

离子凝胶胶黏剂研究进展

刘小娴 陈雨 刘青青 盛国栋 柳竹青

Advances in ionic gel adhesive research

LIU Xiaoxian, CHEN Yu, LIU Qingqing, SHENG Guodong, LIU Zhuqing

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.13801/j.cnki.fhclxb.20250210.002>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

纤维素离子凝胶的制备及性能

Preparation and properties of cellulose ionic gel

复合材料学报. 2021, 38(12): 4247–4254 <https://doi.org/10.13801/j.cnki.fhclxb.20210303.002>

基于离子选择性迁移策略的动力/储能电池隔膜的研究进展

Research progress of power/energy storage battery separator based on selective ion migration strategy

复合材料学报. 2021, 38(7): 2025–2037 <https://doi.org/10.13801/j.cnki.fhclxb.20210114.002>

离子液体/金属-有机骨架复合材料制备方法、理论计算及应用研究进展

Research progress on synthesis, theoretical calculation and application of ionic liquid/Metal-organic framework composites

复合材料学报. 2021, 38(2): 298–314 <https://doi.org/10.13801/j.cnki.fhclxb.20200825.003>

两种沥青胶浆的疲劳及自愈合性能试验

Experimental study on fatigue and self-healing performance of two kinds of asphalt mortar

复合材料学报. 2018, 35(3): 699–705 <https://doi.org/10.13801/j.cnki.fhclxb.20170601.009>

多价金属离子增强琼脂-聚丙烯酸复合双网络水凝胶及其自修复性能

Self-healing properties of various multivalent cations reinforced Agar-Polyacrylic acid composite double network hydrogels

复合材料学报. 2017, 34(7): 1416–1422 <https://doi.org/10.13801/j.cnki.fhclxb.20160926.005>

胶层网格尺寸与性能参数相关性的反演研究

Inversion study on the correlation between the mesh size and the adhesive properties

复合材料学报. 2021, 38(11): 3950–3961 <https://doi.org/10.13801/j.cnki.fhclxb.20210129.005>



扫码关注微信公众号，获得更多资讯信息

离子凝胶胶黏剂研究进展



分享本文

刘小娴^{1,2}, 陈雨^{1,2}, 刘青青³, 盛国栋⁴, 柳竹青^{*1,2}

(1. 齐鲁工业大学(山东省科学院) 前沿交叉学科研究院, 济南 250353; 2. 齐鲁工业大学(山东省科学院) 生物基与绿色造纸国家重点实验室, 济南 250353; 3. 山东晶创新材料科技有限公司, 德州 253077; 4. 天津中绿电投资股份有限公司生态与安质部, 北京 100020)

摘要: 随着对环保和绿色化学的日益重视, 传统胶黏剂正逐步被市场淘汰, 离子凝胶胶黏剂作为一种新型的黏合材料, 成为研究者关注的焦点。本文综述了离子凝胶胶黏剂的制备方法, 主要根据聚合物和离子液体形成离子凝胶的方式进行了分类, 包括直接混合法、溶剂交换法、原位聚合法 3 种方法; 进一步总结了离子凝胶胶黏剂的黏附性, 在不同基材的最高胶合强度可达 7.2 MPa、离子导电性、力学性能(拉伸强度可达 14.3 MPa, 断裂伸长率可到 5 000%)、生物相容性、自愈合性(室温下 10 min 快速愈合)和透明性等性能特点; 并重点介绍了基于自愈合、生物相容性、自黏附、温敏、导电等多功能胶黏剂的结构设计及其在固态电解质、柔性电子、生物医学、智能穿戴设备和光学器件等应用领域中发挥的作用。为离子凝胶胶黏剂更多元化性能的开发和应用提供借鉴。

关键词: 离子凝胶; 胶黏剂; 离子液体; 生物相容性; 自愈合性; 自黏附性; 温敏性; 导电性

中图分类号: TP212; TB332 **文献标志码:** A **文章编号:** 1000-3851(2025)10-5516-17

Advances in ionic gel adhesive research

LIU Xiaoxian^{1,2}, CHEN Yu^{1,2}, LIU Qingqing³, SHENG Guodong⁴, LIU Zhuqing^{*1,2}

(1. Advanced Research Institute for Multidisciplinary Science, Qilu University of Technology (Shandong Academy of Sciences), Jinan 250353, China; 2. State Key Laboratory of Biobased Material and Green Papermaking, Qilu University of Technology (Shandong Academy of Sciences), Jinan 250353, China; 3. Shandong Innovative Material Technology Co., Ltd., Dezhou 253077, China; 4. Ministry of Ecology and Safety Quality, China Green Electricity Investment of Tianjin Co., Ltd., Beijing 100020, China)

Abstract: With the increasing emphasis on environmental protection and green chemistry, traditional adhesives are gradually being phased out of the market. Ionic gel adhesives, as a new type of bonding material, have become the focus of researchers' attention. This article reviews the preparation methods of ionic gel adhesives, categorizing them mainly based on the ways in which polymers and ionic liquids form ionic gels, including direct mixing, solvent exchange, and in-situ polymerization. Furthermore, the article summarizes the adhesive properties of ionic gel adhesives, noting that the maximum bonding strength can reach 7.2 MPa on different substrates, along with their ionic conductivity, mechanical properties (with tensile strength up to 14.3 MPa and elongation at break reaching 5 000%), biocompatibility, self-healing ability (rapid healing within 10 min at room temperature), and transparency. Additionally, it highlights the structural design of multifunctional adhesives based on self-healing, biocompatibility, self-adhesion, temperature sensitivity, and conductivity, as well as their roles in applications such as solid-state electrolytes, flexible electronics, biomedicine, smart wearable devices, and optical devices. This provides a

收稿日期: 2024-10-29; 修回日期: 2025-01-06; 录用日期: 2025-01-07; 网络首发时间: 2025-02-13 14:07:21

网络首发地址: <https://doi.org/10.13801/j.cnki.fhclxb.20250210.002>

基金项目: 山东省自然科学基金项目(ZR2024MB050); 国家自然科学基金(2001140); 齐鲁工业大学人才科研项目(2023RCKY173)
Natural Science Foundation of Shandong Province of China (ZR2024MB050); National Natural Science Foundation of China (2001140); Talent Research Project of Qilu University of Technology (2023RCKY173)

通信作者: 柳竹青, 博士, 副教授, 硕士生导师, 研究方向为生物基功能材料 E-mail: liuzhuqing@qlu.edu.cn

引用格式: 刘小娴, 陈雨, 刘青青, 等. 离子凝胶胶黏剂研究进展 [J]. 复合材料学报, 2025, 42(10): 5516-5532.

LIU Xiaoxian, CHEN Yu, LIU Qingqing, et al. Advances in ionic gel adhesive research[J]. Acta Materiae Compositae Sinica, 2025, 42(10): 5516-5532(in Chinese).

reference for the development and application of more diversified properties of ionic gel adhesives.

Keywords: ionic gel; adhesive; ionic liquid; biocompatibility; self-healing ability; self adhesiveness; temperature sensitivity; conductivity

胶黏剂在工业、医疗和日常生活中扮演着重要角色。然而，传统溶剂型胶黏剂，如基于挥发性有机化合物 (VOCs) 的胶黏剂，尽管在多个领域有广泛应用，但因环境污染 (如释放苯、甲醛)、黏附强度不足^[1]或基材选择性等问题^[2]而受到限制。传统溶剂型胶黏剂内部缺乏有效的能量耗散机制，导致强度较低、变形能力差，对裂纹的扩展较为敏感。离子凝胶胶黏剂作为一种先进的材料，是由离子液体和带电共聚物复合而成的，能够在不依赖于特定基材的情况下提供优异的黏合性能^[3]。同时离子凝胶胶黏剂结合了聚合物与离子液体两者的性能特点，具有离子导电性、生物相容性、自愈合能力和透明性等优点，使其在胶黏剂、固态电解质、离子皮肤、柔性器件以及其他功能材料等领域具有广泛的应用前景^[4]。

尽管离子凝胶胶黏剂领域已经取得了显著的进展，但仍存在一些挑战，例如其内部结构与相互作用的复杂性、力学性能与导电性之间的平衡

问题^[3]。未来的研究需要进一步探索离子液体的构效关系，设计合成更高性能的离子凝胶，以适应更广泛的应用需求^[4]。本文将从离子胶黏剂的制备方法、性质特点和应用领域及存在的问题等几个方面介绍其研究进展，为离子胶黏剂的开发与应用提供一定的指导。

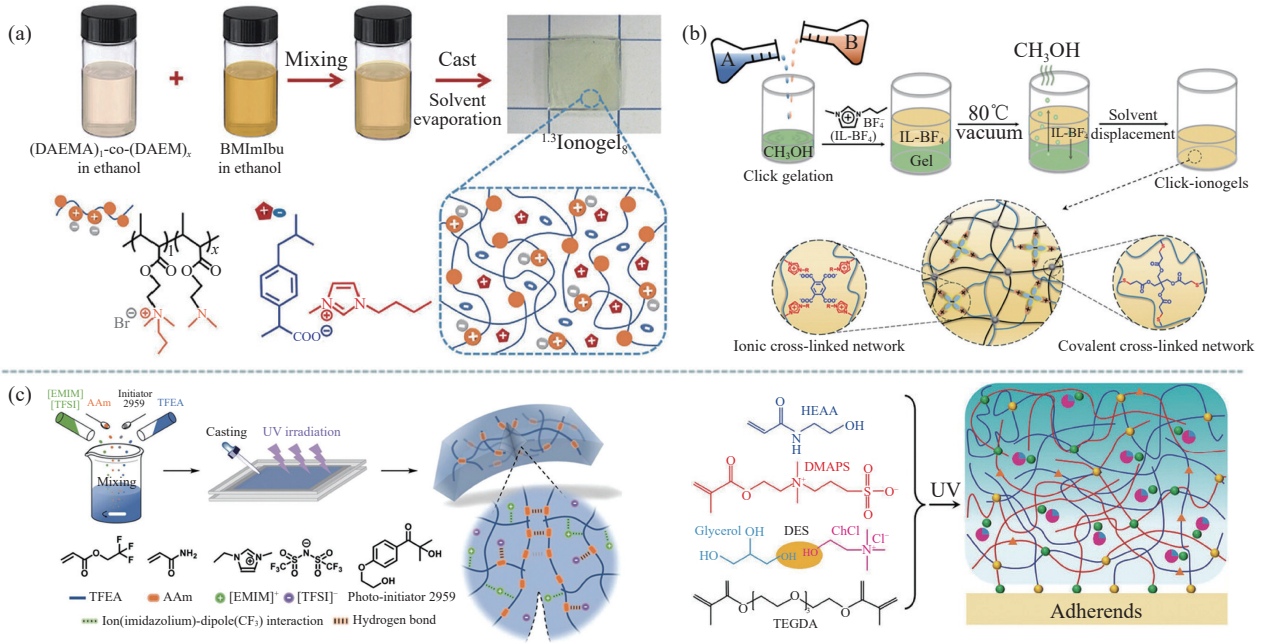
1 离子凝胶胶黏剂的制备方法

1.1 直接混合法

离子液体与聚合物通过物理混合，利用离子液体与聚合物的分子间相互作用力，如氢键、范德华力等形成稳定的离子凝胶复合物，如图 1(a) 所示。这种方法适用于离子液体与聚合物之间有良好的相容性的情况^[3]。

1.2 溶剂交换法

当离子液体与聚合物之相容性差时，可以通过溶剂交换的方法来制备离子凝胶胶黏剂。如图 1(b) 所示，聚合物在适当的有机溶剂中形成或溶解，然后将有机溶剂替换为离子液体，通过溶剂交换的方法使得聚合物在离子液体中沉淀形成



DAEMA—2-(dimethylamino)ethyl methacrylate; DAEM—Di(acryloyloxyethyl) methacrylate; BMImIbu—1-methyl-3-butylimidazolium ibuprofenate; IL—Ionic liquids; [EMIM][TFSI]—1-ethyl-3-methylimidazolium bis(trifluoromethanesulfonyl)imide; AAm—Acrylamide; TFEA—2,2,2-trifluoroethyl acrylate; HEAA—N-hydroxyethyl acrylamide; DES—Deep eutectic solvent; DMAPS—N-(3-sulfopropyl)-N-(methacryloxyethyl)-N,N-dimethylammonium betaine; TEGDA—Tetraethylene glycol diacrylate

图 1 (a) 直接混合法^[3]; (b) 溶剂交换法^[3]; (c) 原位聚合法^[3]

Fig. 1 (a) Direct mixing method^[3]; (b) Solvent exchange method^[3]; (c) In-situ polymerization method^[3]

离子凝胶胶黏剂^[3]。

1.3 原位聚合

在离子液体中引入不同单体引发聚合反应，能够快速高效地实现复合材料三维网络结构的构建。添加不同聚合单体和交联剂，通过原位聚合与交联，可以实现对复合材料的功能调控，制备出具有优异力学性能和黏附特性的离子凝胶胶黏剂。在聚合过程中，通过加入聚合单体与交联剂，形成化学交联网络，这种网络结构提高了离子凝胶的机械强度和稳定性^[5]。使用原位聚合可以在离子凝胶中引入多种官能团，实现离子凝胶的多功能性，如透明性、高导电性、可拉伸性以及强黏附性。此外，为实现高强离子凝胶胶黏剂的制备，在聚合过程中可以利用单体在离子液体中的溶解度的差异，不同单体通过无规共聚，使其在聚合过程中自发形成相分离结构，通过调整比例来实现制备不同强度和性能的离子凝胶^[6]，如图 1(c) 所示。这种方法制备的离子凝胶具有高强、良好的韧性和黏附能力，并且可以通过溶剂回收，

实现可持续性^[3]。

2 离子凝胶胶黏剂的性能特点

2.1 黏附性能

离子凝胶的黏附机制涉及到多种超分子相互作用，如氢键和静电相互作用，这些超分子间形成的强相互作用增强了离子凝胶的黏附性能^[3]。离子凝胶的可逆黏附性能在实际应用中极为有用^[4]，特别是在手术中，它能够根据需要进行黏附和分离。如图 2(a) 所示，这种性能的优势在于，离子凝胶与基材之间的黏附主要是通过物理作用而非不可逆的化学键合来实现的^[6]。

2.2 离子导电性

通过使用离子液体作为分散相，提供丰富的离子传输通道^[3]；离子液体与聚合物网络之间的相互作用如氢键作用，有助于形成稳定的网络结构，进一步提高了离子凝胶的导电性能^[7]。如图 2(b) 所示，这种高导电性使得离子凝胶胶黏剂非常适合用于固态电解质、热电材料、智能传感等领域，如钙钛矿太阳能电池和可穿戴电子设备，它们可

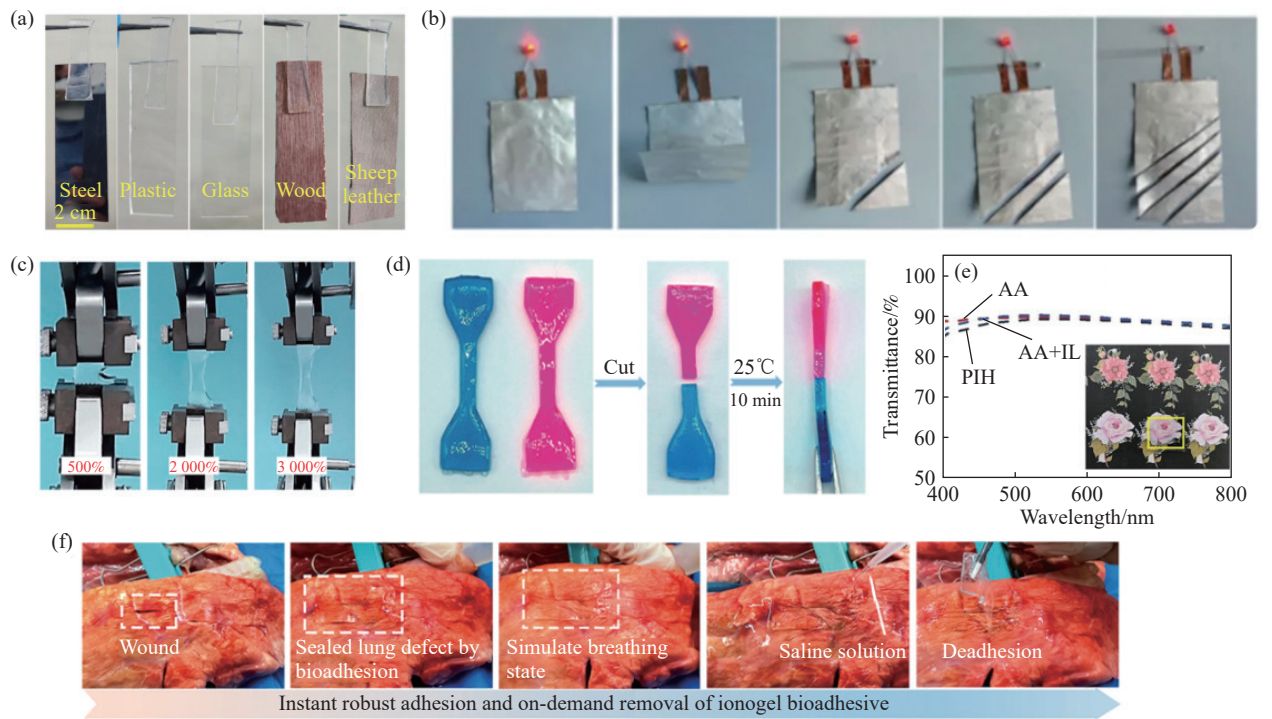


图 2 (a) 离子凝胶黏附在不同的基材上^[6]；(b) 柔性电池在弯曲和切割条件下点亮 LED 灯的照片^[3]；(c) 应变为 500%、2 000% 和 3 000% 的缺口离子凝胶的照片表明裂纹扩展不敏感（高韧性材料可以减缓或阻止裂纹的扩展）^[2]；(d) 离子凝胶自愈合过程^[2]；(e) 聚丙烯酸/离子液体/羟丙基纤维素（PIH）离子凝胶在 350~800 nm 处的透射光谱^[11]；(f) 离子凝胶瞬间密封体外猪肺裂口的照片^[2]

Fig. 2 (a) Ionic gel adhesion to different substrates^[6]; (b) Photographs of a flexible battery illuminating an LED light under bending and cutting conditions^[3]; (c) Photographs of notched ionomer gels at strains of 500%, 2 000%, and 3 000% show insensitivity to crack propagation (High toughness materials can slow or stop crack propagation)^[2]; (d) Ionogel self-healing process^[2]; (e) Transmission spectra of polyacrylic acid/ionic liquid/hydroxypropyl (PIH) ionogels at 350-800 nm^[11]; (f) Photographs of ionogels instantaneously sealing a porcine lung fissure in vitro^[2]

以在这些领域中作为关键材料,提升设备的性能和可靠性^[3]。

2.3 力学性能

通过构建双网络结构、调整离子液体的化学结构、加入纳米二氧化硅等纳米材料^[8]可以增强离子凝胶的机械强度和韧性,如图 2(c) 所示。使用配位超分子溶剂、原位相分离或超分子溶剂与应力诱导结晶的协同作用等策略,可以制备出高强度的离子凝胶^[2]。高机械强度和高韧性的离子凝胶胶黏剂,在传感器、柔性电子、可穿戴设备、能源存储设备和生物医学工程等领域具有广泛的应用潜力^[9]。

2.4 生物相容性

离子凝胶胶黏剂使用特定的离子液体作为溶剂,这些离子液体具有生物相容性,例如柠檬酸/L-(-)-肉碱(CAC)基离子液体,它们可以与生物组织表面形成物理交联,从而在湿润的生物组织界面上实现强黏附^[2],如图 2(f) 所示。同时,离子凝胶中的超分子溶剂通过氢键和静电相互作用与聚合物链形成强相互作用,这些非共价相互作用有助于提高离子凝胶在生物组织中的黏附性,同时保持生物相容性^[4]。

2.5 自愈合能力

离子凝胶胶黏剂中含有大量的动态可逆键,如氢键、金属配体配位键等,这些键在受到外力作用时可以断裂,并在撤去外力后重新形成,从而实现材料的自愈合,如图 2(d) 所示。离子液体的结构和性质可以精确调控,通过分子设计赋予离子凝胶胶黏剂自愈合能力,如引入具有自愈合功能的离子液体,如 CAC 基离子液体、1-乙基-3-甲基咪唑鎓双(三氟甲基磺酰基)酰亚胺([C2mim][NTf2])离子液体、2,2,2-三氟乙基丙烯酸酯和丙烯酰胺在疏水离子液体中的聚合产物等^[10],这些离子液体能够在材料受损后自发地修复其结构和功能。

2.6 透明性

离子凝胶的制备中通过直接混合、原位聚合/交联以及溶剂交换法,能够高效地构建均匀的网络结构,这种均匀结构的生成有助于避免大颗粒和非均质结构的形成,保证了凝胶的高透明度。此外,通过选择合适的离子液体如 [C2mim][NTf2]、含氟聚离子液体、小分子离子液体等,可以进一步优化离子凝胶的透明性。混合聚合物基质和离

子液体可制备出均匀的混合体系,该体系能显著降低可见光的散射,保持材料的透明度^[11],如图 2(e) 所示。在实际应用中离子凝胶的透明性对于某些特定的应用场景非常重要,如光学器件、柔性显示器和可穿戴设备等^[12]。

3 离子凝胶胶黏剂的应用领域

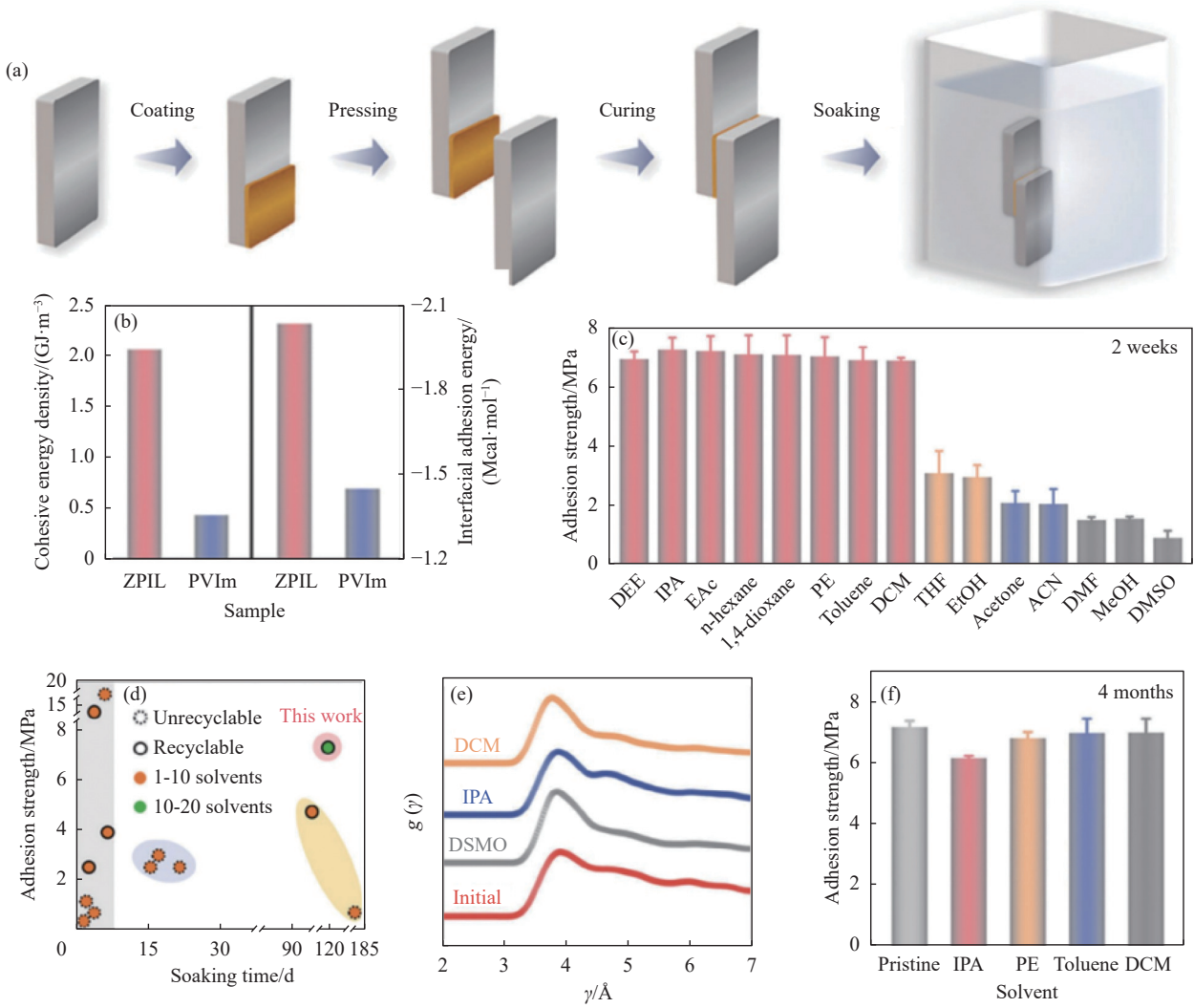
3.1 自愈合离子凝胶胶黏剂

传统胶黏剂多由非离子性聚合物构成,这些聚合物的分子链之间相互作用力相对较弱。由于其偶极矩与有机溶剂相近,溶剂分子易于渗透进聚合物基体,从而降低其内聚力和界面黏附力。因此,在有机溶剂的作用下,这些胶黏剂往往容易发生应力裂纹,甚至出现黏合失效的问题,这种局限性限制了它们在某些特定环境下的应用潜力。而离子凝胶胶黏剂通过引入牺牲键(例如非共价相互作用)来耗散能量,这些键在受到应力时可以断裂并在适当条件下重新形成,从而消除疲劳损伤和裂纹扩展^[13]。同时离子凝胶胶黏剂的可逆键相互作用允许聚合物链段在破坏后重新组合,这不仅有助于恢复材料的完整性和性能,还使得材料在使用寿命结束后可以更容易地回收和再利用^[13]。相比之下,传统胶黏剂的不可逆共价交联网络难以分解和回收。

Zhang 等^[14]利用静电作用将磺酸阴离子和咪唑阳离子连接到两性离子聚离子液体(ZPIL)上,制备了具有高黏附强度、耐有机溶剂性和自愈合的胶黏剂 ZPIL-R4(0.1 g ZPIL/0.04 mL H₂O),如图 3(a) 所示。如图 3(b) 所示,ZPIL 在多种基材上表现出了强大的黏附性,最大黏附强度达到 7.2 MPa,经过多次黏合测试后仍能保持其黏合性能;与其他胶黏剂相比,ZPIL 表现出前所未有的耐溶剂性。如图 3(c) 所示,即使在乙醚(DEE)、异丙醇(IPA)、乙酸乙酯(EAc)、正己烷(n-hexane)、1,4-二氧六环(Dioxane)、石油醚(PE)、甲苯(Toluene)和二氯甲烷(DCM)等有机溶剂中浸泡两周,对黏附性能的影响很小。ZPIL 在 DCM 中浸泡两周,黏合强度仍可以保持在 6.9 MPa,保持了原始黏合强度的 95.8%。对于四氢呋喃(THF)和乙醇(EtOH)等极性溶剂,黏合强度也保持在≈3.0 MPa。值得注意的是,即使在具有高溶解能力的特定有机溶剂中,如 N,N-二甲基甲酰胺(DMF)、甲醇(MeOH)和二甲基亚砷(DMSO),黏附强度也稳定在 1.0 至 1.5 MPa 之间。如图 3(f) 所示,在 IPA、PE、甲苯

和 DCM 等有机溶剂中浸泡 4 个月后，ZPIL 的黏合强度几乎不受影响，分别表现出 6.2、6.8、7.0 和 7.0 MPa 的高黏合强度。在 ZPIL 材料中，阳离子和阴离子之间的非定向静电相互作用及配位不饱和性，使得材料在损伤后能够可逆地重建静电络合，赋予其自修复特性。同时，材料分子链上的高永久偶极矩增强了内部的偶极-偶极相互作用，有利于促进损伤后链段间的再连接。如图 3(d) 所示，胶黏剂材料同时实现高黏合强度和对有机溶

剂的非凡抵抗力，这是一项前所未有的成就。相比之下，大多数商业胶黏剂，如氰基丙烯酸酯胶黏剂 (3M PR100) 和两组分丙烯酸酯胶黏剂 (3M DP8005)，在浸入 DCM 溶剂中时往往会明显膨胀并在 24 h 内失效。如图 3(e) 所示，ZPIL 的径向分布函数的轮廓保持不变，表明 ZPIL 之间的偶极-偶极相互作用不会因有机溶剂分子的存在而中断。这种独特的分子结构设计，为材料的自我修复提供了强有力的分子基础，同时 ZPIL 的独特耐有机



ZPIL—Zwitterionic poly(ionic liquid); PVIm—Polyvinylimidazole; DEE—Diethyl ether; IPA—Isopropanol; EAc—Ethyl acetate; PE—Petroleum ether; DCM—Dichloromethane; THF—Tetrahydrofuran; EtOH—Ethanol; ACN—Acetonitrile; DMF—N,N-dimethylformamide; MeOH—Methanol; DMSO—Dimethyl sulfoxide; $g(\gamma)$ —Radial γ distribution function

图 3 (a) 使用两性离子聚离子液体 (ZPIL)-R4 (0.1 g ZPIL/0.04 mL H₂O) 的黏附过程示意图; (b) ZPIL 和聚乙烯咪唑 (PVIm) 的内聚能密度和界面黏附强度; ((c), (f)) ZPIL 在有机溶剂中浸泡 2 周和 4 个月后的黏附强度; (d) 从 4 个方面比较黏合剂的耐有机溶剂性; (e) 平衡状态下最稳定的 ZPIL-二氯甲烷 (DCM)、ZPIL-异丙醇 (IPA) 和 ZPIL-二甲基亚砷 (DMSO) 构象的径向分布函数^[14]

Fig. 3 (a) Schematic of the adhesion procedure using ZPIL-R4 (0.1 g ZPIL/0.04 mL H₂O); (b) Cohesive energy density and interfacial adhesion strength of ZPIL and PVIm; ((c), (f)) Adhesion strength of ZPIL after 2 weeks and 4 months immersion in organic solvent; (d) Comparison of adhesives in terms of their resistance to organic solvents from 4 aspects; (e) Equilibrium state of the most stable ZPIL-DCM, ZPIL-IPA and ZPIL-DMSO conformations at equilibrium as a function of radial distribution^[14]

溶剂性,使其具有大量的潜在应用,如生物医学胶黏剂或工业涂料。

Ou 等^[1]将 CO₂ 作为碳基源,通过后电离和阴离子交换的方法合成离子聚脲胶黏剂 1-丙基-3-甲基咪唑鎓双三氟甲磺酰亚胺 (PUa-C3-TFSI),胶黏剂释放出的脲基团与离子段的静电相互作用增强了其与基材的界面黏附作用,有效的克服了尿素基团内的双齿氢键(内聚能),增强了尿素基团和基材之间的界面相互作用(黏附能)。在与玻璃的黏合测试中表现出了优异的黏合性能,其黏合强度远高于传统的非离子聚脲胶黏剂,根据原位荧光-搭接剪切试验(图 4(a))可以检测到在特定应力下胶黏剂层中出现裂纹。第一条裂纹出现在 504 s 时,相应的应力值为 238 N。第二次裂纹出现在 548 s 处,应力值为 263 N。这些裂纹表明胶黏剂在越来越大的压力下开始遭受结构损伤的点。有趣的是,前两个出现的裂缝在测试期间的 608 s 显示出自我修复过程的迹象。这表明胶黏剂在某些条件下可以部分修复/恢复其结构完整性,这可能归因于非离子链段内的强氢键尿素基团。如图 4(b)~4(d) 所示,这种自愈合能力可能与非离子段中的强氢键脲基有关。与其他胶黏剂(如离子

液体、聚(离子液体)和聚脲基胶黏剂)相比,PUa-C3-TFSI 表现出优异的黏合性能,如图 4(e) 所示。通过热处理循环,废弃的胶黏剂能够被高效回收,且回收后可以保持与原产品相近的黏接能。

Xiong 等^[2]开发了一种基于柠檬酸(CA)和 L-(-)-肉碱(LC)的离子液体(CAC),用于制备具有高黏附强度的离子凝胶,有效地平衡了分子间的内聚能和离子凝胶与基材之间的界面黏附能,实现了强且可逆的黏附。通过调节 CAC 的含量可以有效地调节离子凝胶的力学性能。如图 5(a)~5(c) 所示,离子凝胶应力/应变是 CAC 含量的函数。当 CAC 含量为 70% 质量分数时,离子凝胶被拉伸至其初始长度的 49 倍,并保持 4.1 MPa 的拉伸强度。随着 CAC 含量的降低,应变能力降低,离子凝胶的强度提高。即使在 14.3 MPa 的高拉伸强度下,也可以被拉伸初始长度的 7 倍。具有不同 CAC 含量的离子凝胶表现出宽范围可调的杨氏模量和韧性。该材料通过超分子氢键网络实现了可逆的物理交联,赋予了其出色的机械强度和韧性,且对铁片和玻璃展示出不同的黏附性能,如图 5(d) 所示。如图 5(e) 所示,离子凝胶断裂后在室温下 10 min 就可以自修复,表现出较强的自修复能力

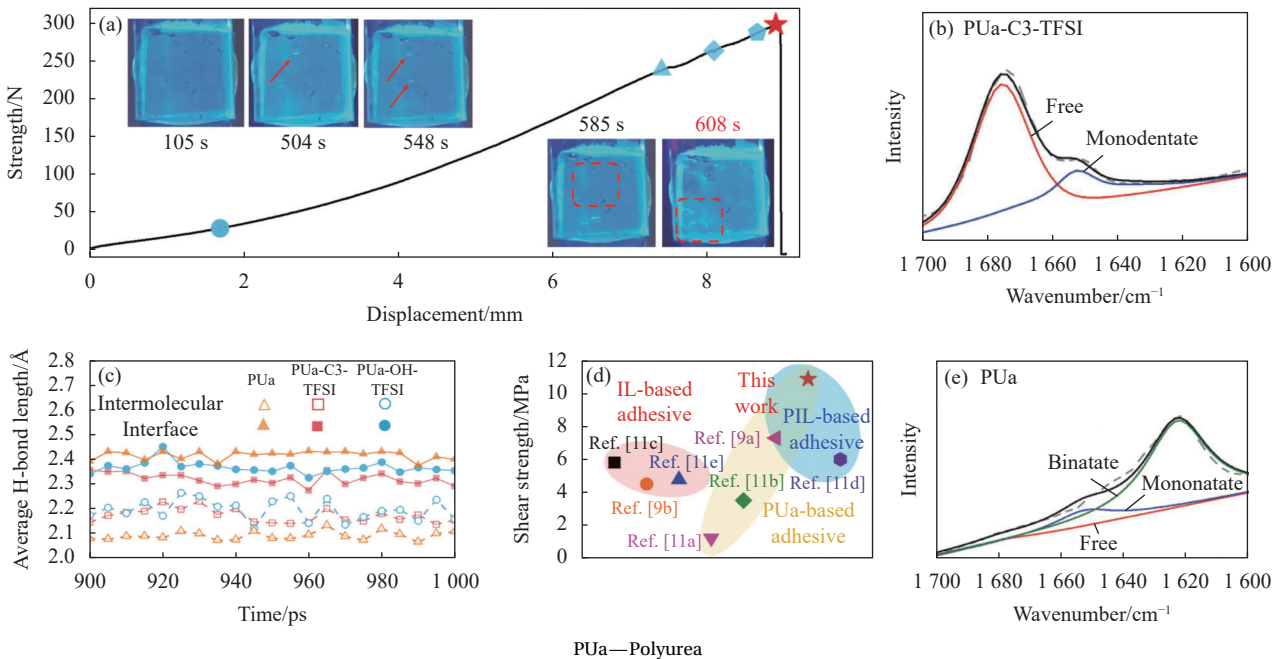


图 4 (a) 胶黏剂黏附区域在紫外线照射下的照片; (b), (e) 不同胶黏剂羰基的傅里叶变换红外光谱图; (c) 胶黏剂与玻璃界面(实心)和分子间(空心)的平均分子间氢键长度; (d) 胶黏剂与离子液体(IL)、聚离子液体(PIL)和聚脲基黏合剂对玻璃的黏合性能比较^[1]

Fig. 4 (a) Snapshots of adhesive adhesion regions under UV irradiation; (b), (e) FTIR spectra of carbonyl groups of different adhesives; (c) Average intermolecular hydrogen bond lengths at the adhesive-glass interface (solid) and between molecules (hollow); (d) Comparison of the adhesion properties of adhesive with ionic liquids (IL), poly ionic liquids (PIL) and polyurea-based adhesives on glass^[1]

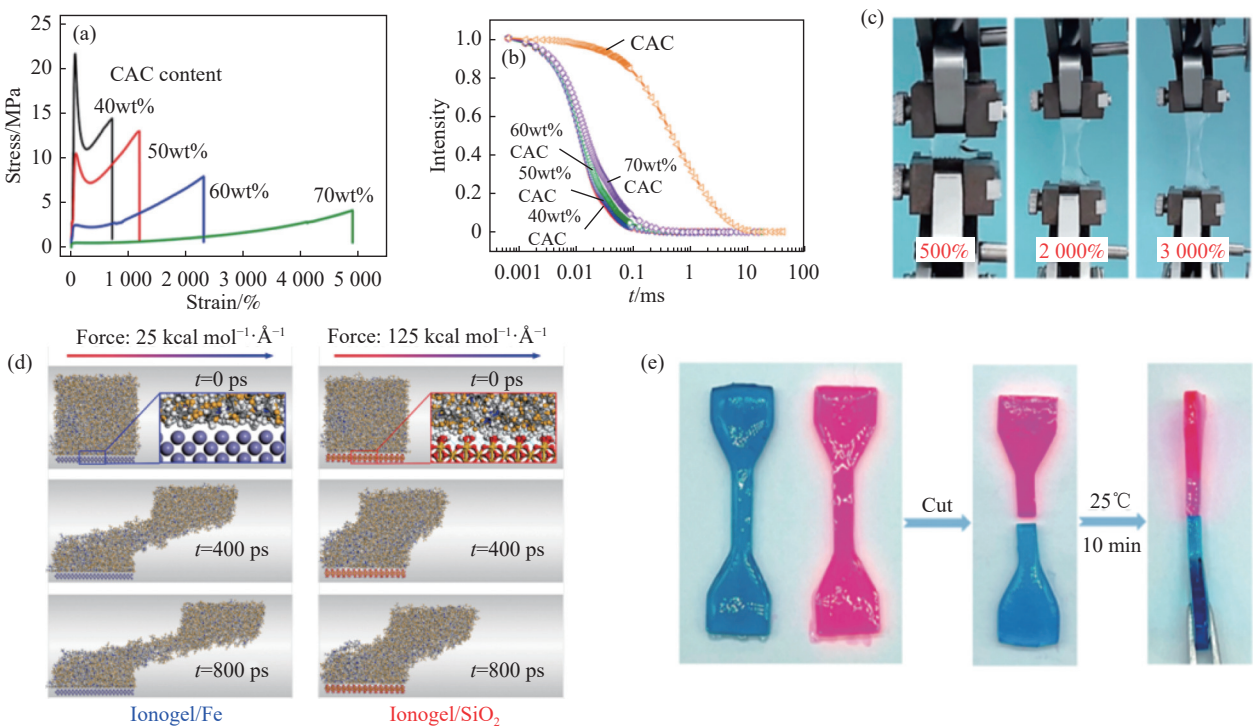


图5 (a) 不同柠檬酸/L(-)-肉碱离子液体 (CAC) 含量的离子凝胶的单调拉伸应力-应变曲线; (b) 不同 CAC 含量的离子凝胶和纯 CAC 的全再聚焦固态¹H NMR 自由感应衰减 (FID); (c) 缺口离子凝胶在应变为 500%、2 000% 和 3 000% 时的照片; (d) 在一定作用力作用下, 基底表面离子凝胶在不同时刻 t 的构象状态; (e) 离子凝胶自愈合过程^[2]

Fig. 5 (a) Monotonic tensile stress-strain curves of ionogels with different citric acid/L(-)-carnitine (CAC) contents; (b) Fully refocused solid-state ¹H NMR free induction decay (FID) of ionogels with different CAC contents and pure CAC; (c) Photographs of barbed ionogels at strains of 500%, 2 000%, and 3 000%; (d) Conformational state of the ionogels on the surface of the substrate at different moments of time t for a given force; (e) Ionogel self-healing process^[2]

和可回收性。通过调节温度和水分, 离子凝胶能够实现可逆黏附, 增强了其在多种应用中的适应性, 这些特性使离子凝胶在多样化环境中具有重要的应用潜力。

开发具有自愈合能力的胶黏剂是一个复杂的过程, 需要精确控制材料的分子结构和动态交联特性, 实现胶黏剂的可逆黏附特性, 即在需要时可以轻易地移除或重复使用, 也需要特殊的设计和合成策略^[15]。部分高性能胶黏剂可能需要非常复杂的制备过程, 这增加了生产成本和大规模应用的难度。

3.2 生物相容性离子凝胶胶黏剂

胶黏剂需要与生物组织接触, 因此必须具有良好的生物相容性, 以避免引起免疫反应或毒性反应^[16]。传统胶黏剂可能含有有害化学物质, 如溶剂、增塑剂和未反应的单体, 这些物质可能会引起炎症反应或毒性效应, 如免疫原性、细胞毒性和长期稳定性问题, 其表面特性可能导致蛋白质吸附不良和细胞黏附不足, 影响其在体内的长

期稳定性和功能性。而离子凝胶胶黏剂可以由生物相容性材料制成, 这意味着它们在与人体组织接触时不会引起不良反应或免疫反应, 同时离子凝胶胶黏剂因其优异的力学性能、高黏附强度、自愈合性, 以及良好的生物相容性, 能够适应不同的生物力学环境, 使其在组织工程、伤口愈合、器官移植等临床医疗场景中具有广泛的应用前景^[17]。

Xiong 等^[2]以柠檬酸作为溶剂, 通过光引发 N,N-二甲基丙烯酰胺 (DMAA) 聚合制备了具有高机械强度和黏附力的离子凝胶, 其展现出优异的拉伸强度 (14.4 MPa)、杨氏模量 (48.1 MPa) 和韧性 (115.2 MJ/m³)。在玻璃基板上展现出高黏附强度 (24.4 MPa), 并且可以通过生理盐水按需脱离, 适合于湿润的生物组织界面。小鼠皮肤上的组织相容性测试结果表明, 离子凝胶表现出卓越的生物相容性, 并未引起明显的炎症, 如图 6(a) 所示。在模拟的临床治疗环境中, 该凝胶展示了其在组织修复和器官移植中的潜在应用, 如图 6(c)、图 6(d) 所示。具体而言, 它在心脏移植手术中能

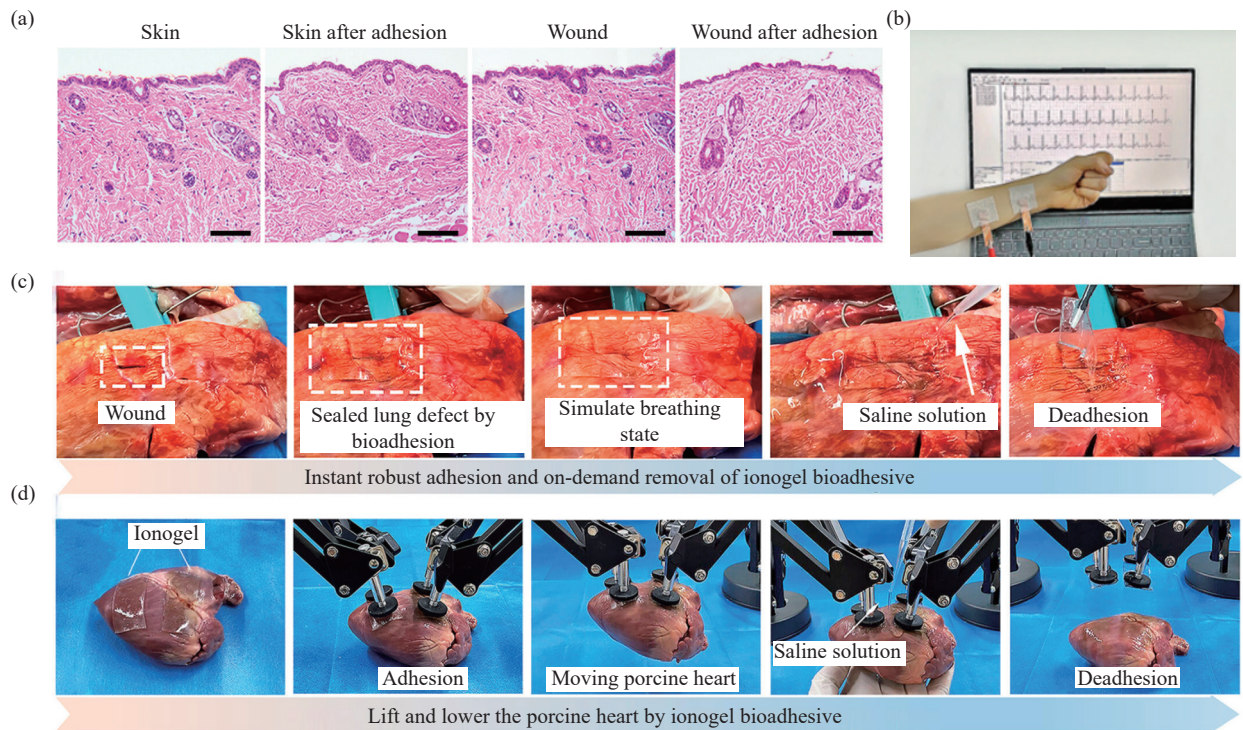


图6 (a) 染色的代表性组织学图；(b) 离子凝胶用作心电图皮肤电极的照片；(c) 离子凝胶瞬间密封体外猪肺裂口的照片；(d) 模拟心脏移植过程中，两个离子凝胶黏合剂良性地抬起和放下活体猪心脏的照片^[2]

Fig. 6 (a) Representative histology of stained; (b) Photographs of ionogels used as skin electrodes for electrocardiograms; (c) Photographs of ionogels momentarily sealing a porcine lung fissure in vitro; (d) Photographs of two ionogel adhesives benignly raising and lowering a living porcine heart during a simulated cardiac transplant^[2]

够有效固定组织，并在移植完成后轻松移除，显示出其在医疗领域的实用价值，如图6(b)所示。

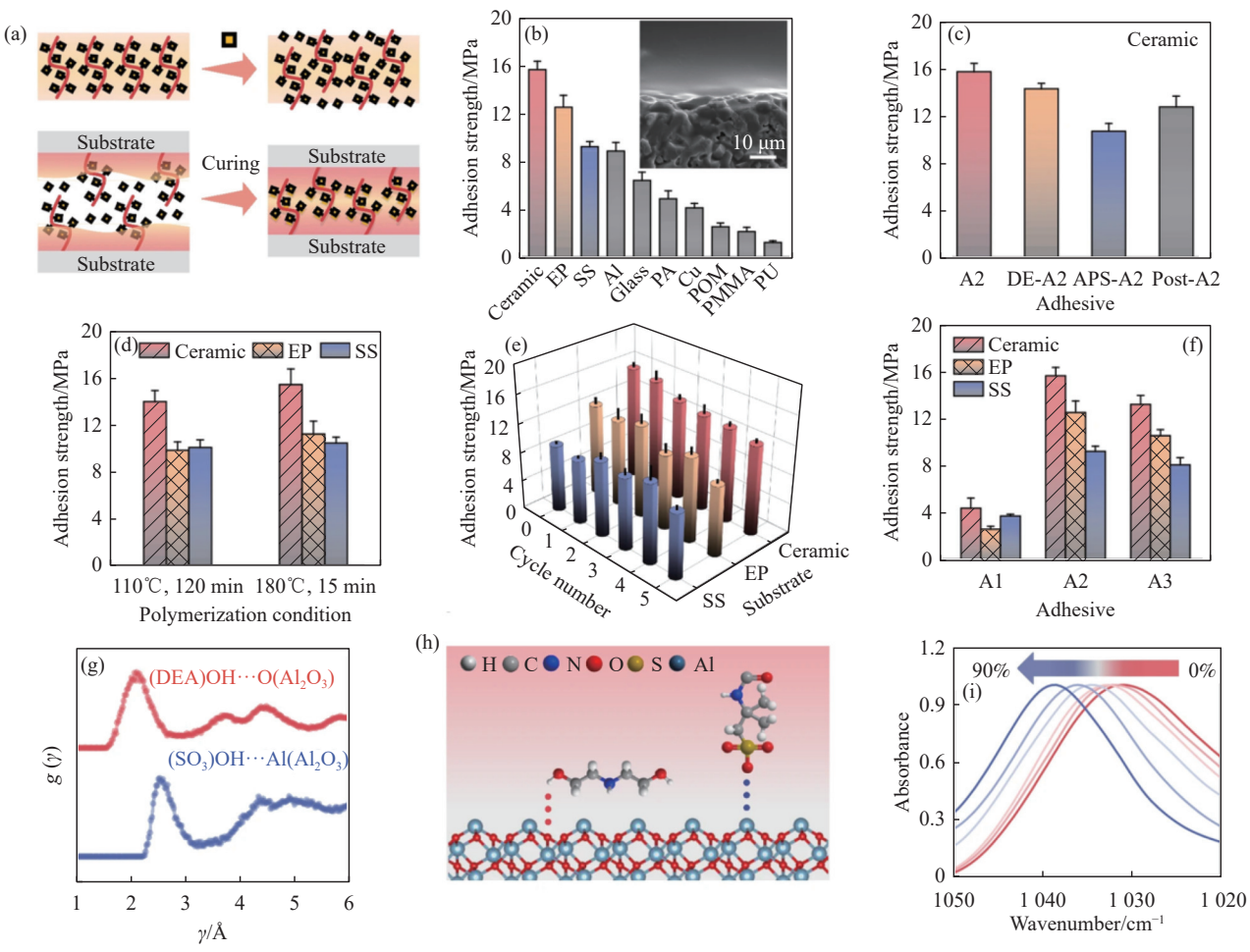
Fan 等^[18]研究发现评估 ILs 的细胞毒性，通常使用半数最大抑制浓度 (IC₅₀) 或半数最大有效浓度 (EC₅₀)，阳离子和阴离子的化学结构对离子液体的细胞毒性有显著影响。特别是，阳离子烷基链的增长通常与细胞毒性的增加相关，这可能是由于亲脂性的增强，使得 ILs 与细胞膜的脂质双层发生更强烈的相互作用。ILs 的生物可降解性是决定其在生物体内分解速率的关键属性，这对于评估它们在生物医学领域的应用潜力极为重要。尽管许多常见阳离子，如咪唑衍生的芳香族、吡啶和噻唑鎓阳离子，显示出较低的生物降解性，但胆碱阳离子及其质子化形式是合成可生物降解 ILs 的典型候选物质。

生物相容性是离子凝胶胶黏剂在生物医学领域应用的核心考量，但离子液体的潜在生物毒性可能限制其生物相容性及在该领域的应用前景。未来的研究需要集中在开发低毒性或无毒性的离子液体，以及进一步优化离子凝胶胶黏剂的结构和性能，以提高其在生物医药领域的应用潜力^[19]。

3.3 自黏附离子凝胶胶黏剂

在柔性电子可穿戴设备的某些应用如临时传感器或医疗设备中，胶黏剂需要能够快速黏附并固定在皮肤上，传统的凝胶胶黏剂可能在某些材料表面(如低表面能材料)上黏附强度不足，导致设备在使用过程中脱落^[20]。为了改善这些问题，研究人员正在开发新型的凝胶胶黏剂，如自黏附离子凝胶胶黏剂，它们具有更好的环境适应性、生物相容性和自愈合能力，即使胶黏剂被切割或撕裂，它也能够一定程度上自我修复，恢复其原有的黏附性和力学性能，以满足柔性电子和可穿戴设备领域日益增长的需求^[21]。

Zhang 等^[22]利用 2-丙烯酰胺-2-甲基丙磺酸 (AMPS) 与羟胺分子(如二乙醇胺 (DEA)) 的中和反应，制备了低成本、高性能的质子型聚离子液体 (PPIL) 胶黏剂，如图 7(g)~7(i) 所示。通过逐渐增加单体浓度的原位自发聚合过程，改善了内聚力和界面黏合强度，如图 7(a) 所示。该 PPIL 胶黏剂具有高达 16.2 MPa 的最大黏合强度并且对有机溶剂具有很高的抵抗力，在多种基材上表现出优异的黏合强度，如图 7(b)~7(f) 所示。即使在极端条



EP—Epoxy; SS—Stainless steel; PA—Polyamide; POM—Polyformaldehyde; PMMA—Polymethylmethacrylate; DE-A2—A sample with partially disentangled molecular chains; A1—Ethanolamine; A3—Triethanolamine; APS—Ammonium persulfate

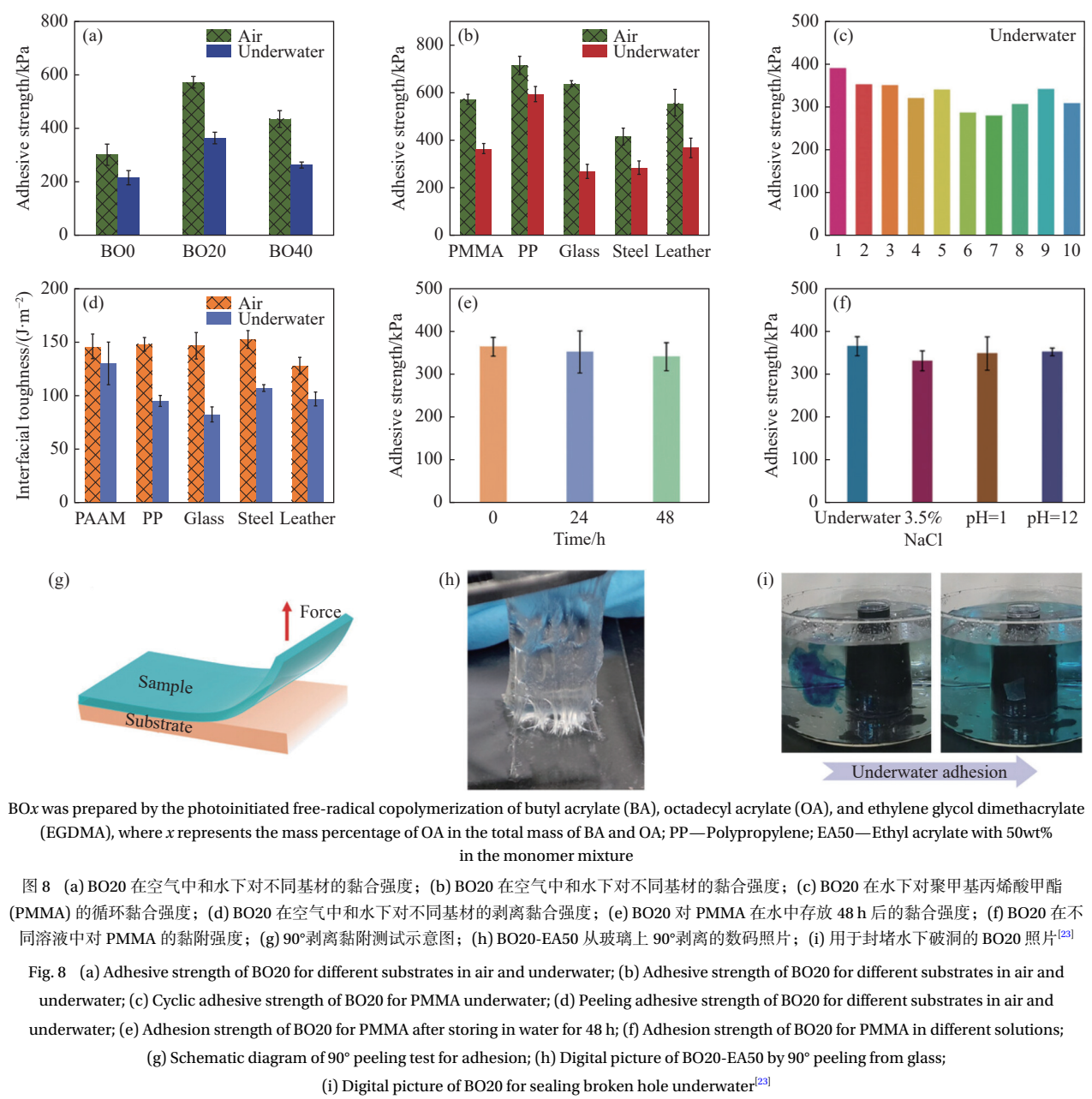
图7 (a) 在有机溶剂下的黏附过程示意图; (b) 在室温下各种基材上的黏附强度; (c) 通过不同工艺获得的 A2 和其他参考样品的黏附强度; (d) 通过不同自发聚合条件获得的 A2 的黏附强度; (e) 连续循环黏附测试; (f) 通过不同羟胺分子获得的 A2 和其他参考样品的黏附强度; (g) 从分子动力学模拟中得到的 (DEA)OH...O(Al₂O₃) 和 (SO₃)OH...Al(Al₂O₃) 的径向分布函数; (h) 提出的 A2 单元与 Al₂O₃ 基材之间的界面相互作用; (i) 含有不同 Al₂O₃ 含量的 A2 复合材料的衰减全反射 (ATR)-FTIR 光谱^[22]

Fig. 7 (a) Schematic of the adhesion process in organic solvents; (b) Adhesion strengths on various substrates at room temperature; (c) Adhesion strengths of A2 and other reference samples obtained through different processes; (d) Adhesion strength of A2 obtained under different spontaneous polymerization conditions; (e) Continuous cycle adhesion tests; (f) Adhesion strengths of A2 and other reference samples obtained with different hydroxylamine molecules; (g) Radial distribution functions of (DEA)OH...O(Al₂O₃) and (SO₃)OH...Al(Al₂O₃) derived from molecular dynamics simulations; (h) Proposed interface interactions between the A2 unit and Al₂O₃ substrate; (i) Attenuated total reflectance (ATR)-FTIR spectra of A2 composites containing different Al₂O₃ contents^[22]

件下 (如超低温或长时间暴露于有机溶剂) 也能保持黏合强度。此外还可以通过加入热致变色材料或多壁碳纳米管 (MWCNTs), 制造出具有可视化传感器和导电复合材料等先进应用的多功能胶黏剂。

Zhou 等^[23] 采用“枝接枝”方法, 在疏水自黏材料上原位构建具有良好力学性能和导电性能的疏水抗黏材料。研究人员采用简易的两步堆叠工艺, 成功制备了具有非对称黏附特性的 Janus 疏水结构凝胶 (HSG)。HSG 展现出良好的机械强度、拉伸性能和非对称自黏附性, 使其能轻松黏附于

多种基材, 并在空气及不同水域环境中维持稳定的黏附力, 如图 8(a)~8(f) 所示。特别是含有长链 C18 脂肪族的 BO20 通过其强疏水作用有效消除界面水分子, 防止了因界面液体导致的黏附失效, 如图 8(g)~8(i) 所示。此外, 所开发的可穿戴应变传感器不仅灵敏度高、抗疲劳性能出色, 适用于人体运动监测和水下无线通信, 而且通过模块化设计实现了功能分区。这种传感器不仅满足了多功能需求, 还克服了自黏材料的固有缺陷, 为多功能可穿戴电子设备的开发开辟了新路径。



在实际应用中，离子凝胶胶黏剂需要在不同的环境条件下都能保持良好的性能，包括极端温度、湿度和化学物质的影响，同时在电子设备中，胶黏剂可能需要具备一定的电绝缘性或导电性，以确保设备的正常工作。为应对这些挑战，研究者必须持续改进材料配方，并执行严格的测试与评估程序，确保自黏性离子凝胶胶黏剂在柔性电子可穿戴设备中具有高效性和安全性。

3.4 温敏离子凝胶胶黏剂

温度波动可能引起敏感药物的分解，从而降低其疗效，因此药物递送系统的设计必须确保在特定温度区间内维持药物的稳定性。传统胶黏剂

可能无法提供精确的药物释放控制，因药物释放速率可能受到多种因素的影响，导致药物释放不均匀或不按预期进行。而温敏离子凝胶胶黏剂可用于制作药物控释贴片，这些贴片在特定温度下释放药物，有助于维持药物在体内的稳定释放。通过设计对温度敏感的胶黏剂，可以实现药物在特定体温区域的释放，如肿瘤部位^[24]。

Xu 等^[25]开发了一种水/离子液体 (H₂O/IL) 二元溶剂体系，并在该体系中原位聚合制备了聚 N-异丙基丙烯酰胺 (PNIPAM) 离子凝胶。调节聚合物与离子液体的比例，制备了一系列力学性能各异的 PNIPAM 离子凝胶，如图 9(a)~9(e) 所示。IL

的加入增强了非共价相互作用，从而提高了凝胶的黏附强度，且随着 IL 含量的增加而增强。IL 比例还在较宽的温度范围内 (37~70℃) 显著影响了 PNIPAM 离子凝胶的最低临界溶解温度 (LCST)，实现了材料透明度的温度调控，如图 9(f)~9(i) 所示。PNIPAM 离子凝胶展现出的温度响应性和离子导电性，预示着其在温度调控黏附和柔性传感领域的应用前景。

Xiong 等^[2]使用 CAC 作为溶剂，通过紫外光引发 N,N-二甲基丙烯酰胺 (DMAA) 聚合制备的离子凝胶可以通过温度调节其黏附性能，如图 10(a) 所示。离子凝胶在 -20℃ 时对玻璃基板的黏附强度高达 15.6 MPa，而当温度升至 85℃ 时，该强度降至 0.5 MPa，允许通过温度调节实现黏附与脱黏，

如图 10(c)~10(e) 所示。此外，胶黏剂的自愈速度随温度变化显著，分别在 -20℃、25℃ 和 80℃ 下，完全自愈所需时间分别为 12 h、10 min 和 30 s，如图 10(b) 所示。在较高温度下，聚合物链段的增强运动显著提升了自修复效率。

Liu 等^[26]制备了一系列具有不同烷基链长度的咪唑基离子液体，并通过特定的异氰酸酯修饰得到了 3 种咪唑基分子固体 (P1、P2、P3)。研究发现，分子固体的热力学性能受烷基链长度的影响显著。在室温条件下，P2 表现为非晶态，而 P1 和 P3 则呈现为粉末形态，如图 11(a) 所示。利用 DSC 的分析结果显示，P2 的玻璃化转变温度 (T_g) 和熔点 (T_m) 低于 P1，这可能是由于 P2 增强的亲脂性，导致其与脂质双层的相互作用更为强

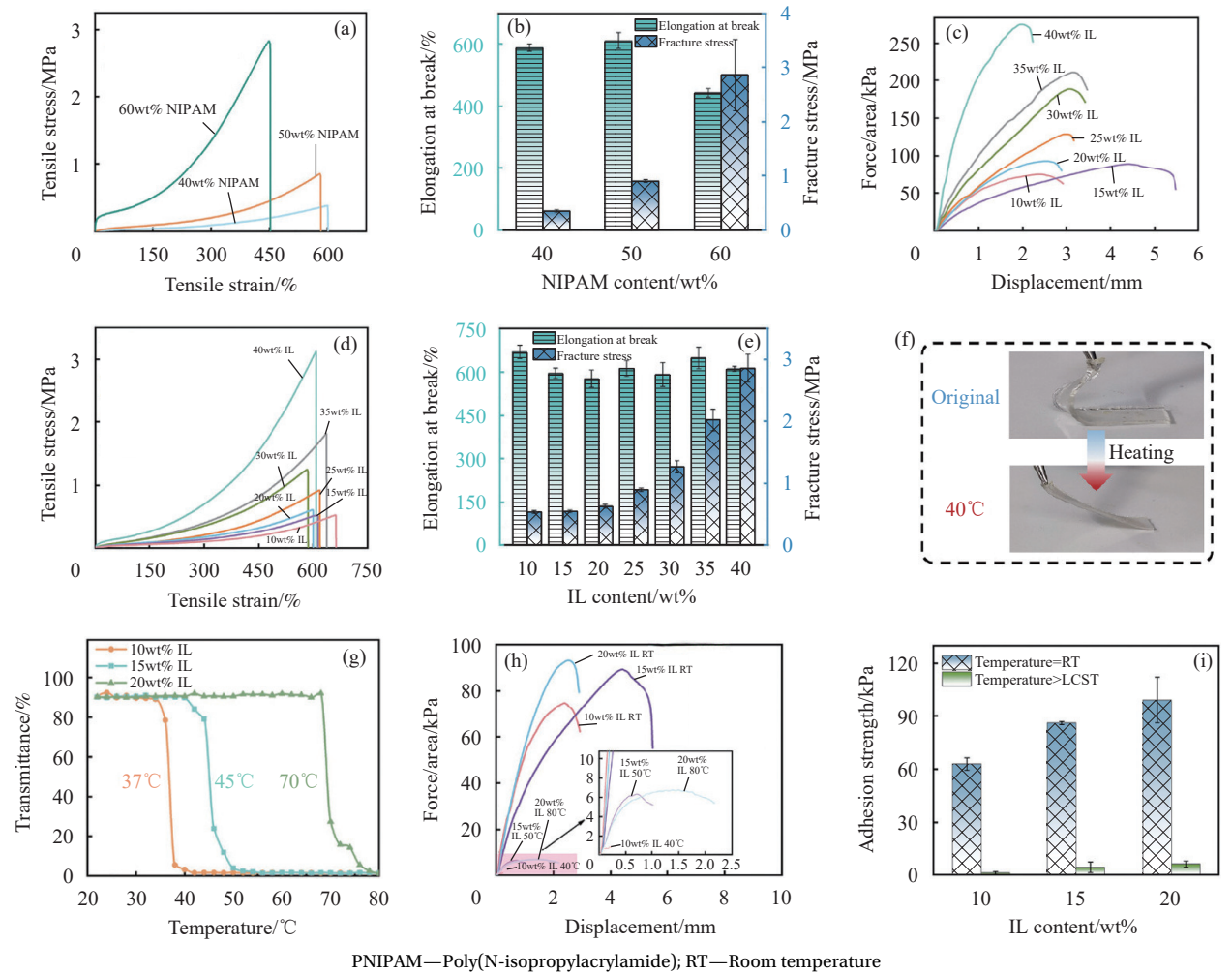


图 9 聚合物含量 ((a), (b)) 和 IL 比率 ((d), (e)) 对 PNIPAM 离子凝胶力学性能的影响; (c) IL 比率对 PNIPAM 离子凝胶黏附强度的影响; (g) IL 比率对 PNIPAM 离子凝胶最低临界溶解温度 (LCST) 的影响; PNIPAM 离子凝胶温度管理黏附的图像 (f) 和定量分析 ((h), (i))^[25]

Fig. 9 Polymer content ((a), (b)) and IL ratio ((d), (e)) on mechanical properties of PNIPAM ionogels; (c) Effects of IL ratio on the adhesion strength of PNIPAM ionogels; (g) Effect of IL ratio on the lower critical solution temperature (LCST) of PNIPAM ionogels; Images (f) and quantitative analysis ((h), (i)) of temperature-managed adhesion to PNIPAM ionogels^[25]

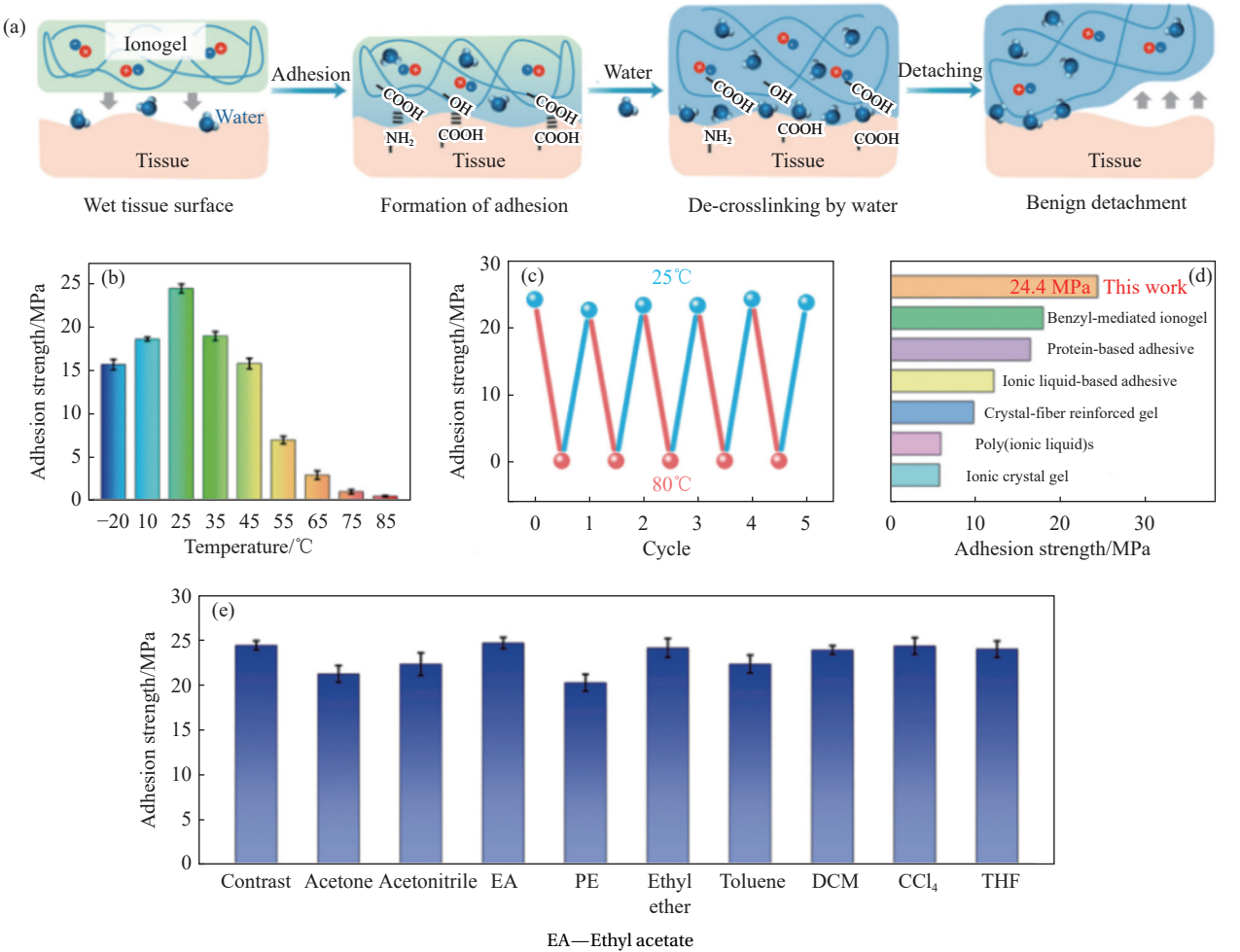


图 10 (a) 超分子相互作用机制；(b) 不同温度 (−20 至 85℃) 下离子凝胶在玻璃上的附着力；(c) 离子凝胶 (IL 含量为 45wt%) 在玻璃基底上的连续循环附着力测试；(d) 比较制备的离子凝胶和报道的代表性凝胶的黏附强度；(e) 离子凝胶在各种有机溶液中浸泡 24 h 后的附着力^[2]

Fig. 10 (a) Supramolecular interaction mechanism; (b) Adhesion of ionic gels on glass at different temperatures (−20 to 85°C); (c) Continuous cycle adhesion test of ionic gel (IL content of 45wt%) on glass substrate; (d) Comparison of adhesion strength of prepared ionic gel with reported representative gel; (e) Adhesion of ionogel after 24 h immersion in various organic solutions^[2]

烈，如图 11(b)、图 11(c) 所示。此外，P2 的黏附强度在 Al₂O₃ 和 ZrO₂ 基材上超过了 P1 和 P3，展现出卓越的黏附性能，P2 的温度敏感性使其在经历多次黏附和分离循环后，依然保持了优异的黏附性能，这突显了其作为一种稳定、可回收且耐低温的黏合材料的巨大潜力，如图 11(d)~11(h) 所示。

3.5 导电离子凝胶胶黏剂

作为可充电电池的一种，锂离子电池以其高能量密度和长寿命著称，在制造过程中，胶黏剂的作用是将活性物质黏附于集流体，并确保电池组件的结构稳定性。传统胶黏剂可能在电池充放电过程中发生化学分解，影响电池的电化学稳定性和循环寿命，或无法提供足够的机械强度来抵抗电池在使用过程中的机械应力，导致电极材料

的脱落或电池结构的损坏^[27]。而离子凝胶胶黏剂具有高电化学稳定性和优秀的机械强度，通过使用具有高模量的离子凝胶，可以有效抑制锂枝晶的生长，增强设备抵抗外部冲击的能力，从而提高电池的安全性^[28]。

Shi 等^[28] 开发了一种新型锂离子电池胶黏剂，利用导电高分子凝胶的独特性质，有效提高了电池电极的性能。利用原位聚合法合成的胶黏剂构建了三维网络结构，呈现出 3D 形态，如图 12(a)、图 12(b) 所示。这种多孔结构的设计不仅优化了电解液的流动性，而且为电极材料中的颗粒提供了高效的电子传输路径，从而增强了离子的迁移能力，如图 12(c) 所示。该研究首次研制了一种三维纳米结构的导电凝胶，它不仅作为锂离子电池

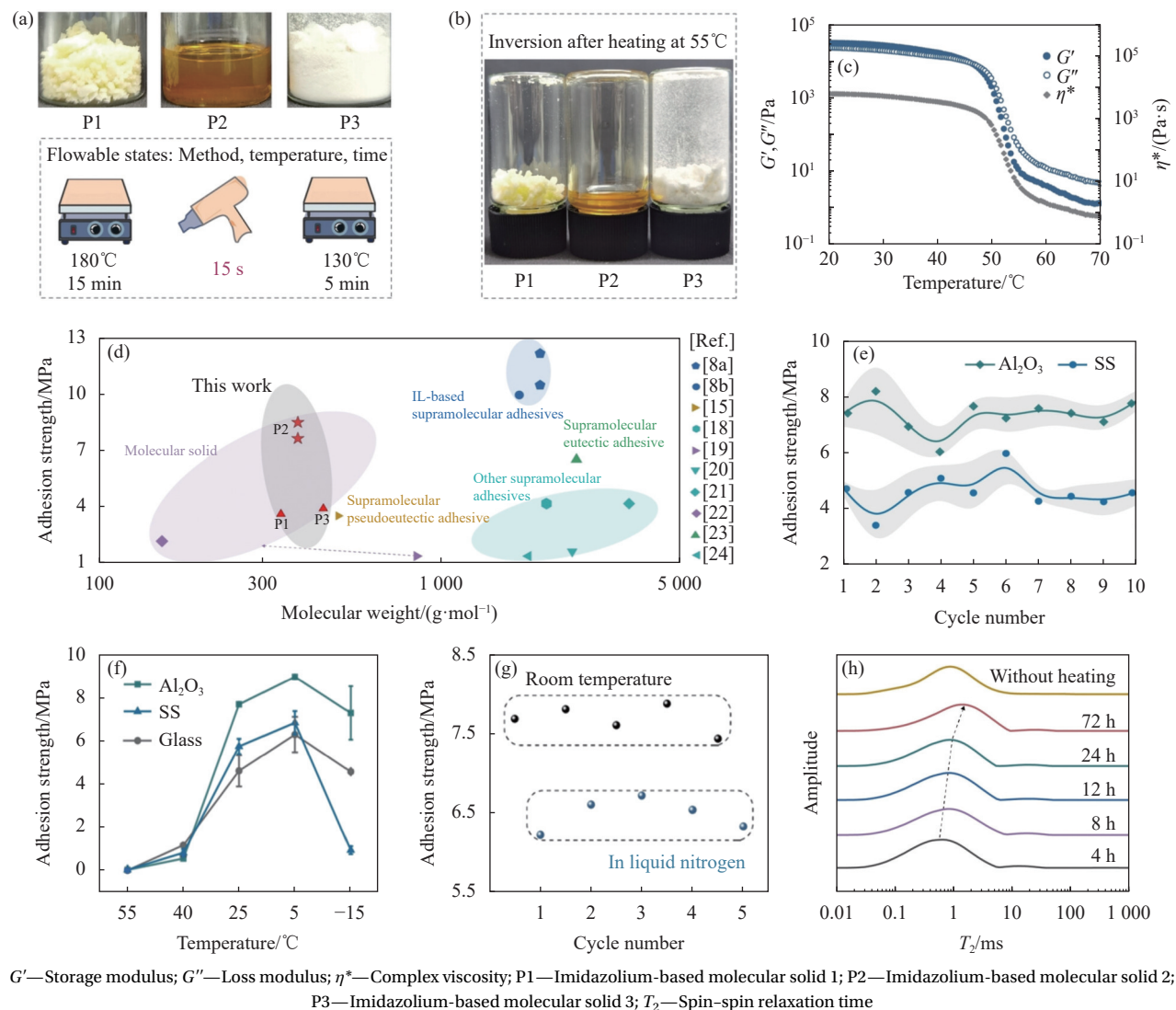


Fig. 11 (a) Pictures of three molecular solids at room temperature as well as their heating conditions; (b) Inversion states of the three molecular solids after heating at 55°C; (c) Temperature-dependent rheological analysis of P2; (d) Comparison of adhesion strength of P2 and other reported low molecular-weight supramolecular adhesives; (e) Adhesion-separation cycling tests of P2 on various substrates; (f) Temperature-dependent adhesion strengths of P2 on various substrates; (g) Cycling tests of P2 on Al₂O₃ ceramic between room temperature and in liquid nitrogen; (h) Time-dependent low-field ¹H NMR results for P2^[26]

图 11 (a) 3 种分子固体在室温及其加热条件下的图片; (b) 3 种分子固体在 55°C 下加热后的反转状态; (c) P2 随温度变化的流变分析; (d) P2 与其他已报道的低分子量超分子黏合剂的黏合强度比较; (e) P2 在各种基底上的黏合-分离循环测试; (f) P2 在不同基底上的黏附强度与温度有关;

(g) P2 在 Al₂O₃ 陶瓷上的室温 and 液氮循环测试; (h) P2 随时间变化的低场 ¹H NMR 结果^[26]

Fig. 11 (a) Pictures of three molecular solids at room temperature as well as their heating conditions; (b) Inversion states of the three molecular solids after heating at 55°C; (c) Temperature-dependent rheological analysis of P2; (d) Comparison of adhesion strength of P2 and other reported low molecular-weight supramolecular adhesives; (e) Adhesion-separation cycling tests of P2 on various substrates; (f) Temperature-dependent adhesion strengths of P2 on various substrates; (g) Cycling tests of P2 on Al₂O₃ ceramic between room temperature and in liquid nitrogen; (h) Time-dependent low-field ¹H NMR results for P2^[26]

的黏合剂，还充当了导电支架。凝胶的导电性和多孔结构的协同效应显著提高了电池的电化学性能，为开发高性能锂离子电池开辟了新途径。这种三维纳米结构凝胶框架提供了连续的电子传输路径和多级孔隙通道，促进了锂离子的迁移，如图 12(d)~12(g) 所示。同时，它在活性颗粒表面形成了均匀覆盖层，有效防止了颗粒团聚。这些特性使开发的电极展现出了优异的倍率性能、高活性物质质量比和卓越的比容量。

Lin 等^[29] 设计了一种通过氢键实现自愈特性的硫阴极聚合离子液体基聚合物胶黏剂，具有优异的循环耐久性和离子导电率。循环伏安测试结果揭示，PIL 基胶黏剂促进了硫的利用率并加速了反应动力学，同时展现了优异的可逆性和循环稳定性，如图 13(a)、13(b) 所示。本文开发的聚离子液体 (PIL) 聚合物黏结剂，凭借其卓越的黏接强度和离子导电性，显著提升了锂硫电池的性能，如图 13(c)~13(h) 所示。该 PIL 黏结剂在提高黏接

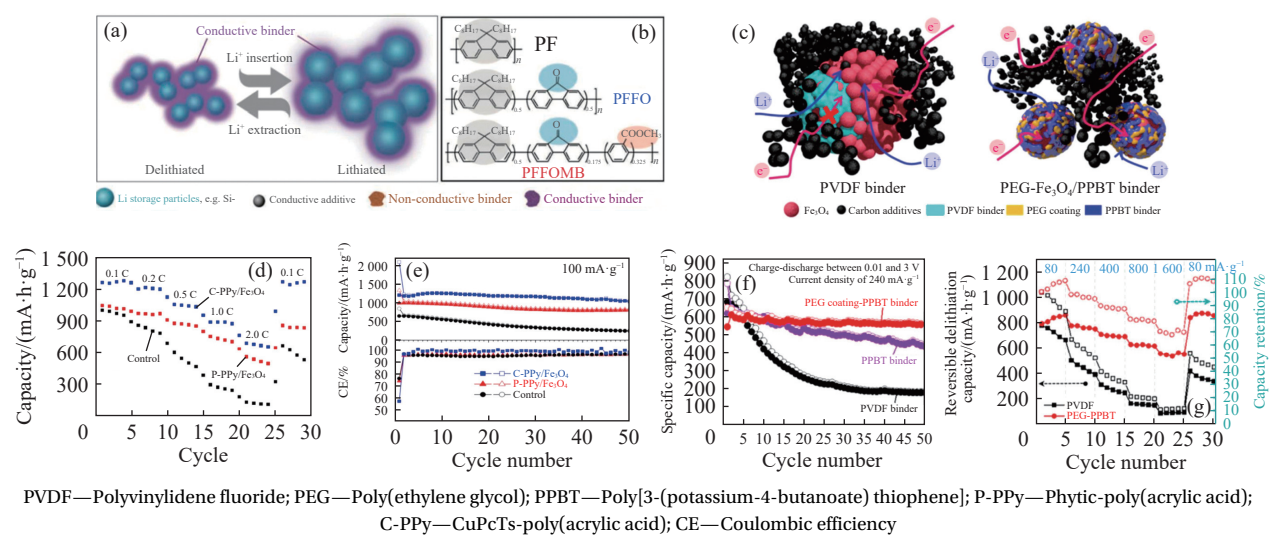


图 12 (a) 具有双重功能的导电聚合物黏剂的概念; (b) PF 型导电聚合物的分子结构; (c) 示意图显示了改性电极中的电子和离子传输; ((d), (e)) 不同电极的速率和稳定性测试; ((f), (g)) 改性电极的循环和速率性能^[28]

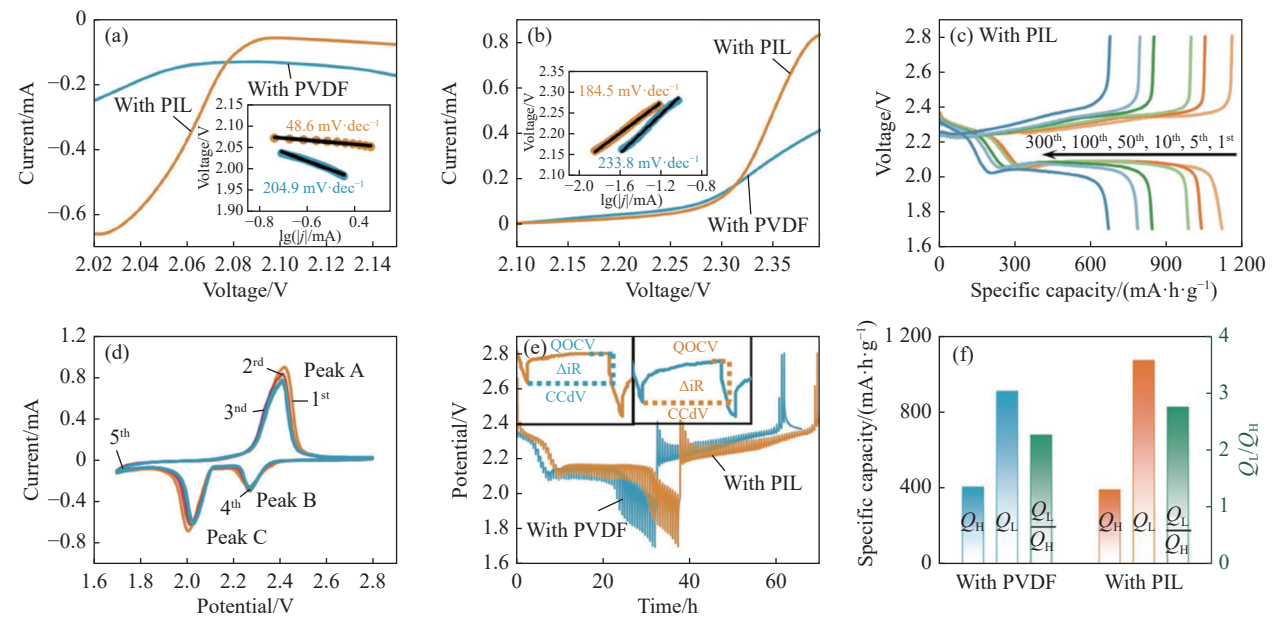
Fig. 12 (a) Concept of a conductive polymer binder with dual functionalities; (b) Molecular structure of the PF-type conductive polymers; (c) Schematic depicting electron and ion transport in the electrode modified; ((d), (e)) Rate and stability tests of different electrodes; ((f), (g)) Cycle and rate performance of modified electrodes^[28]

强度、促进自修复能力和增强电化学稳定性方面表现出独到之处，为锂离子电池领域内 PIL 黏结剂的进一步研发开辟了新方向。

Jiang 等^[30]制备了含锂盐的超分子离子凝胶 (SIG)，用作锂离子电池的新型准固态电解质，通过采用一种特殊的低分子量凝胶剂 (12-HOA)，在浓度仅为 2wt% 的情况下通过氢键和范德华力的协同作用，“固化”含锂盐的离子液体电解质。研究合成的物理离子凝胶凭借其卓越的离子导电性和电化学稳定性，以及较高的锂离子迁移率，

在磷酸铁和高压镍钴锰正极材料的扣式电池应用中，实现了优异的比容量、库仑效率、容量保持率和倍率性能，如图 14 所示。这一成果为开发用于锂电池的多功能高性能离子凝胶电解质提供了创新途径，预期将促进锂离子电池技术的进步。

尽管离子凝胶胶黏剂在锂离子电池中具有显著的应用潜力，但其复杂的内部结构和相互作用的理解仍是一个挑战，尤其是在结构表征和构效关系分析方面。尽管如此，该材料在锂离子电池领域的应用前景依然值得期待。



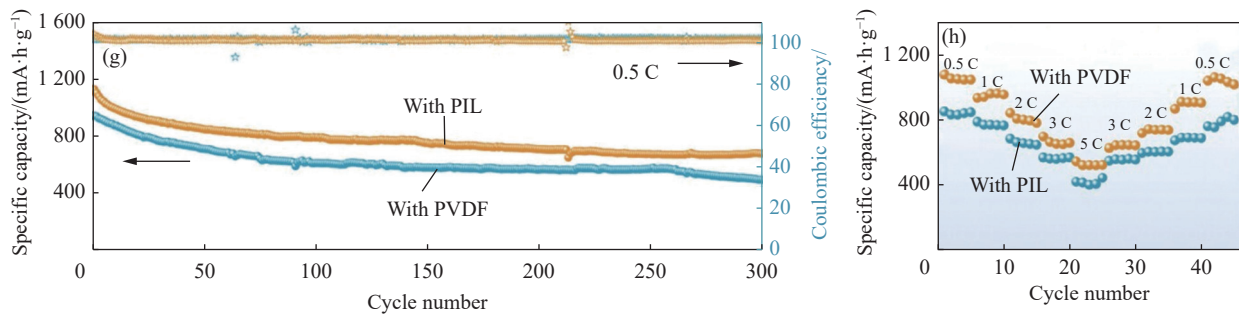
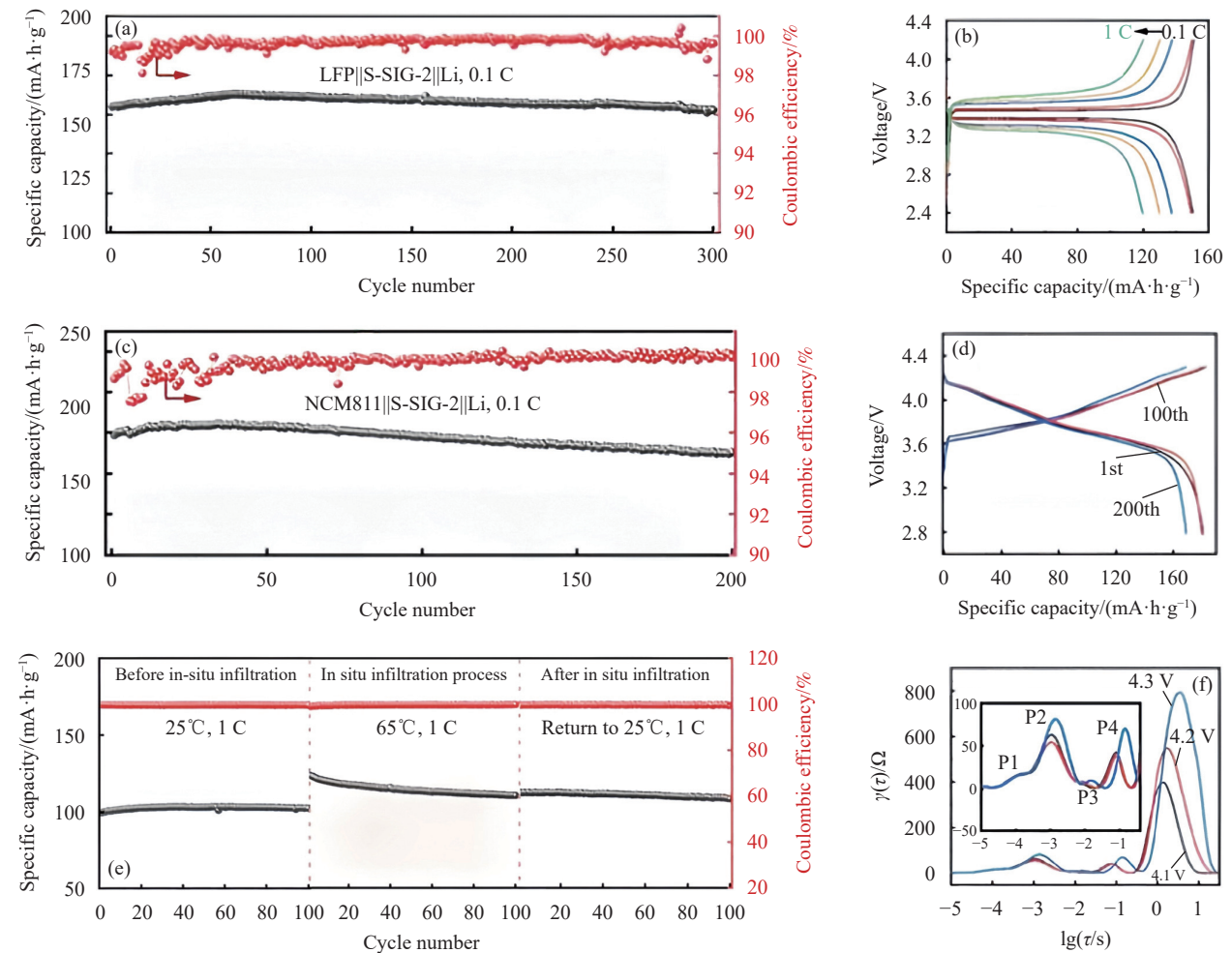


Fig. 13 ((a), (b)) Linear sweep voltammetry curves; (c) Long-term cycling performance of S@PIL cathode at 0.5 C; (d) CV curves of S@PIL cathode at 0.1 mV/s within the voltage window of 1.7–2.8 V; (e) Voltage curves of sulfur cathode using PVDF and PIL binder, respectively; (f) Q_H , Q_L , and Q_L/Q_H values calculated based on GCD curves; (g) Long-term cyclic performance of sulfur cathodes at 0.5 C; (h) Rate performance of Li-S cells based on different cathodes^[29]



LFP—LiFePO₄; SIG—Supramolecular ionogels; NCM811—LiNi_{0.8}Co_{0.1}Mn_{0.1}O₂; $\gamma(\tau)$ —Distribution function of relaxation time τ

图 14 超分子离子凝胶的锂电池性能^[30]

Fig. 14 Lithium battery properties of supramolecular ionic gels^[30]

4 结论与展望

近年来,离子凝胶胶黏剂在胶黏剂、固态电解质、离子皮肤、柔性器件以及其他功能材料等领域具有广泛应用。本文综述了离子凝胶胶黏剂的制备方法、特点及其应用领域。(1)离子凝胶胶黏剂的制备方法根据体系和相容性的差异而不同,对材料性能也有很大的影响;主要有直接混合法、溶剂交换法、原位聚合法3种制备方法;(2)离子凝胶胶黏剂结合了离子液体与聚合物的特点,具有黏附性、离子导电性、力学性能、生物相容性、自愈合性和透明性等性能特点;赋予它多样化的结构可变性和功能;(3)结合离子凝胶胶黏剂的制备方法和特点,进一步总结了并重点介绍了基于自愈合、生物相容性、自黏附、温敏、导电等多功能胶黏剂的结构设计及其在固态电解质、柔性电子、生物医学、智能穿戴设备和光学器件等应用领域中发挥的作用。制备开发的离子凝胶胶黏剂黏附性(在不同基材的最高胶合强度可达7.2 MPa)、力学性能(拉伸强度可达14.3 MPa,断裂伸长率可到5 000%)、具有良好的生物相容性和自愈合性(室温下10 min快速愈合)。

尽管离子凝胶胶黏剂克服了传统胶黏剂的很多缺陷,但其结构的开发与性能的优化仍存在多种挑战:(1)如何平衡离子凝胶胶黏剂内聚能和界面结合能的矛盾,制备出高韧且超强黏附的离子凝胶胶黏剂;(2)力学性能与导电性也是研究中的难题,需要进一步材料设计优化以实现两者的兼容;(3)在医疗应用中,离子液体的生物相容性是医药应用的关键限制因素,开发更多满足生物相容性的离子液体,探索环境友好且经济效益高的制备方法仍需要开展广泛的研究。

参考文献:

[1] OU X, PAN J, LIU Q, et al. High-toughness CO₂-sourced ionic polyurea adhesives[J]. *Advanced Materials*, 2024, 36(16): 2312906.

[2] XIONG J, DUAN M, ZOU X, et al. Biocompatible tough ionogels with reversible supramolecular adhesion[J]. *Journal of the American Chemical Society*, 2024, 146(20): 13903-13913.

[3] YAN C C, LI W, LIU Z, et al. Ionogels: Preparation, properties and applications[J]. *Advanced Functional Materials*, 2024, 34(17): 2314408.

[4] LUO Z, LI W, YAN J, et al. Roles of ionic liquids in adjusting nature of ionogels: A mini review[J]. *Advanced Functional*

Materials, 2022, 32(32): 2203988.

[5] ZHU J, ZHANG J, ZHAO R, et al. In situ 3D crosslinked gel polymer electrolyte for ultra-long cycling, high-voltage, and high-safety lithium metal batteries[J]. *Energy Storage Materials*, 2023, 57: 92-101.

[6] ZHOU R, LI Y, JIN Y, et al. In-situ phase separation constructing robust hydrophobic ionogels with multifunction[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2023, 476: 146840.

[7] WANG J, ZHENG Y, CUI T, et al. Bioinspired ultra-robust ionogels constructed with soft-rigid confinement space for multimodal monitoring electronics[J]. *Advanced Functional Materials*, 2024, 34(6): 2312383.

[8] LI M, JING R, JIA K, et al. Organic/inorganic hybrid ionogel fiber with synergistically enhanced mechanical and ionic thermoelectric performances[J]. *Advanced Functional Materials*, 2025, 35(8): 2415856.

[9] HUANG C, JIA X, WANG D, et al. Stretchable ionogels: Recent advances in design, toughening mechanisms, material properties and wearable devices applications[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2024, 490: 151850.

[10] CAO Z, LIU H, JIANG L. Transparent, mechanically robust, and ultrastable ionogels enabled by hydrogen bonding between elastomers and ionic liquids[J]. *Materials Horizons*, 2020, 7(3): 912-918.

[11] ZHOU Y, WANG L, LIU Y, et al. Transparent, stretchable, self-healing, and self-adhesive ionogels for flexible multifunctional sensors and encryption systems[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2024, 484: 149632.

[12] QIU W, CHEN G, ZHU H, et al. Enhanced stretchability and robustness towards flexible ionotronics via double-network structure and ion-dipole interactions[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2022, 434: 134752.

[13] LI W, LI L, ZHENG S, et al. Recyclable, healable, and tough ionogels insensitive to crack propagation[J]. *Advanced Materials*, 2022, 34(28): 2203049.

[14] ZHANG J, LI H, ZHOU X, et al. Adhesive zwitterionic poly(ionic liquid) with unprecedented organic solvent resistance[J]. *Advanced Materials*, 2024, 36(31): 2403039.

[15] YANG J, ZHANG G, WANG J, et al. Parthenocissus-inspired, strongly adhesive, efficiently self-healing polymers for energetic adhesive applications[J]. *Journal of Materials Chemistry A*, 2021, 9(29): 16076-16085.

[16] 朱明华, 孙涛, 黄聘和, 等. BC-1 型医用压敏胶黏剂的生物相容性[J]. *北京生物医学工程*, 1993(1): 29-35.

ZHU Minghua, SUN Tao, HUANG Pinhe, et al. Biocompatibility of BC-1 type medical pressure-sensitive adhesive[J]. *Beijing Biomedical Engineering*, 1993(1): 29-35(in Chinese).

[17] ATALAYIN C, TEZEL H, ERGUCU Z, et al. The improve-

- ment of biocompatibility of adhesives: The effects of resveratrol on biocompatibility and dentin micro-tensile bond strengths of self-etch adhesives[J]. *Clinical Oral Investigations*, 2019, 23: 3213-3218.
- [18] FAN X, LIU S, JIA Z, et al. Ionogels: Recent advances in design, material properties and emerging biomedical applications[J]. *Chemical Society Reviews*, 2023, 52(7): 2497-2527.
- [19] KURODA K. A simple overview of toxicity of ionic liquids and designs of biocompatible ionic liquids[J]. *New Journal of Chemistry*, 2022, 46(42): 20047-20052.
- [20] HUANG S, WAN Y, MING X, et al. Adhering low surface energy materials without surface pretreatment via ion-dipole interactions[J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2021, 13(34): 41112-41119.
- [21] 邱迎轩. 基于 1-丁基-3-甲基咪唑氯盐/丙烯酸酰胺可聚合低共熔溶剂的多功能离子凝胶制备、性能及应用研究 [D]. 曲阜: 曲阜师范大学, 2024.
- QIU Yingxuan. Preparation, properties and application of multifunctional ionogels based on 1-butyl-3-methylimidazole chloride salt/acrylamide polymerizable low eutectic solvent[D]. Qufu: Qufu Normal University, 2024(in Chinese).
- [22] ZHANG J, ZHOU X, HU Q, et al. Concentration-induced spontaneous polymerization of protic ionic liquids for efficient in situ adhesion[J]. *Nature Communications*, 2024, 15(1): 4265.
- [23] ZHOU R, JIN Y, ZENG W, et al. Janus hydrophobic structural gel with asymmetric adhesion in air/underwater for reliable mechanosensing[J]. *Advanced Functional Materials*, 2024, 34(33): 2316687.
- [24] WANG M, HU J, DICKEY M D. Emerging applications of tough ionogels[J]. *NPG Asia Materials*, 2023, 15(1): 66.
- [25] XU S, WU S, ZHU R, et al. Fully physically crosslinked PNIPAM ionogels with high mechanical properties and temperature-managed adhesion achieved by H₂O/ionic liquid binary solvents[J]. *Advanced Functional Materials*, 2024, 34: 2405965.
- [26] LIU K, WU P. Small ionic-liquid-based molecule drives strong adhesives[J]. *Angewandte Chemie International Edition*, 2024, 63(25): e202403220.
- [27] CHEN J, LIU J, QI Y, et al. Unveiling the roles of binder in the mechanical integrity of electrodes for lithium-ion batteries[J]. *Journal of the Electrochemical Society*, 2013, 160(9): A1502.
- [28] SHI Y, ZHOU X, YU G. Material and structural design of novel binder systems for high-energy, high-power lithium-ion batteries[J]. *Accounts of Chemical Research*, 2017, 50(11): 2642-2652.
- [29] LIN X, LIU X, TONG Y, et al. A poly (ionic liquid)-based polymer binder for durable lithium-sulfur batteries[J]. *Advanced Functional Materials*, 2024, 34(46): 2406985.
- [30] JIANG X, LIU Z, LIU W, et al. Physical ionogels with only 2wt% gelators as efficient quasi-solid-state electrolytes for lithium batteries[J]. *Matter*, 2024, 7(4): 1558-1574.