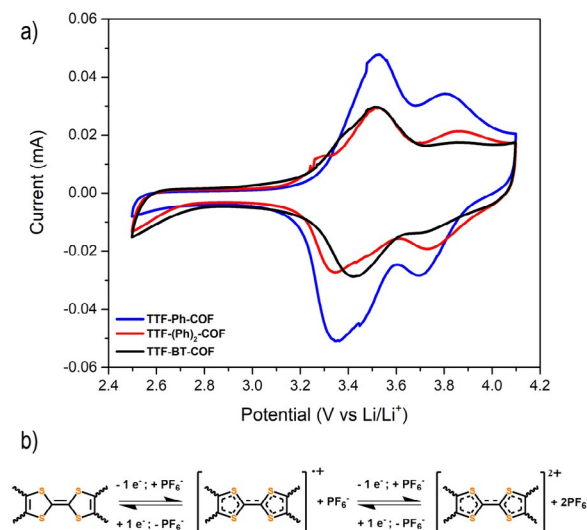


Figura 5. (a) Voltamperometría cíclica de varios COF basados en unidades TTF investigados como cátodos utilizando LiPF_6 en carbonato de etileno/carbonato de dimetilo (1 M) como electrolito a una velocidad de barrido de 0.5 mV s^{-1} . (b) Mecanismo redox del grupo TTF en los TTF-COF. Adaptado de Ref. [67]. con permiso de Royal Society of Chemistry.

Ya se han reportado varios ejemplos, como el BPOE, un material bipolar usado como cátodo en baterías de sodio, con una amplia ventana de trabajo de 4.1 a 1.3 V.^[37] Este concepto también se demostró mediante la síntesis de un COF TP-TA, con enlaces imina y topología *Kagome*.^[57] Este COF mostró una capacidad específica de 207 mAh g^{-1} (a 200 mA g^{-1}), un potencial medio de 3.6 V vs Li/Li^+ y una excelente estabilidad (93% capacidad retenida tras 1500 ciclos). Otro ejemplo representativo de esta estrategia de diseño es el TPPDA-CuP COF, compuesto por unidades tetrafenil-*p*-fenilendiamina (TP) de tipo *p* y porfirinas (bipolares), que proporciona un alto potencial redox y un gran número de centros redox activos.^[56] Este sistema presenta un potencial medio de 2.7 V vs Li/Li^+ y una capacidad específica de 142 mAh g^{-1} (a 60 mA g^{-1}).

Otro COF bipolar más reciente, basado en imidas y triazinas y utilizado como cátodo en baterías de aluminio, mostró una capacidad de 132 mAh g^{-1} (a 100 mA g^{-1}) y una retención de capacidad del 97% tras 4000 ciclos.^[45] Además, un polímero orgánico poroso basado en unidades triazina y viologeno permite múltiples modos de almacenamiento de iones, como $\text{PF}_6^-/\text{Li}^+$, $\text{OTF}^-/\text{Mg}^{2+}$ y $\text{OTF}^-/\text{Zn}^{2+}$.^[68] Aunque estos materiales aún se encuentran en fase de desarrollo, los COFs bipolares representan una vía muy prometedora para el diseño de baterías más versátiles y duraderas en el futuro.

Densidad de potencia

La densidad de potencia es un parámetro clave que refleja la velocidad de carga y descarga de una batería. En el caso de los COFs, este rendimiento depende de su capacidad para transportar iones y electrones de forma eficiente.^[8] Para mejorar esta propiedad, es fundamental optimizar el transporte de iones y electrones durante los ciclos de carga y descarga. Este transporte depende tanto de aspectos intrínsecos (como el diseño molecular del COF) como de factores extrínsecos (electrolito, aditivos conductores, procesamiento, etc.), los cuales deben optimizarse para mejorar la conductividad eléctrica e iónica (ver Figura 6).

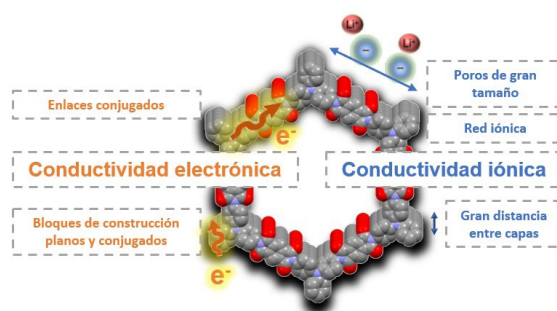


Figura 6. Resumen de algunas estrategias de diseño molecular para mejorar la conductividad electrónica e iónica en los COF. Adaptado de Ref. [50]. con permiso de Royal Society of Chemistry.

Los COFs 2D presentan normalmente una baja conductividad electrónica. Para mejorar el transporte de electrones, se han explorado diversas estrategias,^[27] como el uso de ligandos planos y conjugados, que favorecen una mejor deslocalización electrónica. Por ejemplo, el TFPPy-ICTO-COF,^[69] basado en sistemas conjugados y enlaces vinileno, ha alcanzado una de las conductividades más altas ($10^{-3} \text{ S cm}^{-1}$) y una excelente capacidad a altas velocidades sin necesidad de aditivos conductores.

La conductividad iónica también es crucial para mejorar el rendimiento a altas velocidades de carga y descarga en los COFs. Esto puede lograrse mediante el diseño químico, ajustando el tamaño de los poros y su organización estructural, lo que facilita la difusión de los iones durante el funcionamiento de la batería. Por ejemplo, los COFs con poros más amplios, como el HATN-AQ-COF (3.8 nm),^[54] permiten una mejor utilización de los sitios activos a altas tasas de corriente (63% a 10 C) en comparación con COFs de poros más pequeños como el BQ1-COF (1.4 nm) que solo alcanza un 22% a 10 C.^[58] Esto se debe a que los poros más pequeños dificultan la movilidad de iones metálicos grandes. El diseño de COF jerárquicos con mesoporos y microporos ha demostrado facilitar el transporte de iones.^[54] Asimismo, aumentar la distancia entre capas favorece la conductividad iónica, ya que las capas apiladas suelen dificultarla. La conductividad también puede mejorarse mediante el diseño de estructuras catiónicas,^[71] introduciendo grupos sulfonato,^[72] o la posfuncionalización de los canales.^[73,74]

Optimización de electrodos y electrolitos

Influencia del electrolito y del aglutinante en el rendimiento electroquímico

La elección del electrolito y del aglutinante tiene un impacto directo en el rendimiento real de los electrodos en las baterías, ya que afecta a la estabilidad, la capacidad práctica y la eficiencia de los sitios activos.^[75] Uno de nuestros estudios con el DAAQ-TFP-COF,^[76] un COF basado en antraquinona, demostró que usar electrolitos convencionales con carbonatos (como LiPF_6) empeora el rendimiento debido a reacciones secundarias no deseadas. En cambio, la utilización de bis(trifluorometanosulfonil)imida de litio (LiTFSI) como electrolito en disoluciones a base de éter mejora notablemente la capacidad y la estabilidad (Figura 7). Además, cambiar el aglutinante de fluoruro de polivinilideno (PVDF) a politetrafluoroetileno (PTFE) permitió alcanzar capacidades prácticas cercanas a la teórica, gracias a la estructura porosa del PTFE, que facilita el transporte iónico.

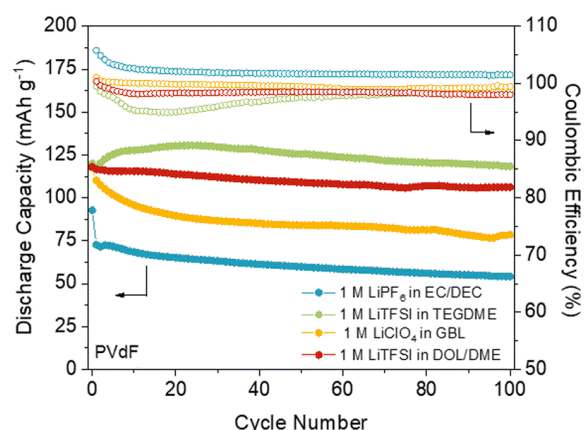


Figura 7. Estabilidad cíclica (100 primeros ciclos) del electrodo DAAQ-TFP-COF con PVdF como aglutinante a 150 mA g^{-1} (1C) en cuatro electrolitos diferentes. Adaptado de Ref. [76]. con permiso de Royal Society of Chemistry.

Esta influencia del electrolito también se observó al utilizar el DAAQ-TFP-COF como cátodo en baterías de magnesio.^[76] Por tanto, además del diseño del material activo, la elección del electrolito y del aglutinante es crucial para optimizar el funcionamiento de las baterías.

Hibridación con aditivos conductores

Muchos materiales orgánicos electroactivos, incluidos los COFs, presentan una baja conductividad electrónica, lo que limita su rendimiento en baterías.^[9] Para compensar esta limitación, se suelen añadir aditivos conductores, como nanotubos de carbono, grafeno reducido o polímeros conductores.^[77] Aunque estos aditivos pueden mejorar la densidad de potencia y la estabilidad, también reducen la capacidad específica y la densidad energética del electrodo, ya que añaden masa inactiva sin aportar carga útil.

Concretamente, en los electrodos de COFs empleados en LIBs, la cantidad de aditivo conductor suele oscilar entre el 10 y el 70 % del peso, dependiendo de la conductividad intrínseca del COF. Para aumentar dicha conductividad, una estrategia utilizada comúnmente consiste en mezclar los COFs con nanotubos de carbono (CNTs),^[35, 51, 78-80] óxido de grafeno reducido,^[52, 81] o polímeros conductores.^[82] En general, estos compuestos mejoran la utilización de los sitios activos, permiten un alto rendimiento a velocidades elevadas y pueden aumentar la estabilidad cíclica. Sin embargo, el uso excesivo de estos aditivos conductores inactivos puede reducir significativamente la densidad energética de la batería. Por ello, los principales desafíos siguen siendo mejorar la conductividad intrínseca de los COFs y desarrollar estrategias que permitan disminuir la cantidad de aditivos conductores en los electrodos.

Exfoliación de COFs en nanoláminas

De forma habitual, los COFs sintetizados (*bulk* COFs) se utilizan directamente como materiales activos y se mezclan con carbono conductor (aditivo) y aglutinante para preparar los electrodos. Sin embargo, el procesamiento de materiales orgánicos electroactivos para reducir el tamaño de partícula o aumentar el área superficial constituye una estrategia eficaz para mejorar la capacidad práctica.^[8] La mayoría de los *bulk* COFs presentan fuertes interacciones π - π entre capas, lo que dificulta la entrada de los iones a los sitios activos, lo que limita la capacidad práctica. Para aumentar el número de sitios activos accesibles y

facilitar la difusión iónica, mejorando así el rendimiento de las baterías, la exfoliación de COFs 2D en nanoláminas de pocas capas ha sido ampliamente investigado.^[36, 38, 52] Existen diversas estrategias para la preparación de nanoláminas de COFs, incluyendo métodos *top-down* basados en diferentes tipos de exfoliación (mecánica, química), y métodos *bottom-up* basados en la preparación de nanoestructuras ordenadas.^[29, 83, 84] En el caso particular de las nanoláminas de COFs, se han empleado distintas técnicas de exfoliación, entre ellas: mecánica (molienda con bolas,^[36,63] exfoliación asistida por ultrasonido,^[38,85] y trituración); química (empleando agentes externos como anhídrido maleico, MnO_2 , ácidos, reacciones tiol-eno) y autoexfoliación.^[86,91]

La relación entre el espesor de los materiales y su capacidad práctica ha sido estudiada en varios COFs.^[92] Diversas técnicas de exfoliación mecánica fueron usadas para obtener diferentes espesores: trituración (100-250 nm), molienda con bolas (100-180 nm) y exfoliación asistida por ultrasonido en ácido metanosulfónico (4-12 nm). Las muestras más delgadas presentaron una capacidad específica mayor, alcanzando hasta 500 mAh g^{-1} a 50 mA g^{-1} , en comparación con las muestras más gruesas, que alcanzaron valores de hasta 182 mAh g^{-1} en las mismas condiciones. La reducción del espesor también disminuye la resistencia del electrodo, pasando de 428Ω en materiales más gruesos a 146Ω en los más delgados. No obstante, la preparación de nanoláminas presenta algunos desafíos que deben resolverse. Las técnicas actuales suelen producir nanoláminas con un rango de espesores relativamente amplio, lo que dificulta un control preciso y afecta la reproducibilidad de los resultados. Además, los métodos de exfoliación suelen ofrecer bajos rendimientos, lo que limita su escalabilidad, y pueden afectar negativamente la cristalinidad del material, comprometiendo su estabilidad y rendimiento electroquímico a largo plazo.

Otros parámetros

Estabilidad cíclica

Los compuestos orgánicos pueden presentar problemas de solubilidad en electrolitos (especialmente las moléculas pequeñas), lo que conduce a reacciones secundarias indeseadas, autodescarga y una estabilidad cíclica limitada. Al evaluar la estabilidad de los electrodos orgánicos, suele tomarse como referencia la capacidad de retención de electrodos inorgánicos como LiCoO_2 o LiMn_2O_4 , que mantienen más del 80 % de su capacidad después de más de 1000 ciclos.^[9] Se han reportado electrodos basados en COFs con capacidades de retención similares o incluso superiores después de 1000 ciclos, especialmente aquellos basados en enlaces tipo β -cetoenamina,^[36,51] (ciano)vinileno,^[67,77] fenacina,^[46] imida,^[45] y piperacina (Figura 8),^[93,94] los cuales proporcionan estructuras más estables. Por el contrario, enlaces basados en reacciones más reversibles, como los ésteres de boronato o las condensaciones de iminas,^[95,96] tienden a formar estructuras menos estables. Cabe destacar que la estabilidad y la cristalinidad están inversamente relacionados: un aumento en la reversibilidad de la reacción favorece una mayor cristalinidad, permitiendo la corrección de defectos durante la formación de enlaces, pero a costa de una menor estabilidad estructural.^[96] La combinación de COFs con substratos conductores insolubles (como los CNTs) también puede ayudar a mejorar la estabilidad.^[8,97] Asimismo, un aspecto clave para incrementar la estabilidad cíclica de los COFs es la optimización del electrolito empleado (como se ha visto anteriormente).^[76]

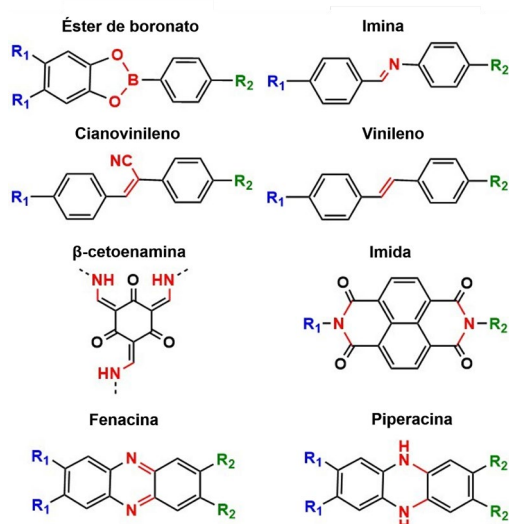


Figura 8. Algunos enlaces típicos empleados para la síntesis de COF utilizados como electrodos en baterías recargables. Adaptado de Ref. [50]. con permiso de Royal Society of Chemistry.

Escalabilidad

La evaluación de la escalabilidad y la viabilidad de producción de los electrodos orgánicos es esencial.^[8] Diversas estrategias se están explorando para alcanzar este objetivo, como el empleo de fibras conductoras iónicas basadas en COF,^[98] que demuestran la posibilidad de procesar COFs en formatos continuos a gran escala. Algunos electrodos orgánicos ya se han fabricado a escala con un coste relativamente bajo, empleando altas cargas de masa y *pouch cells*.^[99] La técnica más común para la síntesis de COFs es el método solvotermal, que suele requerir altas temperaturas (entre 120 y 150 °C), en presencia de ácidos y disolventes con elevados puntos de ebullición.^[95] Sin embargo, se han propuesto métodos de síntesis más sostenibles, como la sustitución de los disolventes orgánicos por agua,^[100, 101] el uso de CO₂ supercrítico,^[102] la síntesis sin disolventes o la síntesis asistida por microondas, que permite reducir significativamente los tiempos de reacción.^[103] Estudios recientes han informado sobre la producción escalable y sostenible de nanoláminas de COFs, con aplicaciones y de gran relevancia.^[104] No obstante, debido al elevado coste de producción de los electrodos orgánicos y a la ausencia de métodos de síntesis optimizados, la escalabilidad del proceso deberá mejorarse considerablemente para alcanzar la viabilidad comercial.

Conclusiones

La irrupción de COFs electroactivos ha revitalizado el desarrollo de electrodos orgánicos para baterías recargables, gracias a su estructura cristalina y canales ordenados, que facilitan la difusión iónica y permiten predecir sus propiedades.

En términos de densidad energética, los COFs de tipo *n* muestran capacidades específicas superiores a 500 mA g⁻¹, superando a muchos electrodos inorgánicos convencionales. Por su parte, los COFs de tipo *p* alcanzan potenciales elevados (hasta 3.9 V vs Li/Li⁺), aunque presentan capacidades específicas más limitadas. La combinación de ambos tipos en COFs bipolares surge como una estrategia prometedora para integrar simultáneamente altos potenciales y capacidades.

La baja conductividad electrónica de los COFs continúa siendo una de las principales limitaciones para el desempeño a altas velocidades, por lo que se requieren estrategias de di-

seño molecular que promuevan la deslocalización electrónica y mejoren el transporte de carga. Por otra parte, la necesidad de aditivos conductores reduce la densidad energética, mientras que la conductividad iónica puede optimizarse mediante un control preciso de la porosidad. La selección adecuada de electrolitos, aglutinantes y sustratos conductores (como grafeno, nanotubos o polímeros conductores) resulta fundamental para mejorar la capacidad práctica y la estabilidad electroquímica del electrodo, aunque el uso excesivo de aditivos conductores puede disminuir la densidad energética global.

El desarrollo de nuevas metodologías para obtener COFs en forma de *nanoláminas* ofrece una vía prometedora para incrementar la accesibilidad de los sitios redox y mejorar el rendimiento electroquímico. Desde una perspectiva molecular, el principal desafío reside en diseñar COFs que integren unidades redox activas capaces de proporcionar simultáneamente altos potenciales y capacidades, minimizando la cantidad de componentes inactivos y optimizando la porosidad para facilitar la difusión iónica. El uso de herramientas computacionales, como el *machine learning* y simulaciones de dinámica molecular, pueden contribuir al diseño racional de estos materiales. Aunque la estabilidad ha mejorado notablemente, aún son necesarios avances en la formación de enlaces covalentes más robustos que no condicionen la cristalinidad, así como en la escalabilidad, el coste y la reciclabilidad para garantizar su viabilidad comercial. En conjunto, los avances recientes posicionan a los COFs electroactivos como materiales de gran potencial para baterías recargables, incluidas las multivalentes,^[76,105] impulsando una nueva etapa en el desarrollo de electrodos orgánicos.

Bibliografía

- [1] J. B. Goodenough, *Nat. Electron.* **2018**, 1(204), <https://doi.org/10.1038/s41928-018-0048-6>.
- [2] F. Wu, J. Maier, Y. Yu, *Chem. Soc. Rev.* **2020**, 49, 1569-1614, <https://doi.org/10.1039/C7CS00863E>.
- [3] M. Armand, J.-M. Tarascon, *Nature* **2008**, 451, 652-657, <https://doi.org/10.1038/451652a>.
- [4] Z. Song, H. Zhou, *Energy Environ. Sci.* **2013**, 6, 2280-2301, <https://doi.org/10.1039/C3EE40709H>.
- [5] A. Zeng, W. Chen, K. D. Rasmussen, X. Zhu, M. Lundhaug, D. B. Müller, J. Tan, J. K. Keiding, L. Liu, T. Dai, A. Wang, G. Liu, *Nat. Commun.* **2022**, 13, 1341, <https://doi.org/10.1038/s41467-022-29022-z>.
- [6] É. Lèbre, M. Stringer, K. Svobodova, J. R. Owen, D. Kemp, C. Côte, A. Arratia-Solar, R. K. Valenta, *Nat. Commun.* **2020**, 11, 4823, <https://doi.org/10.1038/s41467-020-18661-9>.
- [7] T. B. Schon, B. T. McAllister, P.-F. Li, D. S. Seferos, *Chem. Soc. Rev.* **2016**, 45, 6345-6404, <https://doi.org/10.1039/C6CS00173D>.
- [8] Y. Lu, Q. Zhang, L. Li, Z. Niu, J. Chen, *Chem.* **2018**, 4, 2786-2813, <https://doi.org/10.1016/j.chempr.2018.09.005>.
- [9] Y. Lu, J. Chen, *Nat. Rev. Chem.* **2020**, 4, 127-142, <https://doi.org/10.1038/s41570-020-0160-9>.
- [10] A. Banerjee, N. Khossossi, W. Luo, R. Ahuja, *J. Mater. Chem. A* **2022**, 10, 15215-15234, <https://doi.org/10.1039/D2TA00896C>.
- [11] J. Kim, Y. Kim, J. Yoo, G. Kwon, Y. Ko, K. Kang, *Nat. Rev. Mater.* **2022**, 8, 54-70, <https://doi.org/10.1038/s41578-022-00478-1>.
- [12] H. Chen, M. Armand, G. Demailly, F. Dolhem, P. Poizot, J. Tarascon, *ChemSusChem* **2008**, 1, 348-355, <https://doi.org/10.1002/cssc.200700161>.
- [13] S. Muench, A. Wild, C. Friebe, B. Häupler, T. Janoschka, U. S. Schubert, *Chem. Rev.* **2016**, 116, 9438-9484, <https://doi.org/10.1021/acs.chemrev.5b00484>.

- [org/10.1021/acs.chemrev.6b00070](https://doi.org/10.1021/acs.chemrev.6b00070).
- [14] N. Goujon, N. Casado, N. Patil, R. Marcilla, D. Mecerreyes, *Prog. Polym. Sci.* **2021**, *122*, 101449, <https://doi.org/10.1016/j.progpolymsci.2021.101449>.
- [15] H. Shirakawa, E. J. Louis, A. G. MacDiarmid, C. K. Chiang, A. J. Heeger, *J. Chem. Soc., Chem. Commun.* **1977**, 578-580, <https://doi.org/10.1039/C39770000578>.
- [16] A. Yoshino, *Angew. Chem. Int. Ed.* **2012**, *51*, 5798-5800, <https://doi.org/10.1002/anie.201105006>.
- [17] K. Nakahara, S. Iwasa, M. Satoh, Y. Morioka, J. Iriyama, M. Suguro, E. Hasegawa, *Chem. Phys. Lett.* **2002**, *359*, 351-354, [https://doi.org/10.1016/S0009-2614\(02\)00705-4](https://doi.org/10.1016/S0009-2614(02)00705-4).
- [18] T. Janoschka, M. D. Hager, U. S. Schubert, *Adv. Mater.* **2012**, *24*, 6397-6409, <https://doi.org/10.1002/adma.201203119>.
- [19] A. P. Black, A. Sorrentino, F. Fauth, I. Yousef, L. Simonelli, C. Frontera, A. Ponrouch, D. Tonti, M. R. Palacin, *Chem. Sci.* **2023**, *14*, 1641-1665, <https://doi.org/10.1039/D2SC04397A>.
- [20] A. Vizintin, J. Bitenc, A. Kopač Lautar, K. Pirnat, J. Grdadolnik, J. Stare, A. Randon-Vitanova, R. Dominko, *Nat. Commun.* **2018**, *9*, 661, <https://doi.org/10.1038/s41467-018-03114-1>.
- [21] R. P. Carvalho, D. Brandell, C. M. Araujo, *Energy Storage Mater.* **2023**, *61*, 102865, <https://doi.org/10.1016/j.ensm.2023.102865>.
- [22] C. S. Diercks, O. M. Yaghi, *Science* **2017**, *355*, 923, <https://doi.org/10.1126/science.aal1585>.
- [23] M. S. Lohse, T. Bein, *Adv. Funct. Mater.* **2018**, *28*, 1705553, <https://doi.org/10.1002/adfm.201705553>.
- [24] K. Geng, T. He, R. Liu, S. Dalapati, K. T. Tan, Z. Li, S. Tao, Y. Gong, Q. Jiang, D. Jiang, *Chem. Rev.* **2020**, *120*, 8814-8933, <https://doi.org/10.1021/acs.chemrev.9b00550>.
- [25] K. T. Tan, S. Ghosh, Z. Wang, F. Wen, D. Rodríguez-San-Miguel, J. Feng, N. Huang, W. Wang, F. Zamora, X. Feng, A. Thomas, D. Jiang, *Nat. Rev. Methods Primers* **2023**, *3*, 1, <https://doi.org/10.1038/s43586-022-00181-z>.
- [26] M. Souto, K. Strutyński, M. Melle-Franco, J. Rocha, *Chem. Eur. J.* **2020**, *26*, 10912-10935, <https://doi.org/10.1002/chem.202001211>.
- [27] M. Souto, D. F. Perepichka, *J. Mater. Chem. C* **2021**, *9*, 10668-10676, <https://doi.org/10.1039/D1TC00750E>.
- [28] T. Sun, J. Xie, W. Guo, D. Li, Q. Zhang, *Adv. Energy Mater.* **2020**, *10*, 1904199, <https://doi.org/10.1002/aenm.201904199>.
- [29] J. Li, X. Jing, Q. Li, S. Li, X. Gao, X. Feng, B. Wang, *Chem. Soc. Rev.* **2020**, *49*, 3565-3604, <https://doi.org/10.1039/D0CS00017E>.
- [30] Y. Lu, Y. Cai, Q. Zhang, J. Chen, *J. Phys. Chem. Lett.* **2021**, *12*, 8061-8071, <https://doi.org/10.1021/acs.jpcllett.1c02004>.
- [31] D. Zhu, G. Xu, M. Barnes, Y. Li, C. Tseng, Z. Zhang, J. Zhang, Y. Zhu, S. Khalil, M. M. Rahman, R. Verduzco, P. M. Ajayan, *Adv. Funct. Mater.* **2021**, *31*, 2100505, <https://doi.org/10.1002/adfm.202100505>.
- [32] S. Kandambeth, V. S. Kale, O. Shekha, H. N. Alshareef, M. Eddaoudi, *Adv. Energy Mater.* **2022**, *12*, 2100177, <https://doi.org/10.1002/aenm.202100177>.
- [33] S. Haldar, A. Schneemann, S. Kaskel, *J. Am. Chem. Soc.* **2023**, *145*, 13494-13513, <https://doi.org/10.1021/jacs.3c01131>.
- [34] Z. Wang, J. Hu, Z. Lu, *Batter. Supercaps* **2023**, *6*, e202200545, <https://doi.org/10.1002/batt.202200545>.
- [35] F. Xu, S. Jin, H. Zhong, D. Wu, X. Yang, X. Chen, H. Wei, R. Fu, D. Jiang, *Sci. Rep.* **2015**, *5*, 8225, <https://doi.org/10.1038/srep08225>.
- [36] S. Wang, Q. Wang, P. Shao, Y. Han, X. Gao, L. Ma, S. Yuan, X. Ma, J. Zhou, X. Feng, B. Wang, *J. Am. Chem. Soc.* **2017**, *139*, 4258-4261, <https://doi.org/10.1021/jacs.7b02648>.
- [37] K. Sakaushi, E. Hosono, G. Nickerl, T. Gemming, H. Zhou, S. Kaskel, J. Eckert, *Nat. Commun.* **2013**, *4*, 1485, <https://doi.org/10.1038/ncomms2481>.
- [38] S. Gu, S. Wu, L. Cao, M. Li, N. Qin, J. Zhu, Z. Wang, Y. Li, Z. Li, J. Chen, Z. Lu, *J. Am. Chem. Soc.* **2019**, *141*, 9623-9628, <https://doi.org/10.1021/jacs.9b03467>.
- [39] X. Chen, H. Zhang, C. Ci, W. Sun, Y. Wang, *ACS Nano* **2019**, *13*, 3600-3607, [https://doi.org/10.1021/acsnano.9b00165](https://doi.org/10.1021/acs.nano.9b00165).
- [40] X. Luo, W. Li, H. Liang, H. Zhang, K. Du, X. Wang, X. Liu, J. Zhang, X. Wu, *Angew. Chem. Int. Ed.* **2022**, *61*, e202117661, <https://doi.org/10.1002/anie.202117661>.
- [41] R. Sun, S. Hou, C. Luo, X. Ji, L. Wang, L. Mai, C. Wang, *Nano Lett.* **2020**, *20*, 3880-3888, <https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.0c01040>.
- [42] L. Li, G. Zhang, X. Deng, J. Hao, X. Zhao, H. Li, C. Han, B. Li, *J. Mater. Chem. A* **2022**, *10*, 20827-20836, <https://doi.org/10.1039/D2TA05185K>.
- [43] A. Khayum, M. Ghosh, V. Vijayakumar, A. Halder, M. Nurhuda, S. Kumar, M. Addicoat, S. Kurungot, R. Banerjee, *Chem. Sci.* **2019**, *10*, 8889-8894, <https://doi.org/10.1039/C9SC03052B>.
- [44] Q. Zhang, H. Wei, L. Wang, J. Wang, L. Fan, H. Ding, J. Lei, X. Yu, B. Lu, *ACS Appl. Mater. Interfaces* **2019**, *11*, 44352-44359, <https://doi.org/10.1021/acsami.9b16280>.
- [45] Y. Liu, Y. Lu, A. H. Khan, G. Wang, Y. Wang, A. Morag, Z. Wang, G. Chen, S. Huang, N. Chandrasekhar, D. Sabaghi, D. Li, P. Zhang, D. Ma, E. Brunner, M. Yu, X. Feng, *Angew. Chem. Int. Ed.* **2023**, *62*, e202306091, <https://doi.org/10.1002/anie.202306091>.
- [46] H. Liao, H. Ding, B. Li, X. Ai, C. Wang, *J. Mater. Chem. A* **2014**, *2*, 8854-8858, <https://doi.org/10.1039/C4TA00523F>.
- [47] S. Haldar, M. Wang, P. Bhauriyal, A. Hazra, A. H. Khan, V. Bon, M. A. Isaacs, A. De, L. Shupletsov, T. Boenke, J. Grothe, T. Heine, E. Brunner, X. Feng, R. Dong, A. Schneemann, S. Kaskel, *J. Am. Chem. Soc.* **2022**, *144*, 9101-9112, <https://doi.org/10.1021/jacs.2c02346>.
- [48] W. Liu, L. Gong, Z. Liu, Y. Jin, H. Pan, X. Yang, B. Yu, N. Li, D. Qi, K. Wang, H. Wang, J. Jiang, *J. Am. Chem. Soc.* **2022**, *144*, 17209-17218, <https://doi.org/10.1021/jacs.2c07596>.
- [49] B. Hu, J. Xu, Z. Fan, C. Xu, S. Han, J. Zhang, L. Ma, B. Ding, Z. Zhuang, Q. Kang, X. Zhang, *Adv. Energy Mater.* **2023**, *13*, 2301770, <https://doi.org/10.1002/aenm.202301770>.
- [50] R. Dantas, C. Ribeiro, M. Souto, *Chem. Commun.* **2024**, *60*, 138-149, <https://doi.org/10.1039/D3CC04322C>.
- [51] H. Gao, A. R. Neale, Q. Zhu, M. Bahri, X. Wang, H. Yang, Y. Xu, R. Clowes, N. D. Browning, M. A. Little, L. J. Hardwick and A. I. Cooper, *J. Am. Chem. Soc.*, **2022**, *144*, 9434-9442, <https://doi.org/10.1021/jacs.2c02196>.
- [52] X. Liu, Y. Jin, H. Wang, X. Yang, P. Zhang, K. Wang and J. Jiang, *Adv. Mater.*, **2022**, *34*, 2203605, <https://doi.org/10.1002/adma.202203605>.
- [53] X. Xu, S. Zhang, K. Xu, H. Chen, X. Fan and N. Huang, *J. Am. Chem. Soc.*, **2023**, *145*, 1022-1030, <https://doi.org/10.1021/jacs.2c10509>.
- [54] X. Yang, L. Gong, X. Liu, P. Zhang, B. Li, D. Qi, K. Wang, F. He, J. Jiang, *Angew. Chem. Int. Ed.* **2022**, *61*, e202207043, <https://doi.org/10.1002/anie.202207043>.
- [55] J. Sprachmann, T. Wachsmuth, M. Bhosale, D. Burmeister, G. J. Smales, M. Schmidt, Z. Kochovski, N. Grabicki, R. Wessling, E. J. W. List-Kratochvil, B. Esser, O. Dumele, *J. Am. Chem. Soc.* **2023**, *145*, 2840-2851, <https://doi.org/10.1021/jacs.2c10501>.
- [56] L. Gong, X. Yang, Y. Gao, G. Yang, Z. Yu, X. Fu, Y. Wang, D. Qi, Y. Bian, K. Wang, J. Jiang, *J. Mater. Chem. A* **2022**, *10*, 16595-

- 16601, <https://doi.org/10.1039/D2TA03579K>.
- [57] M. Wu, Y. Zhao, R. Zhao, J. Zhu, J. Liu, Y. Zhang, C. Li, Y. Ma, H. Zhang, Y. Chen, *Adv. Funct. Mater.* **2022**, *32*, 2107703, <https://doi.org/10.1002/adfm.202107703>.
- [58] M. Wu, Y. Zhao, B. Sun, Z. Sun, C. Li, Y. Han, L. Xu, Z. Ge, Y. Ren, M. Zhang, Q. Zhang, Y. Lu, W. Wang, Y. Ma, Y. Chen, *Nano Energy* **2020**, *70*, 104498, <https://doi.org/10.1016/j.nanoen.2020.104498>.
- [59] D.-H. Yang, Z.-Q. Yao, D. Wu, Y.-H. Zhang, Z. Zhou, X.-H. Bu, *J. Mater. Chem. A* **2016**, *4*, 18621-18627, <https://doi.org/10.1039/C6TA07606H>.
- [60] Z. Luo, L. Liu, J. Ning, K. Lei, Y. Lu, F. Li, J. Chen, *Angew. Chem. Int. Ed.* **2018**, *57*, 9443-9446, <https://doi.org/10.1002/anie.201805540>.
- [61] G. Wang, N. Chandrasekhar, B. P. Biswal, D. Becker, S. Paasch, E. Brunner, M. Addicoat, M. Yu, R. Berger, X. Feng, *Adv. Mater.* **2019**, *31*, 1901478, <https://doi.org/10.1002/adma.201901478>.
- [62] S. Xu, G. Wang, B. P. Biswal, M. Addicoat, S. Paasch, W. Sheng, X. Zhuang, E. Brunner, T. Heine, R. Berger, X. Feng, *Angew. Chem. Int. Ed.* **2019**, *58*, 849-853, <https://doi.org/10.1002/anie.201812685>.
- [63] Z. Wang, Y. Li, P. Liu, Q. Qi, F. Zhang, G. Lu, X. Zhao, X. Huang, *Nanoscale* **2019**, *11*, 5330-5335, <https://doi.org/10.1039/C9NR00088G>.
- [64] E. Vitaku, C. N. Gannett, K. L. Carpenter, L. Shen, H. D. Abruña, W. R. Dichtel, *J. Am. Chem. Soc.* **2020**, *142*, 16-20, <https://doi.org/10.1021/jacs.9b08147>.
- [65] Z. Meng, Y. Zhang, M. Dong, Y. Zhang, F. Cui, T.-P. Loh, Y. Jin, W. Zhang, H. Yang, Y. Du, *J. Mater. Chem. A* **2021**, *9*, 10661-10665, <https://doi.org/10.1039/D0TA10785A>.
- [66] C. Yao, Z. Wu, J. Xie, F. Yu, W. Guo, Z. J. Xu, D. Li, S. Zhang, Q. Zhang, *ChemSusChem* **2020**, *13*, 2457-2463, <https://doi.org/10.1002/cssc.201903007>.
- [67] G. Valente, R. Dantas, P. Ferreira, R. Grieco, N. Patil, A. Guillem-Navajas, D. Rodríguez-San Miguel, F. Zamora, R. Guntermann, T. Bein, J. Rocha, M. H. Braga, K. Strutynski, M. Melle-Franco, R. Marcilla, M. Souto, *J. Mater. Chem. A* **2024**, *12*, 24156-24164, <https://doi.org/10.1039/D4TA04576A>.
- [68] W. Sun, C. Zhou, Y. Fan, Y. He, H. Zhang, Z. Quan, H. Kong, F. Fu, J. Qin, Y. Shen, H. Chen, *Angew. Chem. Int. Ed.* **2023**, *62*, e202300158, <https://doi.org/10.1002/anie.202300158>.
- [69] X. Xu, S. Zhang, K. Xu, H. Chen, X. Fan, N. Huang, *J. Am. Chem. Soc.* **2023**, *145*, 1022-1030, <https://doi.org/10.1021/jacs.2c10509>.
- [70] Y. Cao, M. Wang, H. Wang, C. Han, F. Pan, J. Sun, *Adv. Energy Mater.* **2022**, *12*, 2200057, <https://doi.org/10.1002/aenm.202200057>.
- [71] Chen, *J. Am. Chem. Soc.* **2018**, *140*, 896-899, <https://doi.org/10.1021/jacs.7b12292>.
- [72] K. Jeong, S. Park, G. Y. Jung, S. H. Kim, Y.-H. Lee, S. K. Kwak, S.-Y. Lee, *J. Am. Chem. Soc.* **2019**, *141*, 5880-5885, <https://doi.org/10.1021/jacs.9b00543>.
- [73] Q. Xu, S. Tao, Q. Jiang, D. Jiang, *J. Am. Chem. Soc.* **2018**, *140*, 7429-7432, <https://doi.org/10.1021/jacs.8b03814>.
- [74] G. Zhang, Y. Hong, Y. Nishiyama, S. Bai, S. Kitagawa, S. Horike, *J. Am. Chem. Soc.* **2019**, *141*, 1227-1234, <https://doi.org/10.1021/jacs.8b07670>.
- [75] C. Guo, K. Zhang, Q. Zhao, L. Pei, J. Chen, *Chem. Commun.* **2015**, *51*, 10244-10247, <https://doi.org/10.1039/C5CC02251G>.
- [76] O. Lužanin, R. Dantas, R. Dominko, J. Bitenc, M. Souto, *J. Mater. Chem. A* **2023**, *11*, 21553-21560, <https://doi.org/10.1039/D3TA05190K>.
- [77] B. Esser, F. Dolhem, M. Becuwe, P. Poizot, A. Vlad, D. Brandell, *J. Power Sources* **2021**, *482*, 228814, <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2020.228814>.
- [78] S. Xu, G. Wang, B. P. Biswal, M. Addicoat, S. Paasch, W. Sheng, X. Zhuang, E. Brunner, T. Heine, R. Berger, X. Feng, *Angew. Chem. Int. Ed.* **2019**, *58*, 849-853, <https://doi.org/10.1002/anie.201812685>.
- [79] C. Yao, Z. Wu, J. Xie, F. Yu, W. Guo, Z. J. Xu, D. Li, S. Zhang, Q. Zhang, *ChemSusChem* **2020**, *13*, 2457-2463, <https://doi.org/10.1002/cssc.201903007>.
- [80] X. Li, H. Wang, Z. Chen, H. S. Xu, W. Yu, C. Liu, X. Wang, K. Zhang, K. Xie, K. P. Loh, *Adv. Mater.* **2019**, *31*, 1905879, <https://doi.org/10.1002/adma.201905879>.
- [81] M. Ibrahim, H. N. Abdelhamid, A. M. Abueftooh, S. G. Mohamed, Z. Wen, X. Sun, *J. Energy Storage* **2022**, *55*, 105375, <https://doi.org/10.1016/j.est.2022.105375>.
- [82] T. Günther, K. Oka, S. Olsson, M. Åhlén, N. Tohnci, R. Emanuelsen, *J. Mater. Chem. A* **2023**, *11*, 13923-13931, <https://doi.org/10.1039/D3TA00422H>.
- [83] D. Rodríguez-San-Miguel, C. Montoro, F. Zamora, *Chem. Soc. Rev.* **2020**, *49*, 2291-2302, <https://doi.org/10.1039/C9CS00890J>.
- [84] Y. Tao, W. Ji, X. Ding, B.-H. Han, *J. Mater. Chem. A* **2021**, *9*, 7336-7365, <https://doi.org/10.1039/D0TA12122C>.
- [85] J. Liu, P. Lyu, Y. Zhang, P. Nachtigall, Y. Xu, *Adv. Mater.* **2018**, *30*, 1705401, <https://doi.org/10.1002/adma.201705401>.
- [86] S. Haldar, K. Roy, R. Kushwaha, S. Ogale, R. Vaidhyathan, *Adv. Energy Mater.* **2019**, *9*, 1902428, <https://doi.org/10.1002/aenm.201902428>.
- [87] X. Chen, Y. Li, L. Wang, Y. Xu, A. Nie, Q. Li, F. Wu, W. Sun, X. Zhang, R. Vajtai, P. M. Ajayan, L. Chen, Y. Wang, *Adv. Mater.* **2019**, *31*, 1901640, <https://doi.org/10.1002/adma.201901640>.
- [88] Y. Zhu, X. Chen, Y. Cao, W. Peng, Y. Li, G. Zhang, F. Zhang, X. Fan, *Chem. Commun.* **2019**, *55*, 1434-1437, <https://doi.org/10.1039/C8CC10262G>.
- [89] K. Wang, H. Zhang, Y. Xiao, S. Ren, Y. Wang, L. Li, *Chem. Eng. J.* **2023**, *454*, 140283, <https://doi.org/10.1016/j.cej.2022.140283>.
- [90] S. Haldar, K. Roy, S. Nandi, D. Chakraborty, D. Puthusseri, Y. Gawli, S. Ogale, R. Vaidhyathan, *Adv. Energy Mater.* **2018**, *8*, 1702170, <https://doi.org/10.1002/aenm.201702170>.
- [91] Y. Cao, C. Liu, M. Wang, H. Yang, S. Liu, H. Wang, Z. Yang, F. Pan, Z. Jiang, J. Sun, *Energy Storage Mater.* **2020**, *29*, 207-215, <https://doi.org/10.1016/j.ensm.2020.04.029>.
- [92] X. Zhang, F. Li, S. Yang, B. Song, R. Luo, R. Xiong, W. Xiu, *SusMat* **2024**, *4*, 4-33, <https://doi.org/10.1002/sus2.180>.
- [93] R. Zhou, Y. Huang, Z. Li, S. Kang, X. Wang, S. Liu, *Energy Storage Mater.* **2021**, *40*, 124-138, <https://doi.org/10.1016/j.ensm.2021.05.008>.
- [94] Y. Yue, H. Li, H. Chen, N. Huang, *J. Am. Chem. Soc.* **2022**, *144*, 2873-2878, <https://doi.org/10.1021/jacs.1c13012>.
- [95] L. Frey, J. J. Jarju, L. M. Salonen, D. D. Medina, *New J. Chem.* **2021**, *45*, 14879-14907, <https://doi.org/10.1039/D1NJ01269J>.
- [96] J. L. Segura, M. J. Mancheño, F. Zamora, *Chem. Soc. Rev.* **2016**, *45*, 5635-5671, <https://doi.org/10.1039/C5CS00878F>.
- [97] A. Mal, J. Caroni, A. Patriarchi, O. Luzanin, R. Ramos, J. Bitenc, M. Melle-Franco, M. Souto, *Adv. Mater.* **2025**, e12950, <https://doi.org/10.1002/adma.202512950>.
- [98] W.-X. Pan, L. Chen, W.-Y. Li, Q. Ma, H. Xiang, N. Ma, X. Wang, Y. Jiang, F. Xia, M. Zhu, *Adv. Mater.* **2024**, *36*, 2401772, <https://doi.org/10.1002/adma.202401772>.
- [99] Y. Chen, H. Dai, K. Fan, G. Zhang, M. Tang, Y. Gao, C. Zhang, L. Guan, M. Mao, H. Liu, T. Zhai, C. Wang, *Angew. Chem. Int.*

- Ed.* **2023**, *62*, e202302539, <https://doi.org/10.1002/anie.202302539>.
- [100] J. Á. Martín-Illán, D. Rodríguez-San-Miguel, C. Franco, I. Imaz, D. Maspocho, J. Puigmarí-Luis, F. Zamora, *Chem. Commun.* **2020**, *56*, 6704-6707, <https://doi.org/10.1039/DOCC02033H>.
- [101] M. M. Unterlass, *Angew. Chem. Int. Ed.* **2018**, *57*, 2292-2294, <https://doi.org/10.1002/anie.201713359>.
- [102] T. Xue, O. A. Syzgantseva, L. Peng, M. A. Syzgantseva, R. Li, G. Xu, D. T. Sun, R. Qiu, C. Liu, S. Zhang, T. Su, P. Su, S. Yang, J. Li, B. Han, *Chem. Mater.* **2022**, *34*, 10584-10593, <https://doi.org/10.1021/acs.chemmater.2c02664>.
- [103] B. Díaz de Greñu, J. Torres, J. García-González, S. Muñoz-Pina, R. Reyes, A. M. Costero, P. Amorós, J. V. Ros-Lis, *ChemSusChem* **2021**, *14*, 208-233, <https://doi.org/10.1002/cssc.202001865>.
- [104] R. Wang, L. Ding, J. Xue, H. Fan, J. Caro, H. Wang, *Commun Mater* **2025**, *6*, 61, <https://doi.org/10.1038/s43246-025-00780-9>.
- [105] O. Luzanin, R. Dantas, A. Rajh, U. Košir, R. Dominko, K. Bučar, M. Kavčič, M. Souto, J. Bitenc, *ChemSusChem* **2025**, *18*, e202500965, <https://doi.org/10.1002/cssc.202500965>.

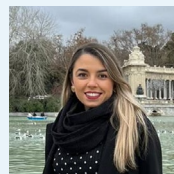


Sara Trigo Pérez

CiQUS, Centro Singular de Investigación en Química Bioloxica e Materiais Moleculares, Universidade de Santiago de Compostela

C-e: sara.trigo@rai.usc.es
ORCID: 0009-0003-2406-8480

Sara Trigo (Vigo, 2002) es graduada en Química (2024) por la Universidad de Santiago de Compostela. Actualmente está finalizando el máster en Química en la Frontera con la Biología y la Ciencia de los Materiales en el CiQUS con el objetivo de continuar su formación investigadora con el doctorado. Su proyecto de máster se centra en la síntesis y caracterización de COF basados en radicales para aplicaciones de almacenamiento de energía.



Paula Escamilla Berenguer

CiQUS, Centro Singular de Investigación en Química Bioloxica e Materiais Moleculares, Universidade de Santiago de Compostela

C-e: paulasara.escamilla@usc.es
ORCID: 0000-0002-6419-8891

Paula Escamilla (Valencia, 1997) es investigadora postdoctoral Juan de la Cierva en el CiQUS – Universidad de Santiago de Compostela. Graduada en Química (2019, premio extraordinario) y máster en Técnicas Experimentales en Química (2020) por la Universidad de Valencia, obtuvo su doctorado en Química (2023) ICMol-Universidad de Valencia. Su investigación se centra en el diseño y síntesis de materiales porosos (MOFs y COFs) para aplicaciones en catálisis, remediación ambiental y almacenamiento de energía



Manuel Souto Salom

CiQUS, Centro Singular de Investigación en Química Bioloxica e Materiais Moleculares, Universidade de Santiago de Compostela

C-e: manuel.souto.salom@usc.es
ORCID: 0000-0003-3491-6984

Manuel Souto (Valencia, 1988) es Profesor de Investigación Oportunus e Investigador Principal en el CiQUS-USC. También es profesor visitante en la Universidad de Aveiro. Obtuvo su doctorado en Ciencia de los Materiales en 2016 en ICMA-B-CISC. Sus intereses de investigación abarcan la electrónica molecular, los polímeros porosos electroactivos y las baterías orgánicas. En 2021, recibió una ERC Starting Grant con el proyecto ELECTROCOFS, cuyo objetivo es diseñar una nueva generación de electrodos basados en COF redox-activos para baterías recargables. Entre otras distinciones, ha recibido recientemente el Premio Joven Investigador (modalidad líder de grupo) de la RSEQ.