

·综述·

离子凝胶的多尺度结构设计与性质调控

王清华 张馨月 吕晓林*

(福州大学材料科学与工程学院 福州 350108)

摘要: 离子凝胶克服了水凝胶易挥发、易冻结的环境敏感性,兼具高离子电导率、热稳定性等优异特性,在柔性电子、软体机器人和能源存储领域潜力巨大。但简单网络结构往往难以兼顾力学强度、导电性能与自修复能力,制约了其实际应用。本综述依据调控尺度与作用机制,将现有设计策略归纳为分子工程与结构工程2类。分子工程聚焦亚纳米至纳米尺度的动态网络设计,涵盖双网络、链缠结、滑环效应、氢键、离子相互作用、金属配位、动态共价键及协同效应,结构工程着眼纳米至微米尺度的空间构型调控,包括微相分离、纳米结晶域、纳米复合、取向结构及梯度结构。在此基础上,进一步总结了离子凝胶在能源存储与转换、柔性传感及软体机器人等应用领域的发展。本综述系统梳理了离子凝胶的多尺度结构设计策略和应用进展,讨论了未来发展的核心挑战,以期为高性能离子凝胶的理性设计和器件集成提供参考。

关键词: 离子凝胶; 力学性能; 电学性能; 自修复

Multiscale Structural Design and Property Regulation of Ionogels

WANG Qing-hua, ZHANG Xin-yue, LYU Xiao-lin*

(College of Materials Science and Engineering, Fuzhou University, Fuzhou 350108)

Abstract: Ionogels overcome the environmental sensitivity of hydrogels, which are prone to evaporation and freezing. They exhibit excellent properties such as high ionic conductivity and thermal stability, showing great potential in flexible electronics, soft robotics, and energy storage. However, simple network structures often fail to simultaneously achieve mechanical robustness, ionic conductivity, and self-healing capability, which limits their practical applications. This review categorizes existing design strategies into molecular engineering and structural engineering based on the regulation scale and underlying mechanisms. Molecular engineering focuses on dynamic network design at the sub-nanometer to nanometer scale, including double networks, chain entanglement, sliding ring effects, hydrogen bonding, ionic interactions, metal coordination, dynamic covalent bonds, and synergistic effects. Structural engineering addresses spatial configuration regulation from the nanometer to micrometer scale, including microphase separation, nanocrystalline domains, nanocomposites, oriented structures, and gradient structures. Furthermore, this review summarizes the progress of ionogels in applications such as energy storage and conversion, flexible sensing, and soft robotics. This article systematically outlines the design approaches and application advances in ionogels, and discusses key challenges for future development, aiming to provide a reference for the rational design of high-performance ionogels and device integration.

Keywords: Ionogels; Mechanical properties; Electrical properties; Self-healing

高分子结构与性能专题;2026-08-03 收稿,2026-08-27 录用

基金项目:国家自然科学基金面上项目(基金号 52573131)

*通信联系人:吕晓林,E-mail: lyuxiaolin@fzu.edu.cn

doi: 10.14028/j.cnki.1003-3726.2026.26.310

引用: 王清华, 张馨月, 吕晓林. 离子凝胶的多尺度结构设计与性质调控. 高分子通报, doi: 10.14028/j.cnki.1003-3726.2026.26.310

Citation: Wang, Q. H.; Zhang, X. Y.; Lyu, X. L. Multiscale structural design and property regulation of ionogels. *Polym. Bull.* (in Chinese), doi: 10.14028/j.cnki.1003-3726.2026.26.310

软物质材料以其分子可设计性和刺激响应性,在柔性电子、生物医学、智能传感等新兴领域展现出巨大应用潜力^[1~3]。水凝胶作为软物质材料的典型代表,凭借其优异的生物相容性和可调的力学性能,在组织工程、药物递送及可穿戴器件中得到广泛应用^[4]。然而,水凝胶中大量的水分子易受环境影响,导致高温挥发与低温冻结,严重制约了其应用^[5]。因此,以离子液体及离子液体类似物(如深共晶溶剂等)为分散介质的离子凝胶逐渐成为研究热点^[6]。离子凝胶具有低挥发性、高离子电导率和优异的热稳定性等特性,克服了水凝胶的环境稳定性瓶颈,在柔性电子、软体机器人及能源器件等前沿领域极具前景^[7]。然而,单一组分或简单网络结构的离子凝胶往往难以兼顾力学性能、电学性能及自修复等多功能需求,如何通过结构设计实现上述性能的协同优化,已成为离子凝胶领域亟需突破的关键问题。

多尺度结构设计,如亚纳米尺度的分子间相互作用、纳米尺度的分子链堆积与相结构以及微米尺度的梯度网络,为缓解离子凝胶中性能之间的矛盾提供了新的思路^[8,9]。其中,分子间相互作用

用主要影响网络的交联特性,链段堆积形态关系到应力传递与离子传输过程,而梯度网络则可以进一步改善材料的宏观力学响应及功能。在此基础上,为实现离子凝胶性质的多维度调控,研究者发展出了多种设计策略,可归纳为分子工程与结构工程2类^[10~13]。其中,分子工程侧重于通过调控分子结构及分子间相互作用,构建具有动态特征的交联网络,典型策略包括双网络、链缠结、滑环结构、氢键、金属配位、离子相互作用和动态共价键等;结构工程则主要通过构筑特定的微观结构,实现对材料宏观行为的调控,常见形式包括微相分离、纳米结晶域、纳米复合、取向结构及梯度结构等^[14~18]。

由于高分子网络对于离子凝胶的性能具有重要影响,因此,本综述重点围绕高分子网络的多尺度结构设计展开阐述。重点梳理不同结构设计的特征和调控机制的研究进展,并分析其对力学、电学及自修复行为等性质的影响规律,同时结合其在能源存储、柔性传感及软体机器人等领域的典型应用,讨论结构与功能需求之间的内在关联(图1)。最后,对离子凝胶的发展进行展望,以

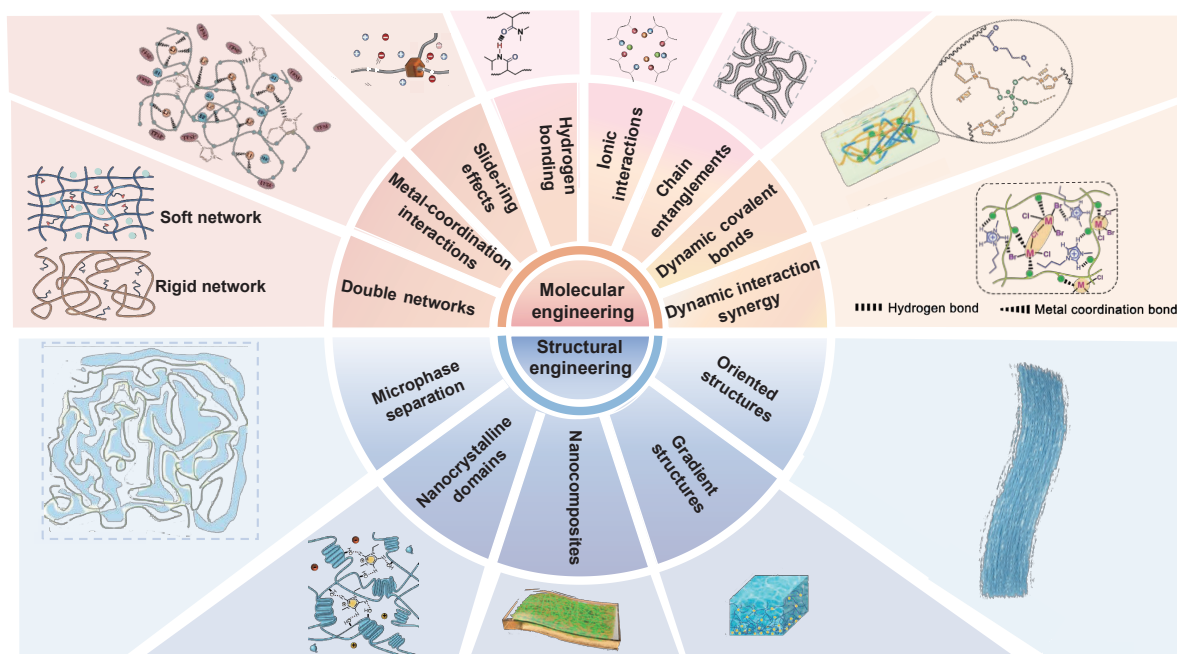


图1 离子凝胶的多尺度结构设计策略

Figure 1 Multiscale structural design strategies of ionogels

期为离子凝胶的结构优化与性能提升提供参考。

1 分子工程

分子工程聚焦于亚纳米至纳米尺度的化学结构与分子间相互作用设计,根本任务在于通过分子链结构设计和引入动态键合位点,构建交联密度与链段运动能力可调节的动态网络。此类设计依托聚合物链化学结构以及分子间相互作用的构筑,调控网络的能量耗散与力-电响应行为。由此,发展出双网络、氢键、金属配位、离子相互作用、动态共价键及其协同效应等多种设计策略,从而实现离子凝胶的性能优化。

1.1 双网络

双网络策略是在同一体系中构建2类在结构特征及相互作用上存在显著差异的网络。其本质是在分子水平上调控网络交联密度和网络间耦合关系等。该体系通常由刚而脆的第一网络与柔性可延展的第二网络共同组成,从而形成稳定的整体结构。在外力作用下,刚性网络作为牺牲键优先发生断裂以耗散能量,而柔性网络则通过动态链段运动维持结构完整性,从而实现应力分散,

显著提升材料的韧性^[19,20]。此外,体系中广泛存在的氢键、离子作用及动态共价键等可逆相互作用,可进一步调控链段运动性及瞬态网络重组过程,实现力学性能与导电性能的协同优化,并进一步赋予材料自修复等功能^[21,22]。Guan等^[23]以丙烯酸(AA)和氯化胆碱(ChCl)构建可聚合深共晶溶剂(DES),并引入明胶构筑了双网络离子凝胶(图2a)。其中,DES超分子网络与明胶网络相互贯穿,形成了典型的双网络结构。明胶、AA与ChCl之间丰富的氢键与离子相互作用不仅增强了网络间的界面耦合,还有效调控了链段运动。得益于此,该离子凝胶表现出高抗拉强度(1.23 MPa)和出色的拉伸性(断裂应变达2100%)。同时,ChCl作为柔性链段组分为离子迁移提供充足的传输通道,显著提升了电导率。此外,大量可逆相互作用的引入使材料受损后能够快速实现网络重构,8 h后的自修复效率可以达到90%。类似地,Xiong等^[24]基于互穿双网络设计,将刚性纤维素纳米晶(CNC)构成的手性螺旋骨架嵌入柔性聚丙烯酰胺(PAM)基体中(图2b)。CNC的长程有序螺旋结构有助于在形变过程中均匀传递应力,

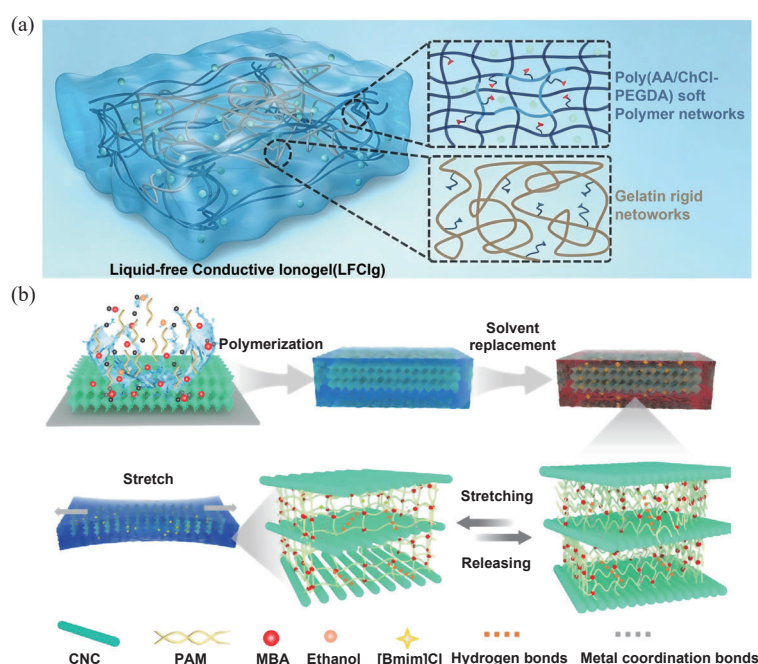


图2 离子凝胶的双网络结构设计:(a) DES与明胶形成的双网络结构示意图^[23] (2023 The Royal Society of Chemistry 版权许可);(b) CNC手性骨架与PAM柔性网络形成的双网络结构示意图^[24] (2025 American Chemical Society 版权许可)

Figure 2 Design of double-network structures in ionogels: (a) Schematic illustration of the double-network structure formed by DES and gelatin (Reprinted with permission from Ref. [23]; Copyright (2023) The Royal Society of Chemistry); (b) Schematic illustration of the double-network structure formed by the CNC chiral skeleton and PAM flexible network (Reprinted with permission from Ref. [24]; Copyright (2025) American Chemical Society)

而CNC与PAM界面间形成的致密氢键网络及离子相互作用则进一步优化了能量耗散机制。得益于刚性骨架与柔性网络的协同作用,材料的强度、模量和韧性分别提升至纯PAM的2.8、2.6和7.4倍,并表现出近乎零迟滞的力学响应和优异的抗疲劳性能。上述双网络策略通过刚性网络与柔性网络之间的协同作用,实现了能量耗散与结构重组的动态平衡,不仅有效突破了强度与拉伸性之间的矛盾,还为离子传输提供了稳定的通道,从而实现了力学性能、电学性能及自修复能力的多重协同优化。然而,刚性网络在多次循环载荷中的不可逆损伤累积,制约了双网络离子凝胶的耐久性提升。因此,如何在实现多重性能协同的同时提升循环耐久性,仍有待深入研究。

1.2 链缠结

链缠结是聚合物分子链在拓扑约束下形成的物理贯穿状态,其缠结密度主要受聚合物分子量、链浓度及链构象等因素影响,分子量增大可提升链间贯穿概率,聚合物浓度提升则缩短链间距并增加缠结点密度,而当链构象趋于伸展时,缠结网络也更为致密。因此,可通过选用高分子量聚合物、提升聚合物浓度或者溶剂交换等手段有效增

加缠结密度^[25~27]。致密的链缠结网络在离子凝胶中发挥着多重关键作用^[28]。链段滑移与重排可以协同提升材料的强度与韧性,对链段运动的约束则赋予了材料低滞后与优异的抗疲劳性能^[29~31]。Ran等^[32]报道了一种不依赖化学交联剂的缠结网络(图3a)。通过控制单体与离子液体的比例,使少量离子液体在体系中起到氢键交联与链缠结的双重功能。随着单体比例升高,聚合物分子量增长,结合氢键诱导的链段聚集,二者协同形成了致密的物理缠结网络。所得离子凝胶实现了7.8 MPa的断裂强度、54 kJ·m⁻²的断裂韧性以及780%的断裂伸长率。同时,其还兼具优异的阻尼特性和抗冲击能力。Tamate等^[33]以丙烯酸乙酯(EA)和*N,N*-二甲基丙烯酰胺(DMAAm)为共聚单体,在离子液体1-乙基-3-甲基咪唑双(三氟甲磺酰)亚胺(EMIM TFSI)中进行共聚反应(图3b)。通过将引发剂用量控制在极低水平,原位生成超高分子量共聚物,从而增加了链间贯穿的概率,获得了致密的链缠结网络,并在共聚物链段之间形成了链间氢键。在致密的链缠结与氢键协同下,该离子凝胶表现出高杨氏模量、高断裂韧性和高电导率。上述研究表明,链缠结设计作为一种基

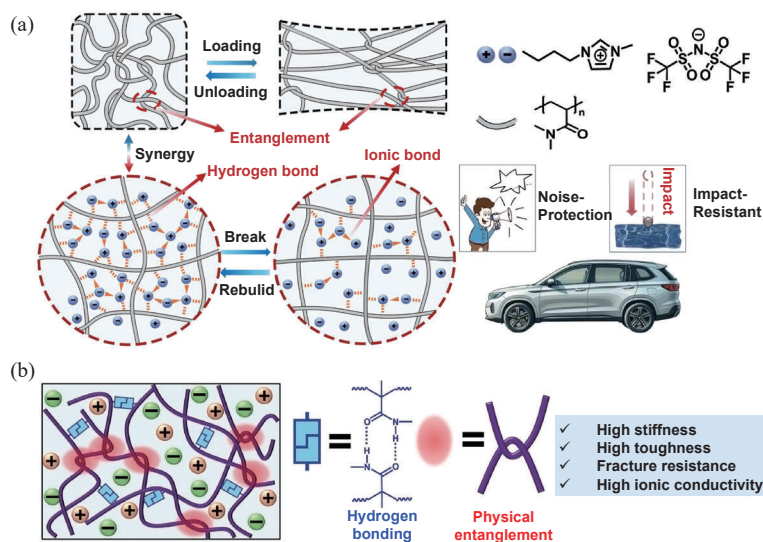


图3 离子凝胶的链缠结设计:(a)离子液体诱导氢键交联与链缠结协同增强离子凝胶的网络结构示意图^[32] (2025 American Chemical Society 版权许可);(b)超高分子量聚合物链缠结与氢键协同的离子凝胶网络结构示意图^[33] (开放获取,2025 作者版权许可)

Figure 3 Design of ionogels with chain entanglements: (a) Schematic illustration of the network structure of ionogels synergistically enhanced by ionic liquid-induced hydrogen-bonded crosslinking and chain entanglements (Reprinted with permission from Ref. [32]; Copyright (2025) American Chemical Society); (b) Schematic illustration of the ionogel network structure with synergy of ultrahigh-molecular-weight polymer chain entanglements and hydrogen bonding^[33] (Open Access, Copyright (2025) the Author(s))

于拓扑约束的物理网络,为离子凝胶实现力学性能与功能性的协同调控提供了关键设计手段,也为开发高强度、高韧性及多功能的软物质材料奠定了拓扑结构基础。然而,过高的缠结密度在约束链段运动的同时,也限制了离子迁移与动态键重组的效率,难以兼顾电导率与自修复能力。

1.3 滑环效应

滑环效应是一种基于分子拓扑设计的物理交联机制,其核心在于将环状分子(如 α -环糊精、柱芳烃等)穿套于直链聚合物上,形成可沿轴向自由滑动的滑环结构作为物理交联点。与传统共价交联或静态物理交联不同,滑环交联点不具备固定的空间位置,环状分子在外力作用下可沿聚合物轴发生滑动迁移^[34-36],这一动态滑动行为赋予了网络独特的力学调控特性^[37]。环的滑动可有效分散应力、缓解局部应力集中,从而显著提升材料的拉伸性、韧性及抗疲劳性能。同时,环的滑动过程可以调节聚合物链上的非共价相互作用,进

而优化体系的能量耗散机制,影响材料的滞后行为、应变率响应及自修复特性^[38,39]。Jia等^[40]以丙烯酸化聚轮烷作为拓扑交联剂引入聚丙烯酸酯网络,同时添加离子液体制备了离子凝胶(图4a)。在该体系中,聚轮烷滑动可以降低应力集中提升拉伸性,而离子液体作为分散介质则有效抑制了环糊精的聚集,减少了循环拉伸过程中的能量耗散,赋予了材料低迟滞的特性。由此,该离子凝胶表现出良好的拉伸性(550%)和低迟滞(残余应变变为7%)。Yang等^[41]设计了一种基于滑环效应的动态去溶剂化机制,利用环芳烃与咪唑盐之间的主客体相互作用形成了滑环交联单元(图4b)。该体系中的滑环结构不仅可以均匀分散应力,还能通过滑动机械性地破坏溶剂与链之间的相互作用,驱动离子液体从聚合物链表面剥离,使得聚合物链从高度溶剂化受限状态转变为相对去溶剂化的自由状态,即完成聚合物链的脱溶剂化过程。脱溶剂化后,链段运动性的增强有效提升了拉伸

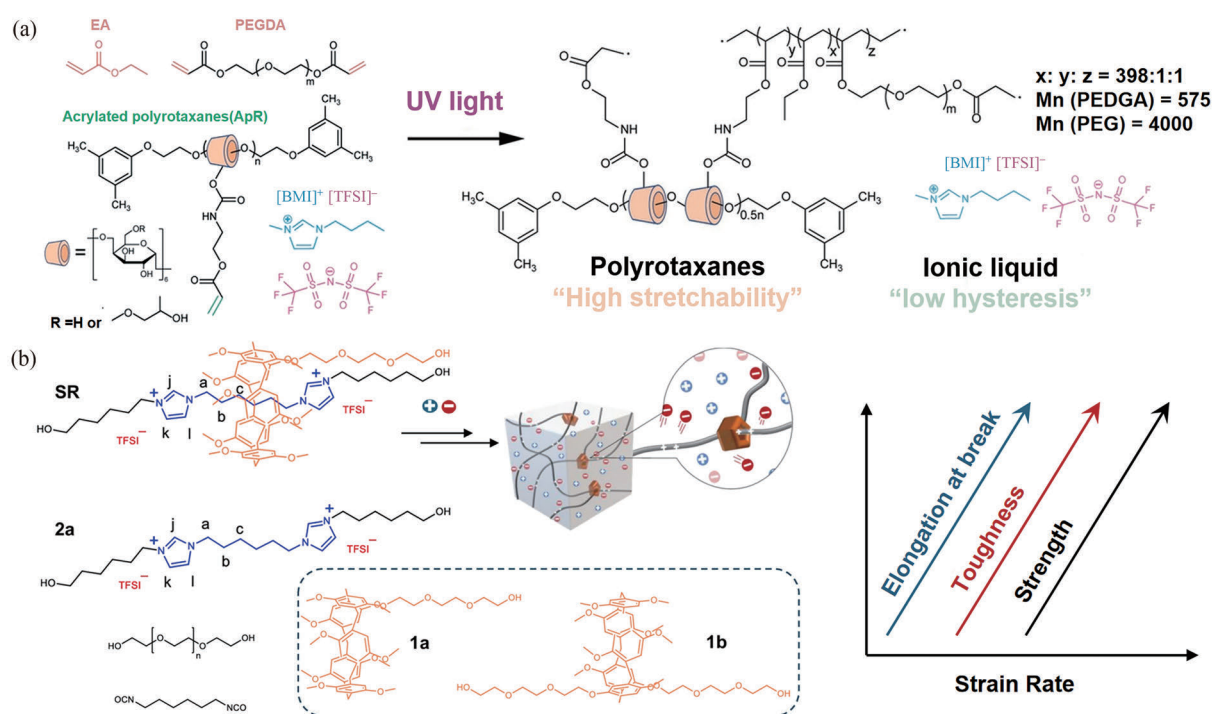


图4 离子凝胶的滑环拓扑设计:(a)聚轮烷作为滑环交联剂与离子液体协同构建低滞后、高拉伸离子凝胶的分子结构设计示意图^[40](2023 Wiley-VCH GmbH 版权许可);(b)柱芳烃衍生物作为轴分子形成的滑环结构示意图,以其构建的离子凝胶实现高应变率下伸长率、强度、韧性同步提升^[41](开放获取,2026 作者版权许可)

Figure 4 Topological design of ionogels with slide-ring structures: (a) Schematic illustration of the molecular design of ionogels with low hysteresis and high stretchability synergistically constructed by polyrotaxanes as slidable cross-linkers and ionic liquids (Reprinted with permission from Ref. [40]; Copyright (2023) Wiley-VCH GmbH); (b) Schematic illustration of the slide-ring structure formed by pillar[5] arene derivatives as the axle, and the ionogel constructed thereby achieving simultaneous enhancement of elongation, strength, and toughness at high strain rates^[41] (Open Access, Copyright (2026) the Author(s))

性,而链间非共价键更充分的断裂重组也可以高效耗散能量。该离子凝胶在高变形速率下兼具高拉伸强度、高断裂伸长率和高韧性。因此,滑环的可滑动特性赋予了离子凝胶独特的应力自适应行为,随着主客体化学和设计手法的持续发展,有望拓展智能响应软材料的设计边界。此外,滑环结构的制备往往涉及复杂的多步合成与纯化过程,提高其产量和产率也是未来的一个重点研究方向。同时其滑动行为对链段运动与离子传输的协同调控规律,也需进一步阐明。

1.4 氢键

氢键是具有普适性和高度可设计性的超分子相互作用,其方向性与动态可逆特性使其能在分子链间构建可调的物理交联网络。在受力状态下,氢键的可逆解离与重组可以实现连续的能量耗散,同时维持良好的结构完整性^[42,43]。通过设

计不同键合强度的氢键,可以在韧性和强度之间取得平衡^[44-46]。此外,氢键交联密度还直接影响离子传输通道的连续性。因此,氢键网络的精确设计可以将力学和电学行为耦合在分子层面进行调节,是离子凝胶性能的关键调控手段之一^[47-49]。Xu等^[48]将EMIM TFSI作为溶剂,利用其与芳纶纳米纤维(ANF)及聚乙烯醇(PVA)之间的弱氢键键合倾向,有效削弱了溶剂与聚合物链之间的竞争,促使刚性ANF和柔性PVA之间形成更密集的界面氢键(图5a)。其中,强界面氢键提供了结构刚性,而贯通性的网络则为离子传输提供了有利条件。所得离子凝胶力学强度高达65.4 MPa,断裂能为607 kJ·m⁻²,电导率为6.5 mS·m⁻¹。此外,You等^[50]受蜘蛛丝中的分级结构启发,利用*N*-异丙基丙烯酰胺(NIPAM)、*N,N*-二甲基丙烯酰胺(DMAAm)和离子液体EMIM TFSI构筑了多级氢

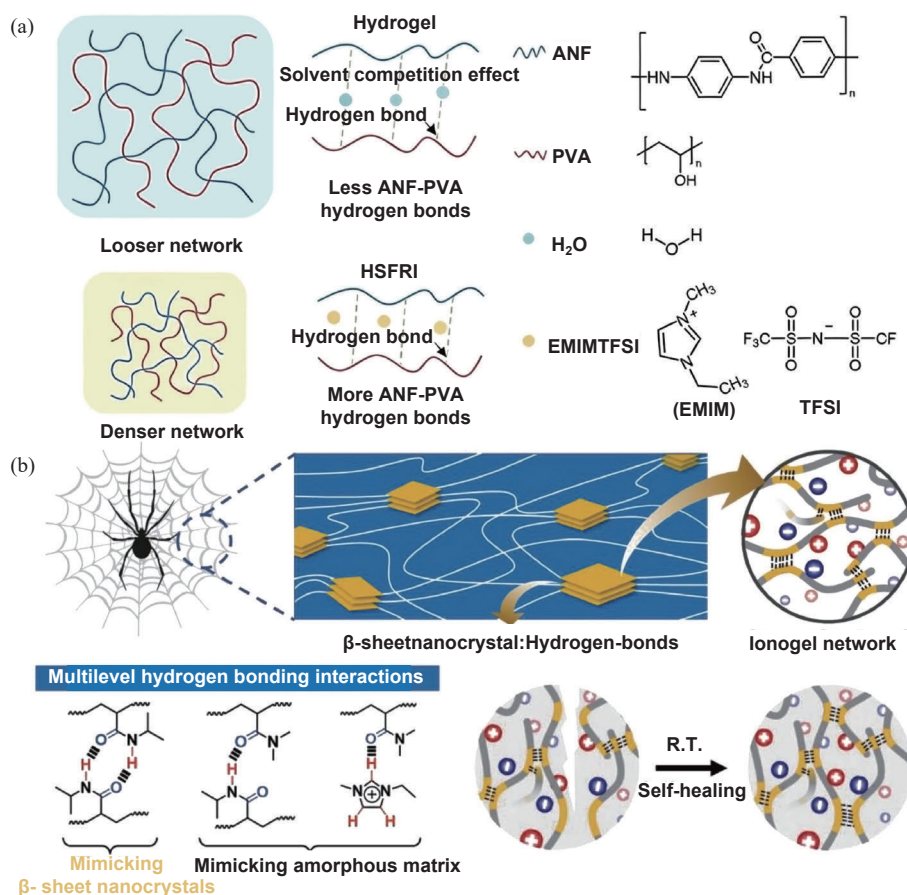


图5 离子凝胶的氢键设计:(a)调控溶剂促使ANF和PVA形成强烈界面氢键的示意图^[48](开放获取,2025作者版权许可);(b)受蜘蛛丝分级结构启发的多级氢键离子凝胶及其自愈过程示意图^[50](开放获取,2023作者版权许可)

Figure 5 Hydrogen bonding design of ionogels: (a) Schematic illustration of solvent-tailored strong interfacial hydrogen bonding between aramid nanofibers (ANF) and poly(vinyl alcohol) (PVA)^[48] (Open Access, Copyright (2025) the Author(s)); (b) Schematic illustration of spider-silk-inspired multilevel hydrogen bonding ionogel and its self-healing process^[50] (Open Access, Copyright (2023) the Author(s))

键网络(图5b)。在该体系中, NIPAM链段通过密集氢键发生聚集, 形成类似 β -片晶的刚性物理交联点以提供力学支撑, 而DMAAm链段则与离子液体形成弱氢键为主的能量耗散区。外力作用下, 强氢键网络维持了结构完整性, 而弱氢键网络则优先解离耗散了能量。多重氢键的协同使该离子凝胶兼具高拉伸性与高韧性。同时, 动态氢键的断裂重组赋予了离子凝胶自修复能力。因此, 基于氢键的可逆性与多重协同效应, 可在提升力学性能的同时兼顾电学性能和自修复能力, 为其在复杂服役环境下维持器件的结构完整性与信号传输的高可靠性提供了有效方法。需要指出的是, 氢键对温度和溶剂环境敏感, 其键合强度与解离-重组动力学的环境依赖性, 将直接影响离子凝胶在复杂服役条件下的网络稳定性与离子传导可靠性。未来在这方面的深入探索将有助于其在复杂服役条件下长期稳定运行。

1.5 离子相互作用

离子相互作用是指存在于带电离子之间或离

子与极性基团之间的非共价相互作用^[51]。这种作用可以直接影响离子液体在基质中的分散状态, 并深入调节离子凝胶的力学性能、自修复能力及离子迁移速率等性质^[52~54]。Yan等^[55]设计了一种两性聚合物, 其侧链通过阴阳离子之间的静电吸引形成离子键, 同时引入小分子离子液体作为抗衡离子(图6a)。抗衡离子的引入屏蔽了部分聚合物侧链间的静电作用, 使得离子键在保持足够强度的情况下具有动态可逆性, 在应力下可以快速解离重组以高效耗散能量, 实现了韧性与刚性的平衡。Cho等^[52]报道了一种基于两性离子聚合物的离子凝胶, 聚合物侧链上的基团与离子形成了可逆的动态物理交联网络(图6b)。结构受损时, 损伤界面处的离子相互作用发生解离-缔合, 驱动了交联网络和离子传输通道同步修复, 使离子凝胶的力学性能和导电性在室温下无需外部刺激即可快速恢复。因此, 离子相互作用可以调节聚合物基体与离子液体间的相容性, 为提升离子凝胶功能特性提供了有效策略。然而, 离子键强度与

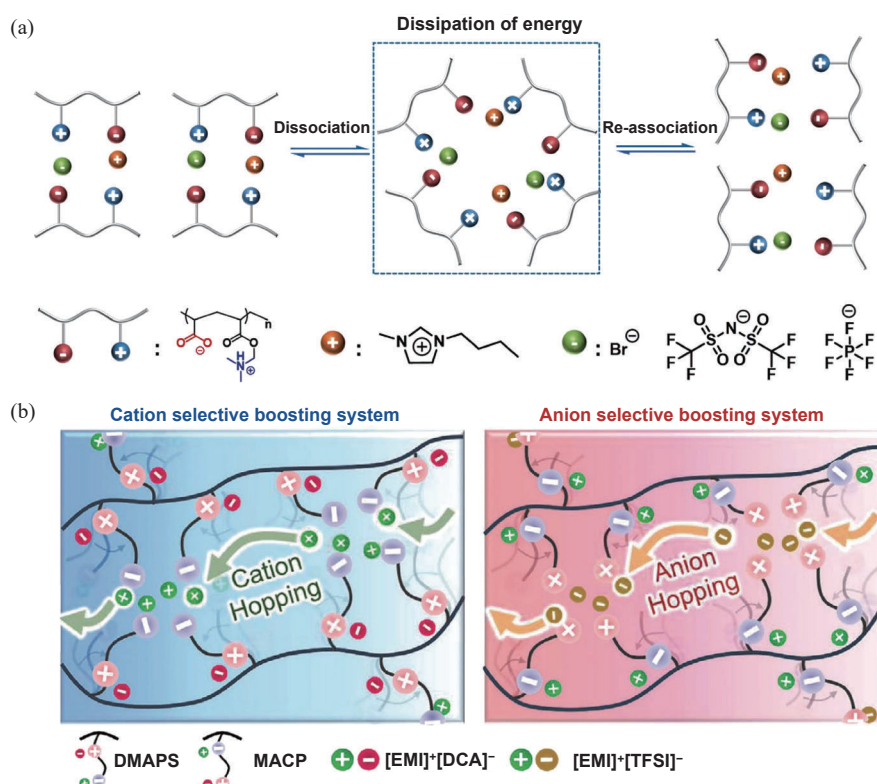


图6 离子凝胶的离子相互作用设计:(a)应力作用下离子相互作用快速解离重组实现高效耗能过程的示意图^[55] (2026 Wiley-VCH GmbH 版权许可);(b)两性离子聚合物侧链离子相互作用示意图^[52] (2023 Wiley-VCH GmbH 版权许可)

Figure 6 Ionic interaction design of ionogels: (a) Schematic illustration of the efficient energy dissipation process *via* rapid dissociation and recombination of ionic interactions under stress (Reprinted with permission from Ref. [55]; Copyright (2026) Wiley-VCH GmbH); (b) Schematic illustration of side-chain ionic interactions in zwitterionic polymers (Reprinted with permission from Ref. [52]; Copyright (2023) Wiley-VCH GmbH)

动态性之间的权衡,直接决定了材料在宽应变速率范围内的力学响应与离子传导稳定性。

1.6 金属配位相互作用

金属配位相互作用作为一种典型的动态非共价作用,是由金属阳离子(如 Fe^{3+} 、 Zn^{2+} 等)与聚合物链上含孤对电子的配位基团(如咪唑基、羧基等)之间配位络合形成的^[56]。这类相互作用在外力作用下可以实现可逆的解离与重构,从而使得体系具有动态的网络特征,为离子凝胶实现多维度性能调控提供了有效方法^[57-61]。Moon等^[62]在原有的物理交联网络中引入金属-配位作用,构建了一种物理/化学双交联结构。系统研究了不同金属离子(如 Fe^{3+} 、 Co^{3+} 等)对离子凝胶性能的影响,从而在实现优异机械韧性与热稳定性的同时维持了高电导率。Zhang等^[63]开发了一种基于聚乙二醇(PEO)、锂盐和离子液体复合的离子凝胶。 Li^+ 与醚氧基团之间形成的动态金属配位不仅可以充当物理交联点提供力学强度,还可以调节离子传输路径提升电导率。动态配位键的可逆性还赋予了该离子凝胶自愈特性和机械顺应性。因此,金属配位键为高性能离子凝胶提供了重要的发展方向。同时,金属离子的团聚与迁移不仅扰动配位网络的重构均匀性,亦可能改变局部离子浓度与传输路径,故对其长期稳定性影响尚需关注。

1.7 动态共价键

动态共价键兼具传统共价键的高键能与超分子相互作用的可逆交换性,可以用来构建高性能离子凝胶^[64-66]。通过引入亚胺键、酯交换键、二硫键、硼酸酯键等动态基元,可设计具备网络重构能力的动态共价交联网络,从而在分子层面实现力学与自修复的协同调控^[67-69]。Sun等^[70]利用聚丙二醇-聚乙二醇-聚丙二醇、均苯三甲醛和EMIM TFSI构筑了以亚胺键为核心的动态共价交联网络。致密的亚胺键骨架不仅赋予离子凝胶高抗拉强度,而且其在室温下的动态可逆交换特性使凝胶在受损后48 h即可实现力学性能的恢复。区别于超分子相互作用的瞬态响应,动态共价键的可逆交换通常在外界条件(光、热)触发下展现出较强的可控性。如You等^[71]将二甲基乙二脞氨基甲酸酯(DOU)集成于聚氨酯骨架中,利用DOU基团独特的光热响应阈值,成功开发出兼具自修复能力、高透明度(>93%)、优异拉伸性(784%)、适中机械强度(0.76 MPa)的离子凝胶纤维。在该体

系中,DOU基团在近红外光照射下产生光热转换效应,从而可以使纤维受损区域快速恢复结构完整性和电学功能。

此外,除了对内部网络结构的调控,动态共价键在复杂环境下的动态行为同样可以实现材料的环境自适应功能调控^[72-74]。Yan等^[75]利用疏水型离子液体单体与丙烯酸-2-甲氧基乙酯,设计了基于动态硼酸酯键的交联网络。聚离子液体网络和硼酸酯键共同赋予了材料高机械强度,而硼酸酯键的动态可逆性也为其提供了自修复特性。此外,值得注意的是,硼酸酯键在水分子作用下的可逆解离,可以驱动材料与基底界面产生非共价相互作用,实现了水下黏附强度的自发增强,展现出环境响应的自适应黏附特性。因此,动态共价键通过可控的键交换机制,为离子凝胶在复杂服役环境下的性能维持和功能拓展提供了新的分子设计基础。值得注意的是,动态共价键的可控交换通常依赖特定外界刺激,如何在维持键合强度的同时提升环境适应性,仍需进一步探索。此外,动态共价键的强度通常弱于化学键,可能会导致材料长期稳定性下降,如何协同提升其动态性和稳定性将是未来重点之一。

1.8 动态相互作用协同

动态相互作用协同,是指将2种或者多种超分子间相互作用(如氢键、金属配位作用)、动态共价键进行有机集成^[76-78]。其核心在于构建基于多种动态键合单元的协同网络结构,以克服单一交联模式的局限性^[79-81]。协同网络中不同键能的动态单元不仅可以实现分级能量耗散,而且多重可逆键合位点可以为受损界面提供更多分子重组路径以加速结构完整性的恢复^[82-84]。此外,协同网络对链段运动和离子传输的调控也可以同步优化力学和电学性能^[85-87]。Yan团队^[88]利用1-丁基-3-甲基咪唑溴盐(BMIM Br)与金属氯化物,制备了超分子离子液体。通过金属离子与聚合物链之间形成的配位络合以及溶剂组分与聚合物链间的氢键作用,构建了金属配位作用和氢键耦合的物理交联网络。在该离子凝胶中,2种相互作用的协同将聚合物链紧密限制在离子周围并强化了链间物理缠结,不仅可以在受力过程中维持网络完整性,而且可以通过分级有序断裂来高效耗散能量。这一分级能量耗散机制实现了离子凝胶强度和韧性的同步优化,并兼顾了自修复能力和抗疲

劳特性。Chen等^[89]将丙烯酸六氟丁酯(HFBA)与丙烯酸叔丁酯(*t*-BuA)共聚,并在其中引入EMIM TFSI,制备了兼具高透明度与高离子电导率的离子凝胶。在该凝胶中,聚合物链与离子液体间存在双重超分子作用。其中, HFBA链段上的氟原子与EMIM⁺形成的强离子-偶极相互作用,可以确保聚合物基体与离子液体的相容性,为离子凝胶的高透明度提供基础;而*t*-BuA侧链的叔丁基则可以与TFSI⁻之间形成氢键,削弱离子液体自身的阴阳离子静电吸引,促进离子对解离进而显著提升离子迁移和电导率。

此外,动态共价键与超分子相互作用的协同设计进一步拓展了离子凝胶网络的设计维度。Ma等^[90]以聚硫辛酸为动态骨架,通过引入羟甲基纤维素和含Zn²⁺的卤代金属酸盐离子液体,设计了由二硫键、金属配位键和氢键构成的多级动态网络。Zn²⁺与聚硫辛酸链上的羧基发生配位络合,同时驱动链段自组装形成离子簇聚集体。在受力过程中,离子簇优先破裂来耗散能量,随后网络中的二硫键与氢键依次解离,构成了协同能量耗散路径,从而使离子凝胶兼具超高拉伸性(>15000%)、高韧性(20.3 MJ·m⁻³)和优异的阻尼性能(能量耗散系数>80%,损耗因子1.67)。得益于多级动态相互作用的可逆特性,该材料还展现出95.7%的自修复效率和绿色可回收能力。因此,动态相互作用的协同设计可以开发新一代高稳定、可重构的柔性离子凝胶材料。然而,多种动态相互作用的共存也使分级能量耗散路径与离子传导网络之间的耦合机制更为复杂,其协同规律尚需系统研究。

2 结构工程

结构工程着眼于纳米至微米尺度的物理形态与空间构型设计,旨在对离子凝胶的分区、界面及空间分布进行可控设计。其关键在于利用微相分离、纳米材料复合、纳米结晶域、取向结构及梯度结构等策略,构建非均质网络^[91-94]。该类设计不仅能够有效分散应力、抑制裂纹扩展,还可通过构筑连续离子通道提升电学性能,从而实现离子凝胶的综合性能提升与功能集成。

2.1 微相分离

微相分离是由材料内部不同组分间的热力学不相容性所驱动而形成的,其受到聚合物与离子

液体的相容性、离子作用以及外界刺激等因素影响^[95,96]。这些因素共同调控了相尺寸、相结构和空间分布均匀性,进而构筑出富聚合物相和富溶剂相贯穿的网络结构^[97-100]。其中,聚合物富集区能够承载应力并耗散能量,提高材料的强度和韧性,而溶剂富集区则可以形成连续的离子传输通道,实现了力学性能与导电性的同步优化^[100-104]。Niu等^[105]利用两性离子链段与离子液体之间的静电相互作用,诱导形成了富聚合物相和富离子液体相贯穿的微相分离结构(图7a)。富聚合物相中密集的氢键位点能有效耗散能量,提高材料的韧性和抗疲劳能力,而富离子液体相则使离子凝胶具有优异的离子导电性。通过调控两性离子链段和离子液体之间的相互作用,可实现微相分离结构的精确控制,从而系统优化离子凝胶的微观结构和宏观性能。

此外,Guo等^[106]利用丙烯腈(AN)和EA在离子液体中共聚,通过聚合过程中的疏水性转变诱导形成微相分离结构(图7b)。其中,EA链段形成软相,保障了高效的离子传输并赋予离子凝胶柔性,AN链段则构成硬相,提供了结构刚性,从而解决了优异力学性能与高导电性难以兼具的难题。而且,由于两相都是疏水相,离子凝胶还可以进一步抑制水分子的吸收和渗透,使其在湿环境下保持性能稳定。因此,微相分离作为一种结构工程策略,通过构建功能分区,实现了力学和电学性质的协同设计。但是,微相分离结构的演化过程尚需要深入研究,过程中可能导致离子传输路径发生不可逆变化,从而引发离子电导率的波动与衰减。

2.2 纳米结晶域

生物组织优异的抗疲劳性能通常来源于胶原纤维内部高度有序的结构特征^[107]。受此启发,研究者在软物质体系中引入可控的结晶域以增强材料的结构稳定性,并将该策略进一步拓展到了离子凝胶体系^[108]。结晶域的形成依赖于分子链段的规整排列与有序堆积,通过构筑局部刚性区域作为物理交联点,从而提升材料的结构稳定性与力学强度^[109]。聚乙烯醇(PVA)和纤维素是形成结晶域的经典聚合物体系,其分子链上丰富的羟基位点易于形成分子间氢键,进而诱导链段聚集形成结晶域,在网络中起到结构增强的功能,促进应力在体系内的均匀分散^[110,111]。其性能调控

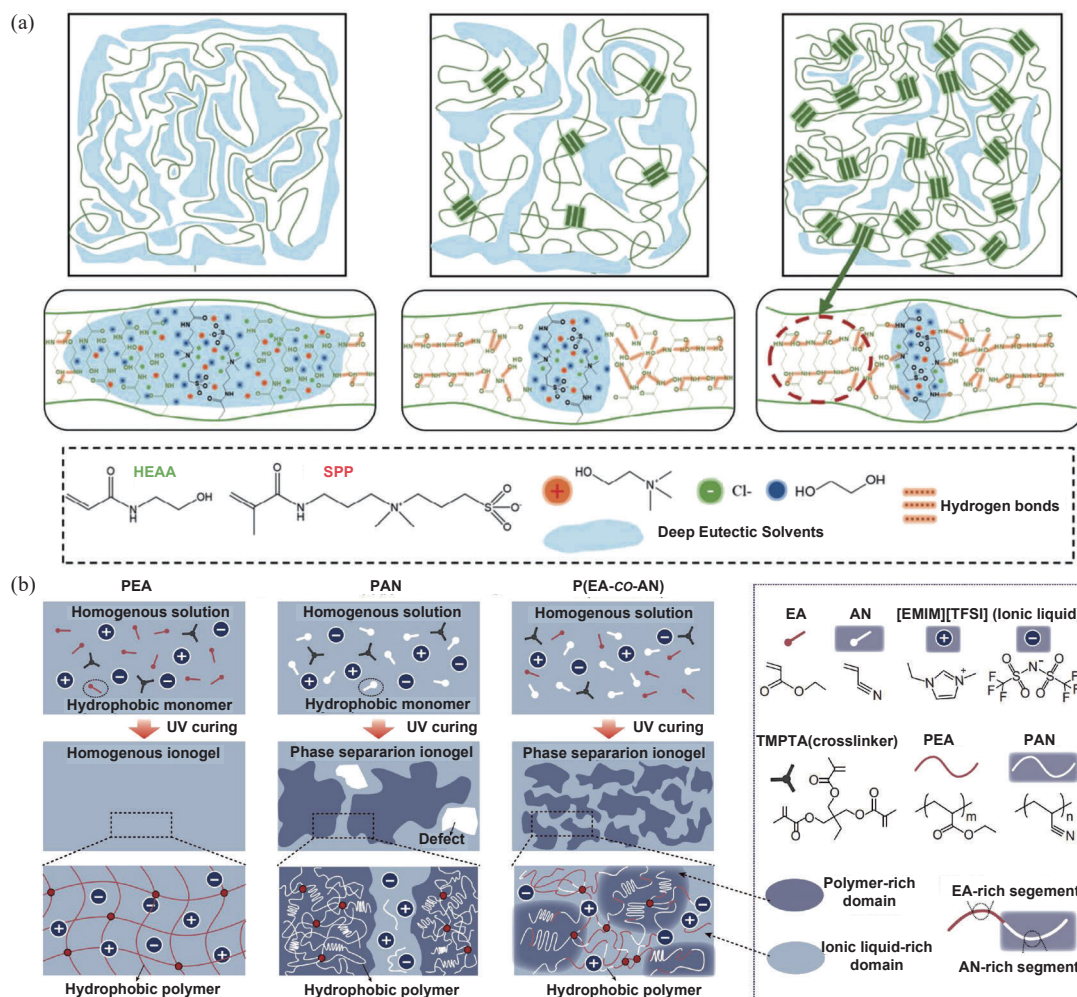


图7 离子凝胶的相分离结构设计:(a)两性离子聚合物链段与离子液体相互作用诱导形成的微相分离结构示意图^[105] (2024 Wiley-VCH GmbH 版权许可);(b)丙烯酸乙酯(EA)与丙烯腈(AN)共聚形成的双连续相分离结构示意图^[106] (开放获取,2024 作者版权许可)

Figure 7 Phase separation design of ionogels: (a) Schematic illustration of the microphase separation structure induced by the interaction between zwitterionic polymer segments and ionic liquids (Reprinted with permission from Ref. [105]; Copyright (2024) Wiley-VCH GmbH); (b) Schematic illustration of the bicontinuous phase separation structure formed by copolymerization of ethyl acrylate (EA) and acrylonitrile (AN)^[106] (Open Access; Copyright (2024) the Author(s))

主要依赖于结晶度或晶区尺寸分布的改变。Yan等^[112]通过两步溶剂置换将PVA水凝胶中的水逐步置换为离子液体,置换过程中网络的收缩可以驱动PVA链段的致密化堆积,使体系的结晶度从7.9%显著提升至25.1%,最终形成了高物理交联密度的玻璃态离子凝胶。其中,纳米结晶域可以有效传递并分散应力,而网络中致密的离子键则可以通过动态重组高效耗散能量,赋予了该离子凝胶出色的抗压强度和韧性(抗压强度为2.3 GPa,韧性为1219.3 MJ·m⁻³),其能量耗散率达81.9%。在高速动态冲击下,还可进一步诱导PVA有序重排形成新生结晶微区,从而有效缓解应力

集中并实现冲击保护。Yu等^[113]则利用LiBr和ZnCl₂构筑双盐体系实现对纤维素分子链结晶行为的调控。自然冷却条件下, Li⁺与Zn²⁺通过配位作用驱动纤维素链规整排列形成致密的结晶域,使纤维素链保持蜷缩紧密的构象状态。随后,将结晶体系转移至室温空气环境中,水分子介入促使纤维素发生网络重构。在此过程中,结晶域作为瞬时结构,为获得高性能离子凝胶提供了关键的结构基础。

此外,离子液体的可逆结晶熔融行为也为离子凝胶性质调控提供了新思路^[114,115]。受海参中机械响应启发, Jiang等^[116]通过预先在体系外制备离

子液体晶核,并在体系中引入纤维素作为分子调控剂,开发了一种基于离子液体可逆熔融-结晶的力学可切换离子凝胶。纤维素表面丰富的氢键位点与离子液体形成竞争性氢键,从而削弱聚合物与离子液体的结合强度,使得离子液体中的阴阳离子在晶核种子诱导下更加有序排列,进而形成密集的结晶域。结晶态凝胶的拉伸模量和压缩模量分别为134.6和48.9 MPa。当加热至55~60 °C,离子液体发生晶区熔融,凝胶转变为高韧性状态(韧性为25.7 kJ·m⁻³)。该结晶-熔融过程具有良好的可逆循环特性,并可在结晶过程中锁定临时形状,实现可逆的刚韧转换和形状记忆。因此,结晶域作为离子凝胶结构设计中的核心构筑单元之一,已发展出多种调控方式。然而,结晶域的刚性结构在提升力学强度的同时,其有序晶域会对离子传导起一定阻碍作用,导致整体电导率下降。此外,结晶域与无定形区在形变过程中力学响应

不匹配易产生应力集中以及影响电学信号的长期稳定性。未来,结晶域在离子凝胶中的设计有望朝着智能化持续发展,为高性能离子凝胶的按需构筑与功能集成提供普适性的设计策略。

2.3 纳米材料复合

纳米材料复合的设计核心在于将功能化纳米组分(如刚性无机颗粒、金属纳米线、纤维素纳米晶体等)引入离子凝胶基体,借助纳米组分与聚合物链间的物理交联、界面相互作用或原位自组装行为,形成均匀分散的网络结构^[117]。纳米材料不仅可以为网络结构提供机械支撑,还可通过调节聚合物链构象及界面相互作用重构离子传输通道,从而协同改善离子凝胶的力学性能和导电能力^[118~120]。Yao等^[121]将纳米纤维素(CNF)与聚离子液体(PIL)复合,使CNF与PIL通过非共价作用聚集并形成超强纳米纤维网络(图8a)。CNF作为纳米增强相带来力学性能的提升,而形成的均

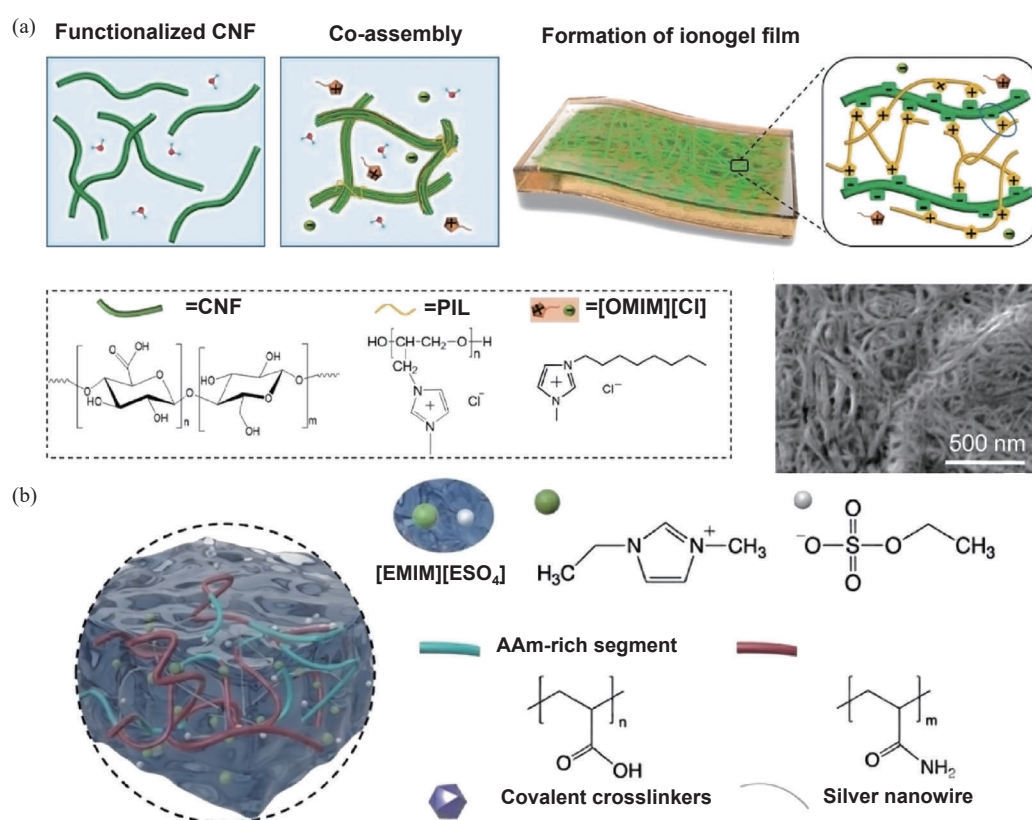


图8 离子凝胶的纳米复合设计:(a)基于CNF的离子凝胶结构设计示意图和扫描电镜图像^[121](2024 American Chemical Society 版权许可);(b)银纳米线增强P(AAm-co-AA)离子凝胶纳米复合材料的网络结构示意图^[122](2024 American Chemical Society 版权许可)

Figure 8 Nanocomposite design of ionogels: (a) Schematic illustration of the structural design of CNF-based ionogels and SEM image (Reprinted with permission from Ref. [121]; Copyright (2024) American Chemical Society); (b) Schematic illustration of the network structure of silver nanowire (AgNWs)-reinforced P(AAm-co-AA) ionogel nanocomposite (Reprinted with permission from Ref. [122]; Copyright (2024) American Chemical Society)

匀纳米结构则提供了快速的离子传输通道,从而获得兼具高力学性能和高离子电导率的离子凝胶。Bai等^[122]将银纳米线(AgNWs)均匀分散于P(AAm-co-AA)离子凝胶基体中,构筑了纳米复合离子凝胶(图8b)。丙烯酸胺链段富集区域作为刚性物理交联域,丙烯酸链段富集区域构成柔性离子传输通道,而银纳米线则通过物理缠结、氢键及离子-偶极相互作用与聚合物网络形成多重界面耦合,赋予了材料高拉伸性(605%)与良好的力学强度(377 kPa)。其中,纳米复合策略的核心在于界面作用需兼顾应力传递效率与链段弛豫能力。因此,如何调控纳米组分的分散均匀性及界面相容性,是影响其性能稳定性的关键因素。上述纳米复合结构设计表明,借助纳米组分与聚合物网络之间的界面作用和结构调控,是实现力学性能与离子传输能力协同提升的有效策略。

2.4 取向结构设计

取向结构设计通过应力场、流动场等条件诱导聚合物分子链在空间上形成择优排列,进而在离子凝胶的不同方向上使其功能特性具有各向异性。相较均匀网络,取向结构可以实现力学强度、韧性、抗疲劳性以及离子传输行为等功能特性的协同优化^[123,124]。Gong等^[125]将PVA有机凝胶在离子交换前预先固定,使其在盐析过程中通过收缩应力同步诱导聚合物链发生有序排列,进一步促进了PVA链的聚集和结晶,增加了链间缠结,最后形成了致密且高度纠缠的微取向网络结构(图9a)。该结构不仅使离子凝胶的力学强度和韧性分别达到62.2 MPa和123.7 MJ·m⁻³,而且还使其表现出优异的抗穿刺能力。类似地,Yan等^[126]利用静电纺丝的拉伸流变效应,在纺丝液中加入离子液体以提高射流电荷密度,施加高压电场使聚合物射流在飞行中经历静电拉伸并沉积于高速旋转的收集器表面,从而促使纳米纤维在收集方向上产生单向排列,形成高度取向的纳米纤维离子凝胶膜(图9b)。该取向结构赋予离子凝胶更高的离子电导率和更低的热导率,实现了离子传导与热传导的有效解耦,提升了热电转换效率。上述研究表明,通过合理的取向诱导策略,可实现分子链从无序到有序的可控转变,从而突破传统均质材料的性能局限。随着原位表征技术与多尺度模拟方法的持续发展,取向结构的动态演化机制有望被更深入地揭示,从而为离子凝胶的性能

优化提供更具可预测性的调控手段。然而,取向结构在离子液体增塑环境下的松弛行为,及其对各向异性力学与离子传导功能持久性的影响,尚需深入探究。此外,取向结构的构筑对特定外场条件依赖较强,规模化制备仍面临挑战。

2.5 梯度结构设计

在离子凝胶的结构设计中,梯度结构作为一种典型的非均质设计策略,通过调控材料本体在特定方向(通常为厚度方向)上的组分浓度、交联密度和模量分布,可以使性能在空间上呈现阶梯式变化^[127~130]。这种梯度结构变化可从分子尺度跨越到宏观尺度,形成显著的结构差异。常见的梯度结构设计包括交联密度梯度、模量梯度、组分梯度以及电导率梯度等。与传统均质材料相比,梯度结构的核心优势在于将功能解耦并在空间上分区,突破了均质网络难以兼顾多种性能的难题^[131,132]。Song等^[129]借助电场辅助进行光聚合,成功设计了一系列沿着厚度方向上呈现交联密度与孔隙尺寸连续梯度变化的离子凝胶。从阳极一侧到阴极一侧,交联密度和孔隙尺寸逐渐增加,连续的梯度变化带来了模量和电导率的变化。这种梯度式的结构使离子凝胶形成了差异化的功能分区,低模量高电导率区赋予材料高顺应性与高离子传输能力,高模量低电导率区则提供结构支撑与力学稳定性。该离子凝胶的拉伸性超过400%,压缩性超过80%,而且在-85~360 °C的宽温域范围内可以保持稳定。因此,梯度结构设计为离子凝胶在柔性传感、能源存储及智能响应等领域实现高灵敏度、宽响应范围及多模态功能集成提供了关键的结构基础。值得注意的是,过渡区作为模量及电导率梯度演变的临界区域,其在循环形变下产生的应力集中,是制约整体结构服役稳定性的关键因素。

3 离子凝胶的应用

3.1 能源储存与转换

离子凝胶兼具固态材料的结构稳定性与液态电解质的高离子传输能力,在超级电容器、电池、纳米摩擦发电机等能量储存与转换器件中展现出良好的应用前景^[133~135]。这类器件通常要求电解质具有高离子电导率、优异的界面稳定性以及良好的机械性能等多重要求,而合理的结构设计使离子凝胶能够有效满足上述性能需求。Zhu等^[136]利用

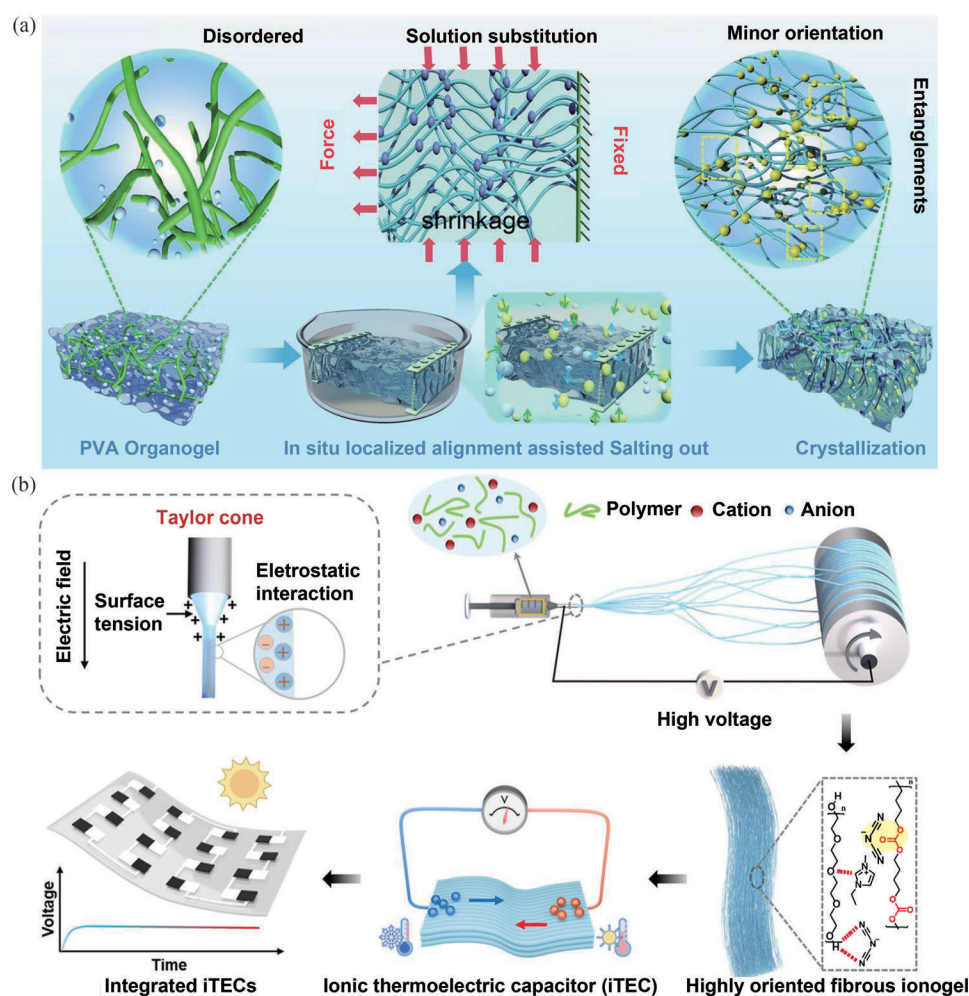


图9 离子凝胶的取向结构设计: (a) 盐析过程中通过原位预拉伸诱导形成微取向结构的离子凝胶制备示意图^[125] (开放获取, 2025 作者版权许可); (b) 利用静电纺丝技术制备高度取向纳米纤维离子凝胶膜及其在柔性离子热电电容器中应用的示意图^[126] (2025 American Chemical Society 版权许可)

Figure 9 Orientation structure design of ionogels: (a) Schematic illustration of the preparation of ionogels with micro-oriented structures induced by *in-situ* pre-stretching during the salting-out process^[125] (Open Access, Copyright (2025) the Author(s)); (b) Schematic illustration of the preparation of highly oriented nanofibrous ionogel membranes by electrospinning and their application in flexible ionic thermoelectric capacitors (Reprinted with permission from Ref. [126]; Copyright (2025) American Chemical Society)

PVA 与聚丙烯酸构建了富含氢键位点的互穿网络结构, 并结合离子浸润与溶剂交换过程, 提高了聚合物网络中的离子浓度和离子迁移能力。因此, 该离子凝胶具有良好的力学和电学性能, 在柔性固态超级电容器中实现了面电容、能量密度与功率密度的协同提升。Hyun 等^[119] 引入剥离的滑石纳米片, 成功构建了纳米复合离子凝胶电解质。其中, 滑石纳米片凭借其巨大的比表面积和亲锂特性, 可以在限制离子液体形成固态网络的同时, 化学吸附阴离子以释放被束缚的锂离子, 使电解质在室温下获得 $0.9 \text{ mS} \cdot \text{cm}^{-1}$ 的高离子电导率, 组装的固态锂金属

电池在 500 次循环后可保持 91% 的高容量。通过分子工程与结构工程的协同调控, 构建的连续离子传输通道与稳定的电极-电解质界面, 可在保障离子电导率的同时提升器件的循环稳定性, 是推动离子凝胶在能量存储与转换领域应用的关键。

3.2 柔性传感器

离子凝胶因其优异的柔性形变能力与离子导电特性, 使其在柔性电子与可穿戴设备领域展现出重要的应用潜力^[137,138]。此类应用不仅要求材料具备良好的可拉伸性与电学性能, 还需要其在动态环境下实现与皮肤的稳定贴合以及长期佩戴

的舒适性^[139]。更为关键的是,在实际使用中离子凝胶常需面对湿度变化、温度波动以及反复形变等外界条件,其传感稳定性是器件可靠的重要前提^[140,141]。Lyu等^[142]利用阳离子-氧配位与氢键协同,设计了一种动态可逆的三维超分子网络。该网络结构实现了离子凝胶力学性能的宽幅度调节,并使其兼具优异的抗裂纹扩展能力。用其组装的柔性电子器件在复杂环境中能够稳定感知温度、压力、应变等多模态信号,表现出高灵敏度和

高稳定性(图10a)。Xu等^[81]将静电纺丝法制备的卷曲热塑性聚氨酯纳米网络与聚丙烯酸、离子液体复合,构建了一种具有互穿网络的离子凝胶薄膜。其中,热塑性聚氨酯的酰胺基团、聚丙烯酸的羧基与离子液体的阴阳离子之间可以形成多重氢键和离子-偶极相互作用,从而提升了离子凝胶薄膜的力学性能和结构稳定性。基于此离子凝胶的传感器能够实现连续、稳定的运动信号监测,在智能健康监测等领域具有应用潜力(图10b)。因此,

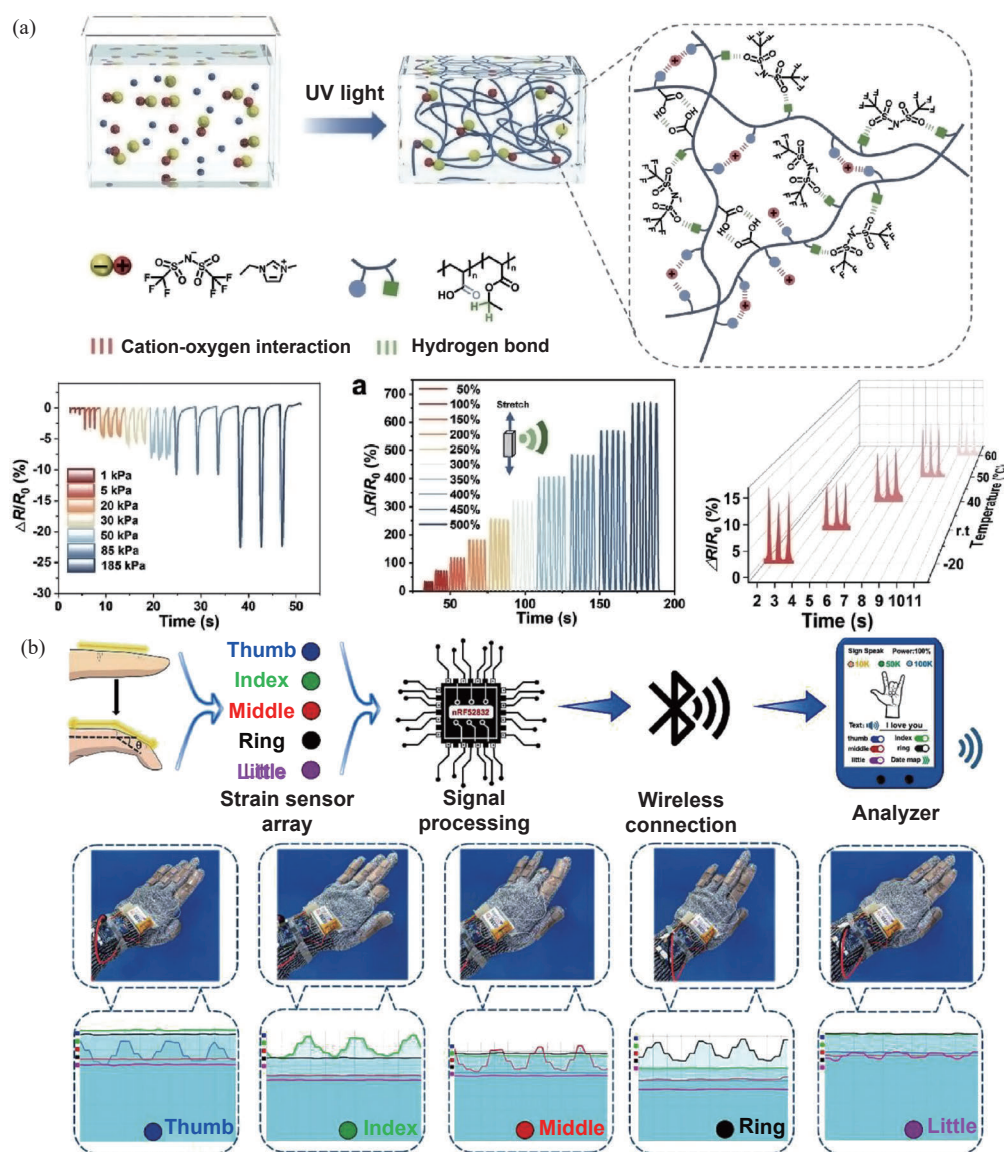


图10 离子凝胶在柔性传感器中的应用:(a)基于三维超分子网络的离子凝胶结构示意图、在不同应力、应变、温度下的相对电阻变化^[142](2024 Wiley-VCH GmbH 版权许可);(b)基于氢键与离子-偶极协同作用的超薄离子凝胶膜用于智能手套手势识别^[81](2025 Wiley-VCH GmbH 版权许可)

Figure 10 Application of ionogels in flexible sensor: (a) Schematic illustration of the ionogel structure based on a three-dimensional supramolecular network, and the relative resistance changes under different stress, strain, and temperature conditions (Reprinted with permission from Ref. [142]; Copyright (2024) Wiley-VCH GmbH); (b) Ultrathin ionogel film based on hydrogen bonding and ion-dipole synergy for smart glove gesture recognition (Reprinted with permission from Ref. [81]; Copyright (2025) Wiley-VCH GmbH)

能,为软体机器人在极端环境下的可靠驱动与智能感知一体化提供了新思路。

4 总结和展望

离子凝胶结合了聚合物网络的可调性与离子液体的功能特性,已成为柔性电子、软体机器人及能源存储等领域的重要材料体系。本综述从不同尺度结构的材料设计出发,系统梳理了离子凝胶的研究进展,分析了不同结构对力学、电学及功能特性的调控机制,并将现有策略归纳为分子工程与结构工程2类进行详细阐述,为突破离子凝胶不同性能间的相互制约提供了理论依据与设计思路。

尽管该领域已取得一定的发展和进步,但是,仍面临不少关键技术挑战。首先,在基础理论方面,现有研究多侧重于分析材料的设计策略与性能优化之间的构效关系,缺乏对不同尺度的结构单元之间协同机制的系统描述与定量建模。如何将微观结构特征及其不同尺度相互作用精准定向至材料的宏观综合性能,是当前亟需解决的理论瓶颈。构建具有预测能力的多尺度协同模型,将是推动离子凝胶研究从经验探索走向理性设计的关键一步。

其次,离子凝胶在实际应用中常面临力学性能、电导率与热稳定性之间的多重矛盾。刚性结构往往限制分子链运动与离子迁移,高电导率所需的连续离子传输通道有可能削弱网络的承载能力,而宽温域适应性则要求网络在不同温度下保持结构稳定。因此,探索更优的结构设计方法并形成普适性设计原则,仍是高性能离子凝胶发展的核心难题。

在服役可靠性方面,离子凝胶在动态载荷、温度/湿度变化等情况下,容易出现性能退化与器件失效。自修复功能虽然可以延长材料寿命,但现有体系普遍存在修复效率不足、依赖外部刺激、修复后界面不稳定等问题。此外,当前研究多集中于材料制备与性能表征,对复杂工况下性能变化规律的系统性研究仍较为欠缺。如何在保证高性能的同时实现复杂环境下的稳定、可持续应用,是推动离子凝胶实用化的关键问题。

未来,离子凝胶的多尺度结构设计将朝着更加深度融合的方向发展,通过跨尺度的结构匹配与功能耦合,力求在单一材料体系中同时突破不

同功能之间的多重矛盾。与此同时,形状记忆、自修复、环境自适应等功能的集成,也将推动离子凝胶器件从被动响应升级为主动感知。此外,基于生物质原料、可降解聚合物及绿色离子液体的新型离子凝胶体系,也将为开发环境友好、绿色可循环利用的高性能离子凝胶开辟新路径。

参考文献

- 1 Boufidis, D.; Garg, R.; Angelopoulos, E.; Cullen, D. K.; Vitale, F. Bio-inspired electronics: soft, biohybrid, and “living” neural interfaces. *Nat. Commun.*, **2025**, 16, 1861.
- 2 Zheng, Q. W.; Xin, L. M.; Zhang, Q.; Shen, F.; Lu, X.; Cao, C.; Xin, C. F.; Zhao, Y.; Liu, H. M.; Peng, Y.; Luo, J.; Guo, H. Y.; Li, Z. J. Leech-inspired amphibious soft robot driven by high-voltage triboelectricity. *Adv. Mater.*, **2025**, 37(8), 2417380.
- 3 Zhang, X. Y.; Lin, Y.; Shen, S. T.; Du, Z. H.; Lin, Z. Q.; Zhou, P. P.; Huang, H. L.; Lyu, X. L.; Zou, Z. G. Intrinsic anti-freezing, tough, and transparent hydrogels for smart optical and multi-modal sensing applications. *Adv. Mater.*, **2025**, 37(8), 2413856.
- 4 Du, Z. H.; Wang, Q. H.; Xiao, A. Q.; Zhou, P. P.; Lyu, X. L.; Zou, Z. G. Anti-swelling and mechanically robust composite hydrogels in aquatic environments. *Chinese J. Polym. Sci.*, **2026**, 44, 1027–1034.
- 5 Zhang, X. C.; Li, D.; Yang, X. X.; Wang, L.; Li, G.; Wong, T. W.; Li, T. F.; Yang, W.; Luo, Z. S. Hydro-locking in hydrogel for extreme temperature tolerance. *Science*, **2025**, 387(6737), 967–973.
- 6 Xu, Z. R.; Huang, Y. F.; Sun, S. Y.; Wang, P.; He, Z. Y.; Tian, H.; Ma, X. Programmable ultralong phosphorescent ionogels for intelligent monitoring. *Angew. Chem. Int. Ed.*, **2025**, 64(47), e202518340.
- 7 Xiong, J. F.; Duan, M. Z.; Zou, X. Y.; Gao, S. N.; Guo, J. N.; Wang, X. W.; Li, Q. N.; Li, W. Z.; Wang, X. L.; Yan, F. Biocompatible tough ionogels with reversible supramolecular adhesion. *J. Am. Chem. Soc.*, **2024**, 146(20), 13903–13913.
- 8 Han, X. K.; Lu, T. Y.; Huang, Y. Y.; Liu, G. T.; Guo, S. Y. Supramolecular-reinforced hard-phase ionogels with exceptional mechanical robustness and damage tolerance. *Adv. Mater.*, **2025**, 37(41), e10713.
- 9 Ma, D. X.; Zhou, Y.; Peng, R. G.; Zhen, Y. P.; Gao, L. K.; Ma, L. R.; Ding, N. B.; Yang, C.; Luo, Y. L.; Zhang, Y.; Lu, K. L.; Cui, Y. L.; Yan, Z. Y.; Liu, L.; Wang, G. X. High-sensitivity, dual-mode, flexible, electrooxidized cellulose-based electronic skins with compatible

- mechanical properties and antimicrobial activity for wide-temperature applications. *Mater. Horiz.*, **2026**, 13(4), 2005–2021.
- 10 Wang, J. W.; Zheng, Y. P.; Cui, T. Y.; Huang, T. Y.; Liu, H. D.; Zhu, J. X.; Song, L.; Hu, Y. Bioinspired ultra-robust ionogels constructed with soft-rigid confinement space for multimodal monitoring electronics. *Adv. Funct. Mater.*, **2024**, 34(6), 2312383.
- 11 Xu, A. L.; Liu, J. Y.; Wang, Y. G.; Xiao, Z. F.; Xie, Y. J. Leaf-inspired cellulose ionogels under spatial confinement with synergistically enhanced mechanical and sensing performance for flexible sensors. *Adv. Funct. Mater.*, **2026**, 36(14), e19010.
- 12 Xu, C. G.; Chen, Y.; Zhao, S. Y.; Li, D. K.; Tang, X.; Zhang, H. L.; Huang, J. X.; Guo, Z. G.; Liu, W. M. Mechanical regulation of polymer gels. *Chem. Rev.*, **2024**, 124(18), 10435–10508.
- 13 Xu, Z.; Xu, T.; Feng, J. Q.; Guo, P.; Yao, X.; Qin, H. L.; Cong, H. P. Nanoconfined entanglement-enhanced phase separation enables tough and contractile ionogel fibers. *Nat. Commun.*, **2026**, 17, 1003.
- 14 Chen, Y. X.; Yue, C. J.; Zhang, H.; Li, H. J.; Chen, W. Z.; Wang, W. Q.; Chen, T.; Wei, S. X. Anti-swelling, underwater adhesion, and luminescent polymeric ionogels for multifunctional marine wearable skin. *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **2026**, 18(1), 3250–3261.
- 15 Jiang, J. L.; Song, X. N.; Chen, Y. X.; Zhou, H. F.; Zhao, L. Toward tough and recyclable ionogels with high thermal sensitivity via microphase separation for sustainable ionic skins. *Chem. Eng. J.*, **2026**, 537, 176521.
- 16 Jin, Y. F.; Liu, M. Q.; Wang, X. L.; Feng, J. C.; Wang, X. R.; Cao, X. R.; Piao, Y. J.; An, C. J. Simultaneous enhancement of thermoelectric and mechanical properties in recyclable transparent ionogels via *in-situ* phase separation. *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **2026**, 18(15), 22161–22170.
- 17 Liu, Y. X.; Long, Y.; Zhao, B. Q.; Jian, X. Y.; Sha, W.; Wang, J. W.; Chen, Y. H.; Wang, T. N.; Yang, H. W.; Hu, W. G.; Li, X. X. Cation- π interaction and π -delocalization coupled ionogel electrodes for triboelectric and bioelectronic interfaces. *Nano Energy*, **2026**, 153, 111954.
- 18 Zhang, L. W.; Liu, S.; Wang, Z. Z.; Lei, Z. Y.; Wu, P. Y. An enthalpy-entropy compensated ionogel with a broadband viscoelastic plateau for non-invasive and high-fidelity neurointerfaces. *Adv. Mater.*, **2026**, 38(16), e21208.
- 19 Dang, C.; Shao, C. Y.; Liu, H. C.; Chen, Y. A.; Qi, H. S. Cellulose melt processing assisted by small biomass molecule to fabricate recyclable ionogels for versatile stretchable triboelectric nanogenerators. *Nano Energy*, **2021**, 90, 106619.
- 20 Wang, T.; Chu, Y. Q.; Fang, Y. Z.; Liu, Z. F. Stretchable alternating current electroluminescent fiber based on transparent and highly conductive dual-network imidazolium chloride ion-gel electrodes for wearable display applications. *J. Mater. Chem. C*, **2025**, 13(7), 3482–3492.
- 21 Hu, A. K.; Liu, C.; Cui, Z. Y.; Cong, Z. H.; Niu, J. Wearable sensors adapted to extreme environments based on the robust ionogel electrolytes with dual hydrogen networks. *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **2022**, 14(10), 12713–12721.
- 22 Wang, S. B.; Zhang, D.; Zhou, J. H.; He, X. M.; Zheng, S. Y.; Yang, J. T. Zwitterionic ionogels with water-mediated stiffness transition for shape memory and moisture electric generation. *Nano Energy*, **2024**, 120, 109166.
- 23 Wu, Q. R.; Xu, Y. D.; Han, S. J.; Zhu, J. D.; Chen, A. B.; Zhang, J. Y.; Chen, Y. J.; Yang, X. X.; Huang, J. R.; Guan, L. H. A liquid-free conducting ionoelastomer for 3D printable multifunctional self-healing electronic skin with tactile sensing capabilities. *Mater. Horiz.*, **2023**, 10(9), 3610–3621.
- 24 Qiu, J. M.; Song, Y. Y.; Li, J.; Lu, C. H.; Wu, X. D.; Xiong, R. Chiral photonic ionic skin for ultrafast, hysteresis-free mechanosensing. *ACS Nano*, **2025**, 19(46), 39827–39838.
- 25 Kang, T.; Dai, J. Y.; Huang, Y.; Kim, H.; Keten, S.; Kim, J. Entanglements and fracture in polymers. *Chem. Rev.*, **2025**, 125(22), 11032–11057.
- 26 Yan, Y. Z.; Jing, X.; Wang, G. R.; Feng, P. Y.; Mi, H. Y.; Liu, Y. J.; Geng, L. H. Solvent-driven dual-network entanglement for organo-hydrogels with high strength and toughness. *Sci. China Mater.*, **2026**, 69, 3492–3502.
- 27 Yao, L.; Huang, Y.; Chen, G. Q.; Zhou, Z. Q.; Zhu, H.; Zhang, Q.; Zhu, S. P. Anti-creep adhesive tapes via trapped-entanglement-regulated topological networks. *Adv. Mater.*, **2026**, 38(7), e13105.
- 28 Mei, H. G.; Liu, C.; Jiang, N.; Wang, J.; He, Z. J.; Yang, X.; Wang, Y. F.; Zhao, D.; Wang, Y. P.; Zhang, S.; Li, G. F.; Huang, F. H. Robust ionic gel elastomers derived from molecularly entangled nodes. *Angew. Chem. Int. Ed.*, **2025**, 64(32), e202506559.
- 29 Lai, X. L.; Han, X. K.; Liu, G. T.; Guo, S. Y. A tough PVA ionogel with high damage tolerance, impact resistance, and sensitivity for advanced flexible armor. *Chem. Eng. J.*, **2026**, 527, 172040.
- 30 Liu, Y. S.; Li, Y. J.; Zuo, F. Z.; Gao, Z. Y.; Song, H. Z. Doubly reversible thermochromic and thermoresponsive

- photoluminescent ionogels with high stretchability, low hysteresis, and excellent thermomechanical stability. *Macromolecules*, **2025**, 58(14), 7245–7257.
- 31 Zhou, P. P.; Zhan, W. Q.; Shen, S. T.; Zhang, H.; Zou, Z. G.; Lyu, X. L. Strain-stiffening, robust yet compliant ionic elastomer from highly entangled polymer networks and metal-oxygen interactions. *Adv. Funct. Mater.*, **2024**, 34(38), 2402952.
 - 32 Li, W. H.; Li, M.; Pi, M. H.; Shen, H. W.; Zhu, S. L.; Cui, W.; Ran, R. Recyclable strong tough ionogels *via* the synergy of solvent-induced cross-linking and chain entanglement. *Macromolecules*, **2025**, 58(18), 9819–9831.
 - 33 Tamate, R.; Kamiyama, Y.; Kojio, K. Stiff and fracture-resistant ion gels enabled by synergetic physical entanglement and hydrogen bonding. *Small*, **2025**, 21(48), e09922.
 - 34 Ando, S.; Ito, K. Recent progress and future perspective in slide-ring based polymeric materials. *Macromolecules*, **2025**, 58(5), 2157–2177.
 - 35 Deng, X. T.; Chen, J.; Jia, X.; Da, X. Y.; Zhao, Y. J.; Gao, Y. Y.; Gao, Y.; Kong, X. P.; Ding, S. J.; Gao, G. X. Highly tough slide-crosslinked gel polymer electrolyte for stable lithium metal batteries. *Angew. Chem. Int. Ed.*, **2024**, e202410818.
 - 36 Zhu, H. R.; Zeng, X. Y.; Liu, X. W.; Zhu, J. X.; Hua, J. H.; Lan, J. L.; Yu, Y. H.; Yang, X. P. Slide-crosslinked polyrotaxane topological networks: quasi-solid electrolyte for high-voltage lithium metal batteries. *Adv. Sci.*, **2025**, 12(39), e08598.
 - 37 Du, R. C.; Gao, J.; Zhang, Z. K.; Kong, D. S.; Li, Z. P.; Song, M. L.; Zhu, H. S.; Jin, X. X.; Sun, X. C.; Cao, Y.; Hu, J. L.; Zhang, Q. H.; Jia, X. D. Friction modulation *via* ring-size engineering of polyrotaxanes for synergistically tough and low-hysteresis ionogels. *Macromolecules*, **2026**, 59(4), 2179–2192.
 - 38 Enoki, T.; Hashimoto, K.; Oda, T.; Ito, K.; Mayumi, K. Tough and durable slide-ring ion gels for stretchable electronics leveraging strain-induced crystallization of poly(ethylene glycol). *Macromolecules*, **2024**, 57(24), 11498–11506.
 - 39 Yan, S. S.; Liu, J. J.; He, Z. N.; Jia, H.; Chen, Z. H.; Zhang, Y. H.; Gohy, J. F. High-performance ionogels from dynamic polyrotaxane-based networks. *Angew. Chem. Int. Ed.*, **2025**, 64(20), e202503307.
 - 40 Du, R. C.; Bao, T. W.; Zhu, T. S.; Zhang, J.; Huang, X. X.; Jin, Q.; Xin, M.; Pan, L. J.; Zhang, Q. H.; Jia, X. D. A low-hysteresis and highly stretchable ionogel enabled by well dispersed slidable cross-linker for rapid human-machine interaction. *Adv. Funct. Mater.*, **2023**, 33(30), 2212888.
 - 41 Guo, Y. Y.; Liu, Y. F.; Yuan, C. L.; Champness, N. R.; Wang, J. C.; Yang, L. X. Unraveling positive deformation rate-elongation relationships in tough and highly stretchable ionogels under rapid deformation. *Nat. Commun.*, **2026**, 17, 340.
 - 42 Li, H. L.; Xu, F. C.; Lin, X. R.; Li, Y. Self-healing ionogel with unprecedented high gel-sol transition temperature enables self-healing zinc-air battery operation at 100 °C. *Adv. Funct. Mater.*, **2026**, 36(3), e13459.
 - 43 Li, X.; Zhang, Y. N.; Zhang, Y. T.; Lin, W. T.; Lu, H. B.; Ji, K. M.; Chen, M. M. Gel electrolyte self-healing *via* dynamic reversible bonds for stable lithium plating/stripping in lithium metal batteries. *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **2026**, 18(5), 8152–8164.
 - 44 Ge, G.; Mandal, K.; Haghniaz, R.; Li, M. C.; Xiao, X.; Carlson, L.; Jucaud, V.; Dokmeci, M. R.; Ho, G. W.; Khademhosseini, A. Deep eutectic solvents-based ionogels with ultrafast gelation and high adhesion in harsh environments. *Adv. Funct. Mater.*, **2023**, 33(9), 2207388.
 - 45 Xu, F. C.; Li, H. L.; Li, Y. Sea cucumber-inspired polyurethane demonstrating record-breaking mechanical properties in room-temperature self-healing ionogels. *Adv. Mater.*, **2024**, 36(44), 2412317.
 - 46 Zhen, W. C.; Lu, C. S.; Li, D.; Meng, G. F.; Wang, H. Q.; Jiang, Y. F.; Lou, J.; Han, W. J. Cation-anchoring-induced efficient n-type thermo-electric ionogel with ultra-high thermopower. *Adv. Sci.*, **2025**, 12(19), 2414389.
 - 47 Xu, S. J.; Wu, S. J.; Zhu, R. T.; Qiu, Z. M.; Yan, Y. R. Fully physically crosslinked PNIPAM ionogels with high mechanical properties and temperature-managed adhesion achieved by H₂O/ionic liquid binary solvents. *Adv. Funct. Mater.*, **2024**, 34(41), 2405965.
 - 48 Zhang, H.; Jia, W. B.; Sun, M. Z.; Chen, Y. X.; Zhang, X. Y.; Li, H.; He, X. D.; Shi, P.; Xu, L. Z. High-strength and fracture-resistant ionogels *via* solvent-tailored interphase cohesion in nanofibrous composite networks. *Sci. Adv.*, **2025**, 11(47), eaea6883.
 - 49 Du, Z. H.; Shen, S. T.; Su, X. Z.; Zhuang, Y. H.; Chen, M. X.; Zhang, X. Y.; Lin, Z. Q.; Yu, L.; Zhou, P. P.; Wu, M. M.; Lyu, X. L.; Zou, Z. G. A robust and tough composite hydrogel electrolyte with anion-locked supramolecular network for zinc ion batteries. *Adv. Mater.*, **2025**, 37(24), 2502328.
 - 50 Sun, L. J.; Huang, H. F.; Zhang, L. Z.; Neisiany, R. E.; Ma, X. P.; Tan, H.; You, Z. W. Spider-silk-inspired tough, self-healing, and melt-spinnable ionogels. *Adv.*

- Sci.*, **2024**, 11(3), 2305697.
- 51 Shen, S. T.; Du, Z. H.; Zhou, P. P.; Zou, Z. G.; Lyu, X. L. A mechanically robust, damping, and high-temperature tolerant ion-conductive elastomer for noise-free flexible electronics. *Adv. Funct. Mater.*, **2024**, 34(46), 2408017.
- 52 Ho, D. H.; Kim, Y. M.; Kim, U. J.; Yu, K. S.; Kwon, J. H.; Moon, H. C.; Cho, J. H. Zwitterionic polymer gel-based fully self-healable ionic thermoelectric generators with pressure-activated electrodes. *Adv. Energy Mater.*, **2023**, 13(32), 2370134.
- 53 Lyu, X. L.; Zhang, H. Q.; Yang, S. C.; Zhan, W. Q.; Wu, M. M.; Yu, Y.; Shen, Z. H.; Zou, Z. G. Strain-stiffening ionogel with high-temperature tolerance via the synergy of ionic clusters and hydrogen bonds. *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **2023**, 15(26), 31888–31898.
- 54 Yu, L.; Huang, C. Z.; Gong, Y.; Zheng, S. X.; Zhou, P. P.; Zhang, X.; Zou, Z. G.; Lyu, X. L. Ultrastretchable and tough poly(ionic liquid) elastomer with strain-stiffening ability enabled by strong/weak ionic interactions. *Macromolecules*, **2024**, 57(5), 2339–2350.
- 55 Liu, Z. Y.; Wang, X. W.; Duan, M. Z.; Wu, M.; Li, Q. N.; Xiong, J. F.; Wang, X. L.; Li, W. Z.; Yan, F. High-modulus and high-damping ionic polymers enabled by cohesive entanglement. *Adv. Mater.*, **2026**, 38(13), e17751.
- 56 Zhang, C. Y.; Shi, X. L.; Chao, X. J.; Wang, M. X.; Chen, W. Y.; Liu, Q.; Cao, T. Y.; Hu, B. X.; Sun, S.; Chen, Z. G. Ionic coordination and hierarchical architecture enable record n-type thermoelectric efficiency in soft hydrogels. *Angew. Chem. Int. Ed.*, **2026**, 65(18), e4172130.
- 57 Hong, S. H.; Kim, Y. M.; Moon, H. C. Dynamic metal-ligand coordination-assisted ionogels for deformable alternating current electroluminescent devices. *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **2023**, 15(23), 28516–28523.
- 58 Huang, H. F.; Sun, L. J.; Zhang, Y. L.; Zhang, R. H.; Chen, C.; Sun, W. Ionogels reinforced by ionophobic coordination. *Adv. Mater.*, **2025**, 37(34), 2506563.
- 59 Wu, J. T.; Huang, L.; Wang, S. P.; Li, X. R.; Wen, L.; Li, X. M.; Feng, T. T.; Li, P. Y.; Fang, Z. X.; Wu, M. Q.; Lv, W. Ionogel electrolyte with dynamic metal-ligand interactions enabled self-healable supercapacitor with high energy density. *Energy Storage Mater.*, **2023**, 57, 549–556.
- 60 Xia, Q. M.; Li, W. Z.; Zou, X. Y.; Zheng, S. J.; Liu, Z. Y.; Li, L. L.; Yan, F. Metal-organic framework (MOF) facilitated highly stretchable and fatigue-resistant ionogels for recyclable sensors. *Mater. Horiz.*, **2022**, 9(11), 2881–2892.
- 61 Zhang, Y. X.; Li, K. X.; Tang, J.; Bai, Y. Y.; Chen, Y. M.; Lv, J.; Zrínyi, M. Multiscale interfacial designed ionogel/leather ionic skin for multimodal sensing capability. *Adv. Funct. Mater.*, **2025**, 35(40), 2500640.
- 62 Kwon, J. H.; Hong, S. H.; Lee, G. R.; Kim, J. C.; Moon, H. C. Synergistic dual-cross-linking gelation: exploring the impact of metal-ligand complexation on ionogel performance. *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **2024**, 16(44), 61115–61122.
- 63 Zhao, W.; Zheng, Y. W.; Jiang, M.; Sun, T. T.; Huang, A. B.; Wang, L. J.; Jiang, W.; Zhang, Q. H. Exceptional n-type thermoelectric ionogels enabled by metal coordination and ion-selective association. *Sci. Adv.*, **2023**, 9(43), eadk2098.
- 64 Liu, P.; Pei, D. F.; Wu, Y. P.; Li, M. J.; Zhao, X. H.; Li, C. X. Dynamic and mechanically robust and ultrafast healable ionogel for nerve fiber-inspired signal transmitter. *J. Mater. Chem. A*, **2022**, 10(48), 25602–25610.
- 65 Lv, H. Y.; Wang, Z. E.; Gao, Z. Y.; Song, H. Z. Highly stretchable, self-healable, and environment-adaptable ionogel-based high-output triboelectric nanogenerator for self-powered wearable ionotronics. *Chem. Eng. J.*, **2025**, 509, 161247.
- 66 Sun, Y. D.; Hu, Z. P.; Tang, A. Y.; Zhang, S. F.; Niu, W. B. Bioinspired waterproof and self-healing photonic-ionic skin for underwater interactive sensing. *Chem. Eng. J.*, **2024**, 497, 154495.
- 67 Yang, L.; Sun, L. J.; Huang, H. F.; Zhu, W. F.; Wang, Y. H.; Wu, Z. K.; Neisiany, R. E.; Gu, S. J.; You, Z. W. Mechanically robust and room temperature self-healing ionogel based on ionic liquid inhibited reversible reaction of disulfide bonds. *Adv. Sci.*, **2023**, 10(20), 2207527.
- 68 Zhang, Z. P.; Qian, L.; Zhang, B.; Ma, C. F.; Zhang, G. Z. Jellyfish-inspired polyurea ionogel with mechanical robustness, self-healing, and fluorescence enabled by hyperbranched cluster aggregates. *Angew. Chem. Int. Ed.*, **2024**, 63(40), e202410335.
- 69 Zhang, Z. Y.; Zhao, X.; Song, X.; Peng, D. J.; Ren, S. X.; Ren, J. X.; Ma, Y. L.; Li, S. J. Versatile ionic liquid gels formed by dynamic covalent bonding and microphase separated structures. *Mater. Horiz.*, **2024**, 11(17), 4171–4182.
- 70 Fu, Y. H.; Chen, L. Y.; Xu, F. C.; Li, X.; Li, Y.; Sun, J. Q. Spontaneous self-healing ionogels for efficient and reliable carbon dioxide separation. *J. Mater. Chem. A*, **2022**, 10(9), 4695–4702.
- 71 Tan, H.; Sun, L. J.; Huang, H. F.; Zhang, L. Z.; Neisiany, R. E.; Ma, X. P.; You, Z. W. Continuous melt spinning of adaptable covalently cross-linked self-healing ionogel fibers for multi-functional ionotronics. *Adv. Mater.*,

- 2024, 36(13), 2310020.
- 72 Adjaoud, A.; Puchot, L.; Shaplov, A. S.; Verge, P. A flexible and recyclable polybenzoxazine vitrimer ionogel. *Chem. Mater.*, **2025**, 37(20), 8345–8355.
- 73 Fan, X. T.; Luo, Y. F.; Li, K.; Wong, Y. J.; Wang, C.; Yeo, J. C. C.; Yang, G. L.; Li, J. F.; Loh, X. J.; Li, Z. B.; Chen, X. D. A recyclable ionogel with high mechanical robustness based on covalent adaptable networks. *Adv. Mater.*, **2024**, 36(44), 2407398.
- 74 Huang, H. F.; Sun, W.; Sun, L. J.; Zhang, L. Z.; Wang, Y.; Zhang, Y. W.; Gu, S. J.; You, Z. W.; Zhu, M. F. Internal catalysis significantly promotes the bond exchange of covalent adaptable polyurethane networks. *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, **2024**, 121(34), e2404726121.
- 75 Li, Q. N.; Zheng, S. J.; Liu, Z. Y.; Li, W. Z.; Wang, X. W.; Cao, Q.; Yan, F. Strong, spontaneous, and self-healing poly(ionic liquid) elastomer underwater adhesive with borate ester dynamic crosslinking. *Adv. Mater.*, **2024**, 36(50), 2413901.
- 76 Yan, X. R.; Zhao, R. R.; Lin, H. J.; Zhao, Z. D.; Song, S. S.; Wang, Y. F. Nucleobase-driven wearable ionogel electronics for long-term human motion detection and electrophysiological signal monitoring. *Adv. Funct. Mater.*, **2025**, 35(2), 2412244.
- 77 Ye, Z. W.; Yu, H. M.; Xie, H. X.; Zhu, W. W.; Shi, S. T.; Liu, C. C.; Wang, Y. Y.; Liao, J. Q.; Sun, Q. F.; Zhao, D. W.; Shen, X. P. Flame-retardant ionogel enabled by lignin molecular networks for fire rescue. *Adv. Sci.*, **2025**, 12(35), e06901.
- 78 Yu, X. H.; Teng, C. P.; Yeo, J. C. C.; Fan, X. T.; Fan, X. S.; Liu, T. X.; Li, Z. B. Multifunctional recyclable electronic skins enabled by hierarchical dynamic network structures. *Adv. Funct. Mater.*, **2025**, 35(33), 2501677.
- 79 Chen, Z. J.; Sun, Y. Q.; Xiao, X.; Wang, H. Q.; Zhang, M. H.; Wang, F. Z.; Lai, J. C.; Zhang, D. S.; Pan, L. J.; Li, C. H. An ultra-tough and ultra-sensitive ionogel pressure/temperature sensor enabled by hierarchical design of both materials and devices. *J. Mater. Chem. A*, **2023**, 11(15), 8359–8367.
- 80 Xiao, J.; Zhu, T. Y.; Zhang, H. Y.; Xie, W.; Dong, R. H.; Li, Y. T.; Wang, X. Healable, recyclable, and upcyclable gel membranes for efficient carbon dioxide separation. *Angew. Chem. Int. Ed.*, **2024**, 63(43), e202411270.
- 81 Xu, Y. Q.; Jing, X.; Feng, P. Y.; Antwi-Afari, M. F.; Liu, Y. J.; Liu, F. X.; Li, S. T.; Mi, H. Y. Breathable, nanonet-reinforced ultrathin ionogel film *via* hydrogen bonding-ion dipole synergy for multifunctional wearable sensors. *Adv. Funct. Mater.*, **2026**, 36(10), e17882.
- 82 Kou, Z. M.; Sha, Y.; Hu, L. H.; Liu, M. T.; Huang, F. C.; Wang, J.; Bo, C. Y.; Zhou, Y. H.; Zhao, D. W.; Jia, P. Y. Supramolecular-engineered bamboo lignin polymer with enhanced mechanical and electrical properties for flexible electronics. *Adv. Sci.*, **2025**, 12(43), e12983.
- 83 Padhan, A. K.; Sharma, D.; Thomas, T. S.; Sinha, A. P.; Mallick, A. N.; Mandal, D. Rapid self-healing and superior toughness in ionically crosslinked polymer ionogels and strain sensing applications. *J. Mater. Chem. A*, **2024**, 12(16), 9508–9517.
- 84 Pi, M. H.; Wu, H. L.; Li, W. H.; Shen, H. W.; Li, M.; Cui, W.; Ran, R. Facile preparation of polymerizable deep eutectic solvents under mild conditions for multisensory ionic skins. *Small*, **2025**, 21(4), 2409754.
- 85 Chen, Q. F.; Cheng, B. B.; Wang, Z. Q.; Sun, X. H.; Liu, Y.; Sun, H. D.; Li, J. W.; Chen, L. H.; Zhu, X. H.; Huang, L. L.; Ni, Y. H.; An, M.; Li, J. G. Rarely negative-thermovoltage cellulose ionogel with simultaneously boosted mechanical strength and ionic conductivity *via* ion-molecular engineering. *J. Mater. Chem. A*, **2023**, 11(5), 2145–2154.
- 86 Huang, J. Q.; Hu, Y.; Gao, Q. W.; She, Y. P.; Li, J. J.; Hu, H. M.; Zheng, H. Y.; Yan, F.; Ji, X. Y. Multiple-crosslinking-reinforced ionogel electrolytes for safe and high-performance quasi-solid-state lithium metal batteries. *J. Mater. Chem. A*, **2025**, 13(47), 41019–41029.
- 87 Jia, L. Y.; Xiao, J.; Tan, Y.; Zhang, K. Q.; Liu, Y. Q.; Wang, X. Supramolecular ionogels for use in locating damage to underwater infrastructure. *Small*, **2024**, 20(19), 2309231.
- 88 Li, L. L.; Li, W. Z.; Wang, X. L.; Zou, X. Y.; Zheng, S. J.; Liu, Z. Y.; Li, Q. N.; Xia, Q. M.; Yan, F. Ultra-tough and recyclable ionogels constructed by coordinated supramolecular solvents. *Angew. Chem. Int. Ed.*, **2022**, 61(50), e202212512.
- 89 Wang, Y. C.; Li, S.; Han, J. Y.; Yin, K. Y.; Chen, W. Z.; Zhou, W.; Zhang, T.; Xiao, P.; Chen, T. Supramolecular coupling effect enhanced highly transparent, conductive ionic skin for underwater sensory and interactive robotics. *Adv. Mater.*, **2026**, 38(9), e18076.
- 90 Zhou, Q.; Zhou, S.; Puglia, D.; Zhang, X. J.; Xu, P. W.; Niu, D. Y.; Yang, W. J.; Ma, P. M. Ultrastretchable and recyclable ionogels with hierarchical dynamic bonds for respiratory monitoring. *Adv. Funct. Mater.*, **2026**, 36(2), e12398.
- 91 Chen, H. M.; Huang, C. Y.; Lu, K.; Gao, Y. Z.; Yan, J. L.; Wang, Z. Confinement-locking strategy enables ionogels with remarkable mechanical robustness and fatigue resistance. *Adv. Mater.*, **2026**, 38(10), e20126.
- 92 Demarthe, N.; O'dell, L. A.; Humbert, B.; Arrua, R.

- D.; Evans, D.; Brousse, T.; Le Bideau, J. Enhanced Li^+ and Mg^{2+} diffusion at the polymer-ionic liquid interface within PVDF-based ionogel electrolytes for batteries and metal-ion capacitors. *Adv. Energy Mater.*, **2024**, 14(18), 2304342.
- 93 Hyun, W. J.; Thomas, C. M.; Chaney, L. E.; Mazarin de Moraes, A. C.; Hersam, M. C. Screen-printable hexagonal boron nitride ionogel electrolytes for mechanically deformable solid-state lithium-ion batteries. *Nano Lett.*, **2022**, 22(13), 5372–5378.
 - 94 Wang, X. L.; Jin, Y. F.; Fu, H.; Zhang, L. J.; Lee, P. C.; An, C. J. Self-healing and stretchable tetrameric PVA-CNF-PVP-IL complex ionogel with high-performance ionic thermoelectric properties. *J. Mater. Chem. A*, **2025**, 13(22), 16948–16957.
 - 95 Huang, Y. Y.; Ming, X. Q.; Tang, Z.; Chen, G. Q.; Duan, X. Z.; Zhu, H.; Zhu, S. P.; Zhang, Q. Ultra-strong ionogel adhesives via *in situ* microphase separation. *Adv. Funct. Mater.*, **2025**, 35(11), 2417011.
 - 96 Tie, J. F.; Mao, Z. P.; Zhang, L. P.; Zhong, Y.; Xu, H. Strong and ultratough ionogel enabled by ingenious combined ionic liquids induced microphase separation. *Adv. Funct. Mater.*, **2023**, 33(52), 2307367.
 - 97 Li, F. Y.; Wu, K. F.; Zhang, X.; Fu, Y. M.; Sun, T. L.; Guo, H. L.; Wang, X. L.; Guo, H.; Meng, Y. Z. “Frozen” ionogels with high and tunable toughness for soft electronics. *Small*, **2025**, 21(11), 2500477.
 - 98 Li, X.; Yang, X. M.; Li, S. J.; Lv, H. Y.; Wang, Z. E.; Gao, Z. Y.; Song, H. Z. 3D printing of thermo-mechano-responsive photoluminescent noncovalent cross-linked ionogels with high-stretchability and ultralow-hysteresis for wearable iontronics and anti-counterfeiting. *Small*, **2024**, 20(43), 2403252.
 - 99 Lv, D.; Li, X.; Huang, X.; Cao, C. Y.; Ai, L. Q.; Wang, X. J.; Ravi, S. K.; Yao, X. Microphase-separated elastic and ultrastretchable ionogel for reliable ionic skin with multimodal sensation. *Adv. Mater.*, **2024**, 36(17), 2309821.
 - 100 Zeng, G.; Gao, W. S.; Qiu, W. C.; Li, G. L.; Chen, S. S.; He, X.; Sun, G. X.; Yang, W. J.; Xin, Y. Microphase-separation-induced polyzwitterionic ionogel with tough, highly conductive, self-healing and shape-memory properties for wearable electrical devices. *J. Mater. Chem. A*, **2024**, 12(44), 30618–30628.
 - 101 He, X. N.; Zhang, B.; Liu, Q. J.; Chen, H.; Cheng, J. X.; Jian, B. C.; Yin, H. L.; Li, H. G.; Duan, K.; Zhang, J. W.; Ge, Q. Highly conductive and stretchable nanostructured ionogels for 3D printing capacitive sensors with superior performance. *Nat. Commun.*, **2024**, 15, 6431.
 - 102 Xu, J.; Wu, B. H.; Hou, L.; Wu, P. Y. Hydrogen bonding competition mediated phase separation with abnormal moisture-induced stiffness boosting. *Small*, **2024**, 20(36), 2401164.
 - 103 Zhang, J. X.; Yin, J. J.; Li, N.; Liu, H.; Wu, Z. H.; Liu, Y.; Jiao, T. F.; Qin, Z. H. Simultaneously enhancing the mechanical strength and ionic conductivity of stretchable ionogels enabled by polymerization-induced phase separation. *Macromolecules*, **2022**, 55(24), 10950–10959.
 - 104 Zhang, M. W.; Yu, R.; Tao, X. L.; He, Y. Y.; Li, X. P.; Tian, F.; Chen, X. Y.; Huang, W. Mechanically robust and highly conductive ionogels for soft iontronics. *Adv. Funct. Mater.*, **2023**, 33(10), 2208083.
 - 105 Cong, Z. H.; Cui, Z. Y.; Liu, C.; Wang, J. L.; Huo, X. S.; Xu, J. B.; Niu, J. High strength and tough ionogels with bicontinuous phase network structure induced by electrostatic adsorption triggered microphase separation. *Adv. Funct. Mater.*, **2024**, 34(52), 2410588.
 - 106 Shi, J. L.; Xie, S.; Liu, Z. G.; Cai, M. K.; Guo, C. F. Non-hygroscopic ionogel-based humidity-insensitive iontronic sensor arrays for intra-articular pressure sensing. *Natl. Sci. Rev.*, **2024**, 11(11), nwae351.
 - 107 Zeng, L. S.; Liu, F. K.; Yu, Q. F.; Jin, C. Y.; Yang, J.; Suo, Z. G.; Tang, J. D. Flaw-insensitive fatigue resistance of chemically fixed collagenous soft tissues. *Sci. Adv.*, **2023**, 9(9), eade7375.
 - 108 Lee, L. C.; Hong, S. H.; Kim, M. S.; Jeng, U. S.; Wang, C. H.; Tung, S. H.; Lee, K. H.; Liu, C. L. Enhanced thermoelectric performance of PVA-based ionogels: tailoring crystallinity via additives for advanced waste heat recovery. *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **2025**, 17(26), 38545–38557.
 - 109 Zhan, W. Q.; Zhang, H. Q.; Lyu, X.; Luo, Z. Z.; Yu, Y.; Zou, Z. G. An ultra-tough and super-stretchable ionogel with multi functions towards flexible iontronics. *Sci. China Mater.*, **2023**, 66(4), 1539–1550.
 - 110 Li, N.; He, P.; Qin, Z. H.; Yan, Y. C.; Duan, S. D.; Li, Y. F.; Shi, X. J.; Qiao, Y. X.; Jiang, J. N.; Jiao, T. F.; He, X. M. Rapid self-assembly of robust ultrathin ionogel films for high-performance bioelectronics. *Sci. Adv.*, **2026**, 12(9), eacb4391.
 - 111 Li, X.; Jiang, H. B.; Zhang, Y.; Long, Q.; Jiang, G. Y.; Zeng, S. Q.; Zhou, J. F.; Zhao, D. W. Stimulation-reinforced cellulose-protein ionogels with superior mechanical strength and temperature resistance. *Adv. Funct. Mater.*, **2024**, 34(48), 2408160.
 - 112 Wang, J. Y.; Zhang, S. L.; Li, L. L.; Wang, X. L.; Xiong, J. F.; Li, Q. N.; Li, W. Z.; Yan, F. Glassy ionogels with high compressibility and strength for impact protection. *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, **2025**, 122(15),

- e2417978122.
- 113 Li, X. N.; Tong, Z. H.; Qiu, Y. X.; Zheng, Z. H.; Zeng, S. Q.; Zhao, D. W.; Yu, H. P. Balancing mechanical-thermal-electrical properties in cellulose ionogels via crystallization-induced molecular assembly. *Nat. Commun.*, **2025**, 16, 9970.
 - 114 Zheng, Y.; Dong, Z. K.; Luo, S. C.; Jin, Q.; Tao, S. L.; Ding, Y. C.; Li, T.; Wang, X. L.; Zhou, D. S.; Chen, S. J. Cocystal effect-driven ultrafast phase-transition ionogel for dynamically switchable adhesion interfaces. *Nat. Commun.*, **2025**, 16, 8792.
 - 115 Zheng, Y.; Dong, Z. K.; Wu, M.; Duan, M. Z.; Yin, S. B.; Jin, Q.; Chen, S. J.; Wang, X. L.; Zhou, D. S. Programmable adhesive ionogels dominated by temperature-triggered reversible side-chain crystallization. *Chem. Eng. J.*, **2024**, 498, 155513.
 - 116 Wang, S. H.; Liu, H. Y.; Yu, Z. Y.; Ren, X. L.; Hua, Q.; Panahi-Sarmad, M.; Yang, P.; Liu, C. H.; Renneckar, S.; Liu, H.; Jiang, F. Cellulose-mediated ionic liquid crystallization enables tough-stiff switchable ionogels. *Nat. Commun.*, **2025**, 16, 9007.
 - 117 Zhu, J. J.; Gao, H. W.; Zheng, Z. F.; Cao, Y. Z.; Wang, T. Y.; Kumar Kankala, R.; Wu, L. X.; Chen, A. Z.; Wang, S. B.; Li, Y. W. Photocuring 3D printable flexible strain sensor enhanced by *in situ* grown silk fibroin nanoparticles. *Chem. Eng. J.*, **2024**, 497, 154762.
 - 118 Li, H. L.; Xu, F. C.; Guan, T. T.; Li, Y.; Sun, J. Q. Mechanically and environmentally stable triboelectric nanogenerator based on high-strength and anti-compression self-healing ionogel. *Nano Energy*, **2021**, 90, 106645.
 - 119 Luo, X. J.; Li, J. M.; Gu, Y. X.; Du, J.; Huang, Y. J.; Baskin, I.; Ein-Eli, Y.; Hyun, W. J. Talc nanosheet ionogel electrolytes with high lithium-ion conductivity for solid-state lithium metal batteries. *Nano Lett.*, **2025**, 25(9), 3430–3437.
 - 120 Sun, S.; Shi, X. L.; Lyu, W.; Hong, M.; Chen, W. Y.; Li, M.; Cao, T. Y.; Hu, B. X.; Liu, Q. F.; Chen, Z. G. Stable, self-adhesive, and high-performance graphene-oxide-modified flexible ionogel thermoelectric films. *Adv. Funct. Mater.*, **2024**, 34(39), 2402823.
 - 121 Li, X.; Lv, D.; Ai, L. Q.; Wang, X. J.; Xu, X. B.; Qiang, M. Y.; Huang, G. S.; Yao, X. Superstrong ionogel enabled by coacervation-induced nanofibril assembly for sustainable moisture energy harvesting. *ACS Nano*, **2024**, 18(20), 12970–12980.
 - 122 Liu, S. Y.; Wu, Y. Z.; Jiang, L.; Xie, W. R.; Davis, B.; Wang, M. X.; Zhang, L.; Liu, Y. H.; Xing, S. C.; Dickey, M. D.; Bai, W. B. Highly stretchable, tissue-like Ag nanowire-enhanced ionogel nanocomposites as an ionogel-based wearable sensor for body motion monitoring. *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **2024**, 16(35), 46538–46547.
 - 123 Wang, Y. Q.; Liu, Z. Q.; Liu, Y. T.; Su, W. W.; Wang, L.; Huang, X. W.; Gao, J. F. Anti-fatigue ionogels for high-performance strain sensing. *Chem. Eng. J.*, **2025**, 522, 167313.
 - 124 Tong, Z. H.; Liu, S.; Tang, H. Y.; Liu, J. N.; Bi, W. J.; Liu, Y.; Zeng, S. Q.; Xia, Q. Q.; Zhao, D. W.; Yu, H. P. Super-robust cellulose rayon filaments engineered via molecular orientation-cross-linking assembly. *Nano Lett.*, **2025**, 25(39), 14489–14496.
 - 125 Zhang, Z. T.; Sang, M.; Li, Z. M.; Pan, Y. C.; Wu, J. P.; Duan, S. L.; Gong, X. L. *In-situ* localised alignment assisted salting-out enhanced ionogels with high strength, toughness and impact resistance. *Nat. Commun.*, **2025**, 16, 7683.
 - 126 Xing, D. D.; Li, W. Z.; Yu, H.; Wang, Z. H.; Li, L. G.; Cui, Y. H.; Zheng, J. M.; Zhou, Y. J.; Yan, F. Ionic liquid-inspired highly aligned fibrous ionogel for boosted thermoelectric harvesting. *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **2025**, 17(18), 27049–27060.
 - 127 Ren, Y. Y.; Liu, Z. Y.; Jin, G. Q.; Yang, M. K.; Shao, Y. Z.; Li, W. Z.; Wu, Y. Q.; Liu, L. L.; Yan, F. Electric-field-induced gradient ionogels for highly sensitive, broad-range-response, and freeze/heat-resistant ionic fingers. *Adv. Mater.*, **2021**, 33(12), 2008486.
 - 128 Zhou, S.; Li, T. T.; Li, J.; Xu, M. D.; Xu, R. Y.; Yan, S. Z.; Quan, Y.; Ma, T. J.; Jiang, X. S. Ionogel surface patterns fabricated by photodimerization-induced self-organized spatial reconstruction. *J. Mater. Chem. C*, **2025**, 13(24), 12127–12135.
 - 129 Xu, M.; Shen, X. C.; Li, S. J.; Zhu, H. N.; Cheng, Y.; Lv, H. Y.; Wang, Z. E.; Lou, C. G.; Song, H. Z. Skin-inspired gradient ionogels induced by electric field for ultrasensitive and ultrafast-responsive multifunctional ionotronics. *J. Mater. Chem. A*, **2024**, 12(2), 1036–1046.
 - 130 Li, X. C.; Sun, F. An ultrastretchable gradient ionogel induced by a self-floating strategy for strain sensing. *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **2023**, 15(31), 37717–37727.
 - 131 Hao, S.; Chen, Z. Y.; Li, H. Z.; Yuan, J.; Chen, X. H.; Sidorenko, A.; Huang, J.; Gu, Y. L. Skin-inspired, highly sensitive, broad-range-response and ultra-strong gradient ionogels prepared by electron beam irradiation. *Small*, **2024**, 20(21), 2309931.
 - 132 Zhang, T. K.; Li, Y.; Dunn, C. B.; Qian, J.; Wei, Z.; Tao, S. J.; Xie, H. J.; Zhang, C.; Qiang, Z.; Ren, J. Ultrabroad pressure sensing and highly sensitive gradient ionogel-based fluorescent flexible wearable bracelet. *ACS Sens.*,

- 2025**, 10(10), 7412–7426.
- 133 Li, S. M.; Hong, H.; Li, D. D.; Yang, X. R.; Wang, S. X.; Zhang, D. C.; Xiong, Q.; Huang, Z. D.; Zhi, C. Y. Designing zwitterionic bottlebrush polymers to enable long-cycling quasi-solid-state lithium metal batteries. *Angew. Chem. Int. Ed.*, **2025**, 64(5), e202409500.
- 134 Lin, Z. Q.; Hong, J. L.; Huang, C. Z.; Zhang, X. Y.; Shen, S. T.; Du, Z. H.; Zhou, P. P.; Miao, Y. B.; Lin, Z. H.; Lyu, X. L.; Zou, Z. G. A strong, tough, and high-efficiency hydrogel thermocell for thermal energy harvesting. *Nano Energy*, **2025**, 138, 110878.
- 135 Cui, X. C.; Xu, Z. W.; Xi, C. P.; Zhang, H. Q.; Xiao, Y. B.; Li, L.; Xu, G.; Lyu, X. L.; Lin, Q. L.; Yu, Y.; Yang, C. K. Constructing localized-anion gel-electrolyte with poly(ethyl acrylate/acrylic acid lithium) for flame-retardant lithium metal batteries. *J. Solid State Electrochem.*, **2024**, 28(1), 273–281.
- 136 Wang, Y.; Wei, Z. X.; Ji, T. T.; Bai, R. B.; Zhu, H. L. Highly ionic conductive, stretchable, and tough ionogel for flexible solid-state supercapacitor. *Small*, **2024**, 20(20), 2307019.
- 137 Wang, Y. F.; Liu, Y.; Plamthottam, R.; Tebyetekerwa, M.; Xu, J. S.; Zhu, J. X.; Zhang, C.; Liu, T. X. Highly stretchable and reconfigurable ionogels with unprecedented thermoplasticity and ultrafast self-healability enabled by gradient-responsive networks. *Macromolecules*, **2021**, 54(8), 3832–3844.
- 138 Zhuo, S. Y.; Song, C.; Rong, Q. F.; Zhao, T. Y.; Liu, M. J. Shape and stiffness memory ionogels with programmable pressure-resistance response. *Nat. Commun.*, **2022**, 13(1), 1743.
- 139 Zhang, M. W.; Zhao, L. Y.; Tian, F.; Zhao, X. J.; Zhang, Y.; Yang, X.; Huang, W.; Yu, R. Bionic artificial skin based on self-healable ionogel composites with tailored mechanics and robust interfaces. *Adv. Mater.*, **2024**, 36(35), 2405776.
- 140 Li, L. L.; Wang, X. W.; Gao, S. N.; Zheng, S. J.; Zou, X. Y.; Xiong, J. F.; Li, W. Z.; Yan, F. High-toughness and high-strength solvent-free linear poly(ionic liquid) elastomers. *Adv. Mater.*, **2024**, 36(7), 2308547.
- 141 Li, S. J.; Cheng, Y.; Zhu, H. N.; Xu, M.; Lv, H. Y.; Wang, Z. E.; Liu, G. M.; Song, H. Z. Strain-induced phase separation and mechanomodulation of ionic conduction in anisotropic nanocomposite ionogels. *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **2024**, 16(10), 13103–13113.
- 142 Lyu, X. L.; Zhang, H. Q.; Shen, S. T.; Gong, Y.; Zhou, P. P.; Zou, Z. G. Multi-modal sensing ionogels with tunable mechanical properties and environmental stability for aquatic and atmospheric environments. *Adv. Mater.*, **2024**, 36(45), 2410572.
- 143 Cao, L. Q.; Sun, T. T.; Zhao, H. R.; Shang, M. H.; Wang, L. J.; Jiang, W. An actuatable ionogel thermoelectric fiber with aligned mesogens-induced thermopower for four-dimensional dynamically adaptive heat harvesting. *Nat. Commun.*, **2025**, 16, 5445.
- 144 Wu, Y. Z.; Xing, S. C.; Yang, D. Y.; Liu, Y. H.; Ding, C.; Li, Z. F.; Jiao, Q. Z.; Zhang, A. R.; Guo, Z. H.; Liu, S. Y.; Luo, W.; Yuan, G. K.; Wang, M. X.; Wang, Y.; Dickey, M. D.; Bai, W. B. Soft giant magnetoimpedance electronics enable contact-free human-machine interactions. *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, **2026**, 123(4), e2526097123.
- 145 Shen, Z. Q.; Zhu, X. Y.; Majidi, C.; Gu, G. Y. Cutaneous ionogel mechanoreceptors for soft machines, physiological sensing, and amputee prostheses. *Adv. Mater.*, **2021**, 33(38), 2102069.
- 146 Lyu, X. L.; Yu, K.; Zhang, H. Q.; Zhou, P. P.; Shen, Z. H.; Zou, Z. G. Tough fiber-reinforced composite ionogels with crack resistance surpassing metals. *Nat. Commun.*, **2025**, 16, 4005.
- 147 Sun, L.; Feng, W. W.; Liu, Y. C.; Chen, L. L.; Chen, T.; Jin, Z. K.; Wang, C. Elastic and ultra stable ionic conductors for long-life-time soft robots working at extreme environments. *Nat. Commun.*, **2025**, 16, 6004.
- 148 Kang, J. H.; Su, X. Z.; Zhou, P. P.; Yu, K.; Du, Z. H.; Shi, D.; Yu, Y.; Lyu, X. L.; Zou, Z. G. Supramolecular interlocking produces mechanically anisotropic, robust, and tough biomimetic ionogels. *Adv. Mater.*, **2026**, 38(12), e11903.