



共晶凝胶的构筑及功能化应用研究进展

陈宇曦^{1,2}, 赵龙^{1*}

1. 华中科技大学电气与电子工程学院, 强电磁技术全国重点实验室(华中科技大学), 武汉 430074

2. 华中科技大学化学与化工学院, 武汉 430074

*通讯作者, E-mail: zhaolong@hust.edu.cn

收稿日期: 2025-09-29; 接受日期: 2025-12-11; 网络版发表日期: 2026-01-26

国家自然科学基金(编号: 12475341)资助项目

摘要 深共晶溶剂(DES)作为一种由氢键供体与受体构成的新型绿色溶剂, 其因制备简便、成本低廉且物化性质可调, 应用前景广阔. 将其作为关键组分构筑的共晶凝胶, 在继承DES优良特性的同时, 更融合了可拉伸性、高离子电导率、生物相容性及灵活的功能化设计能力, 从而被视为替代传统离子凝胶的新一代功能材料. 本文梳理了功能化共晶凝胶的构建策略, 综述其在柔性传感、能源转换存储、生物医学三大领域的最新研究与应用进展, 为该类材料的设计优化、性能提升及规模化应用提供参考.

关键词 深共晶溶剂, 共晶凝胶, 功能化应用, 离子电导率, 生物相容性

1 引言

深共晶溶剂(deep eutectic solvent, DES)是一种由氢键供体与氢键受体通过氢键相互作用形成的均一溶剂相, 具有与传统离子液体高度相似的物理化学特性(如低挥发性、高热稳定性及可设计性强等), 同时具有环境友好性、生物相容性与成本低廉等优势^[1-4], 近年来已被学界视为替代传统离子液体最具前景的新型功能介质.

在物联网技术飞速发展的背景下, 柔性电子产品凭借高度集成化、功能多元及穿戴舒适等核心优势, 已成为当前材料科学与柔性电子交叉领域的研究焦点^[5]. 这对DES的功能与形态提出了更高要求, 通过针对性功能化设计构建多样化形态载体, 已成为拓展其应用范围的关键方向. 其中, 由聚合物三维网络与

DES复合形成的共晶凝胶, 因同时具备优异的机械可拉伸性、高离子电导率、良好的生物相容性及易功能化设计等特性, 在仿生离子皮肤、软体机器人、可穿戴健康监测设备及柔性能量收集系统等领域展现出重要的应用价值^[6-9]. 值得注意的是, 本文所综述的共晶凝胶不仅涵盖DES作为溶剂导电相的体系, 还包括DES参与聚合物主体框架构建的柔性材料类型^[10].

基于DES构筑的共晶凝胶体系, 一方面筛选DES组分, 如改变氢键供体类型、调整组分摩尔比, 可调节凝胶的离子浓度与流动性, 进而控制其导电率与热稳定性; 另一方面, 优化聚合物网络结构(如双网络设计、引入动态共价键/非共价键), 能实现对凝胶机械强度、可拉伸性及黏弹性的定向调控. 通过功能化修饰(如在聚合物链引入导电基团、在DES中掺杂功能性纳米粒子), 可进一步赋予凝胶兼具高机械耐受性与

引用格式: Chen Y, Zhao L. Research progress in the construction and functional applications of eutectogels. *Sci Sin Chim*, 2026, 56: 389–411, doi: 10.1360/SSC-2025-0251

高导电活性的复合性能, 为在柔性电子领域的应用奠定了核心基础. 此外, 由氨基酸与多元醇构成的DES所制备的共晶凝胶, 得益于其固有的低细胞毒性和优异的生物相容性, 能够与生物体系实现良好的相互作用, 使其在生物医药领域展现出独特价值, 为组织工程支架的细胞黏附增殖、药物递送系统的可控释放等应用提供了创新解决方案.

本综述系统梳理了功能化共晶凝胶的组成与建构策略, 并重点评述了近年来该材料在三大领域的应用研究进展: (1) 柔性电子器件中的多模态传感应用; (2) 能源转化与存储系统中的凝胶电解质; (3) 生物学领域的药物递送及治疗等应用. 通过对这些创新性研究的总结与分析, 不仅为下一代可穿戴设备、仿生离子皮肤及软体机器人的研发提供了创新材料基础, 也为绿色柔性材料的开发提供了理论指导与技术支持, 具有重要的科学意义与应用价值.

2 共晶凝胶的组成

2.1 共晶凝胶导电相

2.1.1 DES的组成与分类

DES由氢键供体与氢键受体组成, 由于混合过程中电荷迁移, 氢键受体的官能团会与氢键供体的官能团之间相互作用而形成氢键^[11]. 此外, 随着搅拌时间的延长, 两种组分形成的氢键变得更加均匀, 使得整个溶剂系统更加稳定. 其中, 提供氢键质子对的成分为氢键供体, 如羧酸、酰胺和醇等具有强电负性的化学基团. 氢键受体是该系统中提供空氢键轨道的成分, 通常由季铵盐组成(图1a).

基于所使用的组分, 各种DES已经被开发出来. 它们被细分为五种类型^[12,13](图1b): 第一类DES主要由无水金属卤化物与有机盐组成, 这类DES的熔点较低, 但由于无水金属卤化物成本较高且种类有限, 限制了其广泛应用. 第二类DES由含结晶水的金属卤化物与氯化胆碱(ChCl)组成, 由于制备方法简单、原料易得, 可适用于大规模工业生产. 第三类DES由ChCl和氢键供体(如醇类、酰胺类、碳水化合物等)组成, 其因适应性强、具有重要的溶剂化过渡金属性质而受到广泛研究^[14-16]. 这种类型的DES的物理性质随着氢键供体的种类改变而改变. 第四类DES由金属卤化物和有机配体组成, 通常电导率高, 但是腐蚀性较强. 第五类DES

为非离子型溶剂, 这些组分本身不形成离子键, 而是通过分子间的氢键作用形成稳定的溶剂体系具有更低的毒性、更高的可生物降解性、更低的成本以及更简单的制备方法^[17].

2.1.2 DES的发展进程

2003年, 由Abbott团队^[18]将尿素(urea)作为氢键供体, ChCl作为氢键受体, 按照2:1的摩尔比将二者混合得到均一透明溶液, 熔点仅为12℃, DES的发展自此拉开序幕. 2004年该团队将DES的氢键供体拓展至有机酸体系^[19]; 同年他们提出将ChCl作为氢键受体, 引入水合金属盐作为氢键供体, 如 $\text{CrCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 与ChCl按摩尔比2:1混合制备第二类DES溶液, 可用于高效电沉积^[20]. 2005年, DES的氢键供体类型可拓展至多元醇^[21], 并可作为电解质用于电化学抛光. 2007年, 该团队^[22]将 ZnCl_2 与氢键供体混合, 成功开发出第四类DES, 既有含金属的阳离子, 也有阴离子. 它们的物理性质与传统离子液体相似, 电导率可与离子液体相媲美. 2011年, Abbott团队^[23]将氢键受体拓展至 AlCl_3 , 实现了金属铝在绿色溶剂中的电沉积.

至此, DES引来了学界的广泛关注, 多功能化的DES相继问世. 2013年Choi团队^[24]为了进一步提升DES的生物相容性与环境友好性, 提出了天然深共晶溶剂(NADES)概念, 即由生物代谢常见分子(氨基酸、有机酸、糖类、胆碱衍生物等)组成的DES, 在药物递送、生物学等领域存在潜在应用潜力^[25]. 2015年Kroon团队^[26]利用基于四丁基氯化铵-癸酸的疏水深共晶溶剂(HDES)体系, 在非极性或水相体系中表现出独特的溶解性和分离性能. 同年, Duarte等^[27]提出治疗深共晶溶剂(THEDES)概念. THEDES是指药物活性成分(active pharmaceutical ingredient, API)用作氢键供体或氢键受体组成的DES, 如布洛芬和薄荷酚组成DES, 不仅可保持药物活性, 还能显著增强透皮吸收效率, 为药物递送系统提供了新策略. 2019年, Abranches等^[17]根据百里酚-薄荷醇体系提出非离子型DES, 即第五类DES. 近年来, 新型的DES分子之间相互作用已经引入卤键、 π - π 相互作用和主客体相互作用, 突破了传统DES组分间氢键为主的观念^[28-30].

2.1.3 DES的物理化学性质

DES具有与离子液体相似的特性和性质, 但与传

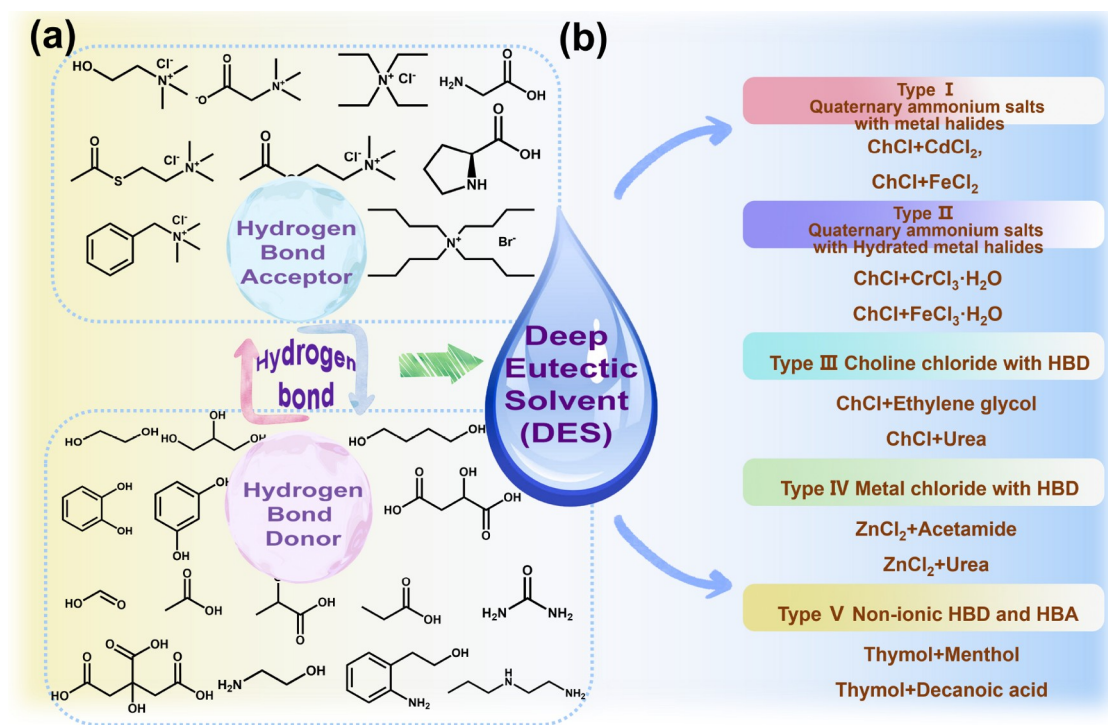


图 1 (网络版彩图) DES的组成(a)与分类(b)

Figure 1 (Color online) Composition (a) and classification (b) of DES.

统离子液体相比, 它们具有挥发性低、无毒、可生物降解、不可燃性和化学稳定性等优点^[31~33]. 熔点是DES的重要性质, 其特点为DES熔点显著低于每个原料组分的熔点, 多在 -70°C ~ 150°C 之间, 主要受氢键受体与供体的类型、配比、分子间相互作用决定^[34]. 当氢键供体与氢键受体混合后, 分子之间形成氢键, 破坏了原有晶体结构, 形成无序液态体系^[35,36], 大幅降低熔点. 此外, 有研究表明, DES的熔点受离子对称性影响, 随着结构对称性降低, 熔点会按照 $\text{F}^- > \text{NO}_3^- > \text{Cl}^- > \text{BF}_4^-$ 顺序依次降低, 由于阴离子与氢键供体形成的氢键键能越强, 熔点越低^[18]. 此外, DES具有与离子液体相当的电导率, 通常在 $0.1 \sim 100 \text{ mS cm}^{-1}$ 之间. DES的黏度通常在 $10 \sim 5000 \text{ cP}$ ($1 \text{ cP} = 10^{-3} \text{ Pa s}$), 且易受温度影响^[37].

尽管DES作为一种新型绿色溶剂在化妆品、电沉积、生物质、 CO_2 捕获、分离和提取工艺、合成、生物催化等方面的研究显示出一定的应用潜力^[38,39], 但液态形式的DES已难以满足其对结构稳定性、可加工性及与器件结构兼容性的需求. 例如, 液态DES易泄漏、形态不可控, 这使其在柔性电子的封装、成型及

复杂形变应用中受限. 因此, 为突破这一瓶颈, 通过针对性功能化设计构建多样化形态载体, 已成为拓展DES应用边界的关键方向. DES研究已从基础溶剂性质探索迈向多功能化、智能化设计, 并在绿色化学、能源存储、生物医药等领域实现突破. 其中, 具有三维交联网络结构的共晶凝胶, 因能在保留DES本征优势(如高离子电导率、环境友好性)的同时, 赋予材料稳定形态、优异机械性能及可定制化的宏观结构, 成为适配柔性电子需求的重要形态载体, 也成为当前DES功能化研究的核心方向之一.

2.2 共晶凝胶基体框架

2.2.1 合成高分子框架

共晶凝胶是一种新型功能材料, 其由DES与高分子聚合物复合而成. 共晶凝胶基体的构成可分为两类, 其中合成高分子基包括: 聚丙烯酰胺(PAAM)、聚丙烯酸(PAA)、聚偏氟乙烯(PVDF)、聚偏氟乙烯-六氟丙烯(PVDF-HFP)以及水性聚氨酯(WPU)等, 作为共晶凝胶的基体框架结构可以实现共晶凝胶在柔性电子领域的应用^[40]. 例如, Li等^[41]通过在紫外光下采用原位聚合

方法, 将含有高浓度 ZnCl_2 的DES固定到PAAM基质中(图2a), 所制备的共晶凝胶电解质(DA-ETG)表现出优异的机械性能, 抗拉强度为0.6 MPa, DA-ETG电解质在全固态锌离子电池组装中的原位聚合增加了电极-电解质界面面积的接触, 减少了电极和电解质之间的离子传输距离, 最小化了内阻, 并增强了电池的性能. Huang等^[42]将PAA直接分散在第四类DES中(图2b), 制备的可拉伸且导电的共晶凝胶表现出优异的拉伸性($\sim 1500\%$)和电导率($\sim 7.69 \text{ mS cm}^{-1}$). 此外, PVDF-HFP也可用于构建共晶凝胶, 主要通过聚合物链和活性离子之间的高度可逆离子-偶极相互作用. Li等^[43]将N-甲基乙酰胺(NMAC)和双(三氟甲基)磺酰基砵亚胺锂(LiTFSI)以4:1的摩尔比混合来制备DES. 后按照70 wt%比例与PVDF-HFP混合形成共晶凝胶(ETG), ETG可作为锂电池固态电解质. Deshmukh等^[44]将DES与硅胶和PVDF-HFP以不同的比例组合而成, 并将其作为储能装置的电解质, 辅助分子动力学模拟有助于识别凝胶电解质中锂离子的行为(图2c), 促进其在储能设备中的应用. Ouyang团队^[45]开发了一种由WPU作为聚合物框架, 与ChCl和乙二醇(EG)制成的DES共混制备共晶凝胶(图2d), 其具有高热电性能和机械性能. Hao等^[46]使用WPU、P(AAm-AA)和由ChCl作为氢键受体EG作为氢键供体构成的DES混合, 通过分子内氢键、分子间氢键以及超分子相互作用成功制备共晶凝胶(图2e).

然而, 目前此类共晶凝胶主要由化石类化学品合成的高分子聚合物构建, 这将使其面临由于使用石油基化学品引起的环境和生态问题^[47]. 为了应对这些挑战, 利用可再生资源开发环境友好型共晶凝胶, 已成为柔性电子领域发展的必然趋势.

2.2.2 生物质基高分子框架

生物质作为全球储量最丰富的可再生资源, 其显著优势在于分布广泛且种类繁多. 以纤维素、壳聚糖、琼脂糖等为代表的天然高分子材料, 凭借优异的生物相容性、环保性等特性, 已成为开发绿色共晶凝胶体系的重要基础原料. Chen等^[48]在金属盐和DES系统中引入羟丙基壳聚糖(HPCS) (图3a), 由于导电共晶凝胶网络中富含氢键, 为离子迁移提供传输通道, 该材料表现出优异的导电性(80 mS cm^{-1}). 值得注意的是, 纤维素因其独特的分子构型和良好的界面亲和性, 在

共晶凝胶制备领域展现出独特优势. 例如, Cheng等^[49]在甘油/氯化胆碱/氯化铝六水合物(Gly/ChCl/ $\text{AlCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$)金属基DES体系中, Al^{3+} 与木质素的儿茶酚胺基团相互作用, 通过自催化方法开发了一种基于木质素纳米纤维素(LCNFs)的共晶凝胶电解质(图3b). Bai等^[50]采用氯化锌(ZnCl_2)作为氢键受体, 乳酸(LA)作为氢键供体, 设计了一种无机盐基DES. 使用DES从杨木锯末中提取木质素, 然后将聚乙烯醇(PVA)添加到DES/木质素混合溶液中以获得共晶凝胶(图3c). Shu等^[51]在室温下将纤维素溶解在三元DES (ZnCl_2 /水/柠檬酸)中, 引入另一种可聚合的DES (ZnCl_2 /AA)制备具有多个交联氢键的共晶凝胶(图3d). Mota-Morales团队^[52]通过将DES电解质与表面富含羧基与磺酸基的纤维素纳米晶(CNC)相结合, 开发出具有高拉伸性以及优异的化学和热稳定性的瞬态离子导体(图3e). Liu等^[53]利用小麦秸秆(WS)中提取的含木质素纳米纤维素晶(LCNC)作为交联剂, 与DES共混制备共晶凝胶(图3f), 该凝胶具有多孔结构、良好的力学性能和导电性能、快速自修复性能等优点. 这些研究不仅加深了对生物质与DES协同作用机理的理解, 更为构建高性能、可持续的共晶凝胶功能材料体系开辟了新路径.

3 共晶凝胶的构筑及功能化设计

3.1 共晶凝胶构筑基础路线

共晶凝胶建构策略主要可以分为以下三种类型^[54,55]. 第一类: 利用DES作为溶剂, 引入聚合物或聚合单体以形成凝胶^[56]. 例如, Wang等^[57]将PVA溶解在ChCl基DES中, 获得的DES/PVA/纳米纤维素晶(CNCs)/氯化碳($\text{g-C}_3\text{N}_4$)凝胶具有出色的机械性能, 所制备的共晶凝胶具有作为人体运动传感器的潜力. Pang等^[58]使用EG作氢键供体, ZnCl_2 作为氢键受体, 并将水溶性醋酸纤维素(WSCA)、丙烯酸(AA)等材料添加到DES溶剂中(图4a1), 通过WSCA和AA链之间的氢键作用, 使所得的凝胶具有优异的机械性能. Xing等^[59]将合成的ChCl基DES与NAGA通过一步原位光聚合合法, 在此过程中不使用交联剂, 所得的聚(N-丙烯酰胺甘氨酸胺)(PNAGA)共晶凝胶可根据DES浓度来调节力学性能(图4a2), 同时具有高电导率(2 mS cm^{-1})、自修复能力以及良好的抗干燥和抗冻性能. Lian团队^[60]使用ChCl-Gly DES通过与不同单体丙烯酰胺(AM)、

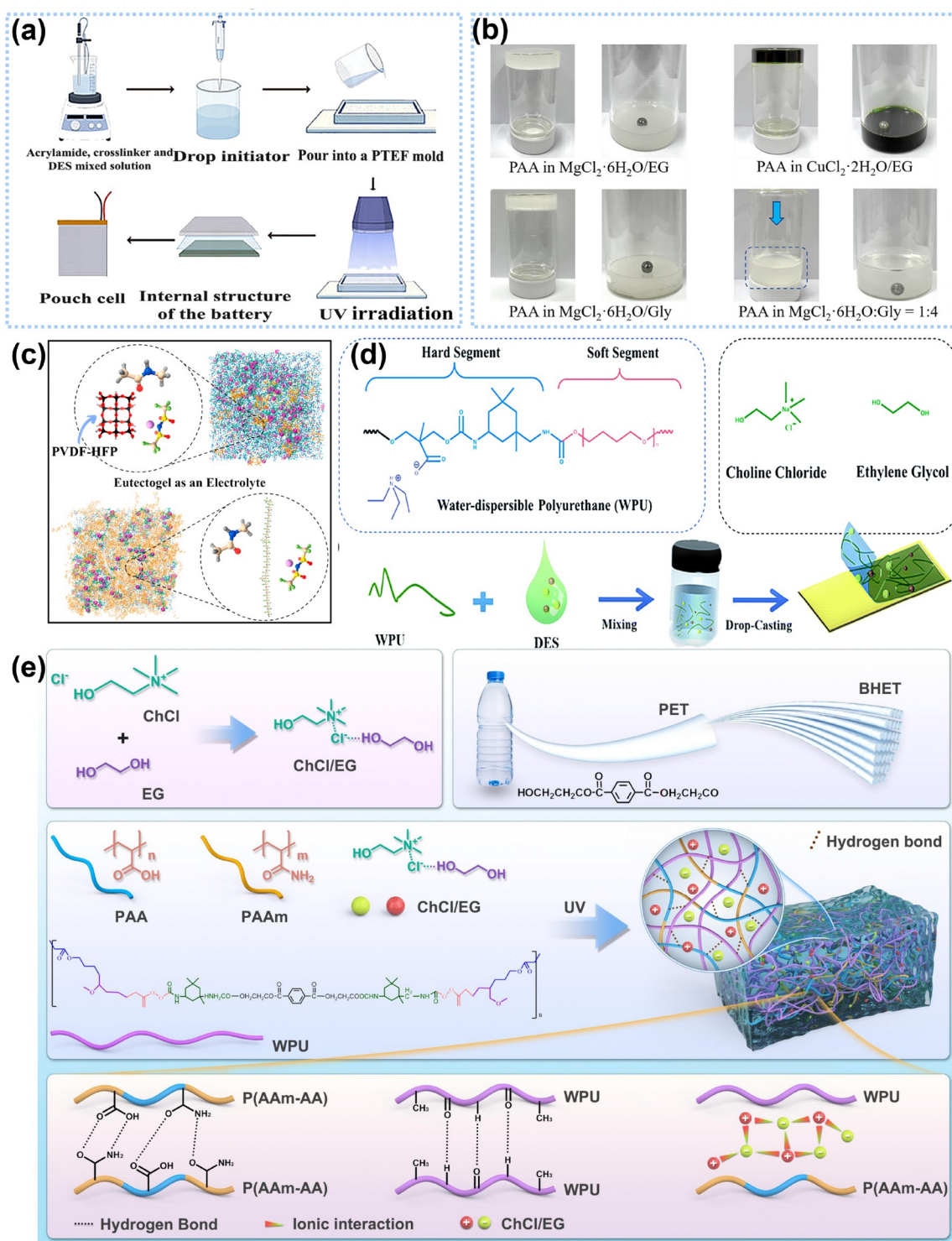


图 2 (网络版彩图) (a) PAAM 基共晶凝胶制备流程^[41]; (b) PAA 基共晶凝胶制备实物图^[42]; (c) PVDF-HFP 基共晶凝胶分子结构^[44]; (d) WPU 基共晶凝胶制备与组成^[45]; (e) WPU、PAA、PAAM 基共晶凝胶制备与组成^[46]

Figure 2 (Color online) (a) Preparation process of PAAM-based eutogel^[41]; (b) physical diagram of PAA-based eutogel preparation^[42]; (c) molecular composition of PVDF-HFP-based eutogel^[44]; (d) preparation and composition of WPU-based eutogel^[45]; (e) preparation and composition of WPU, PAA, and PAAM-based eutogel^[46].

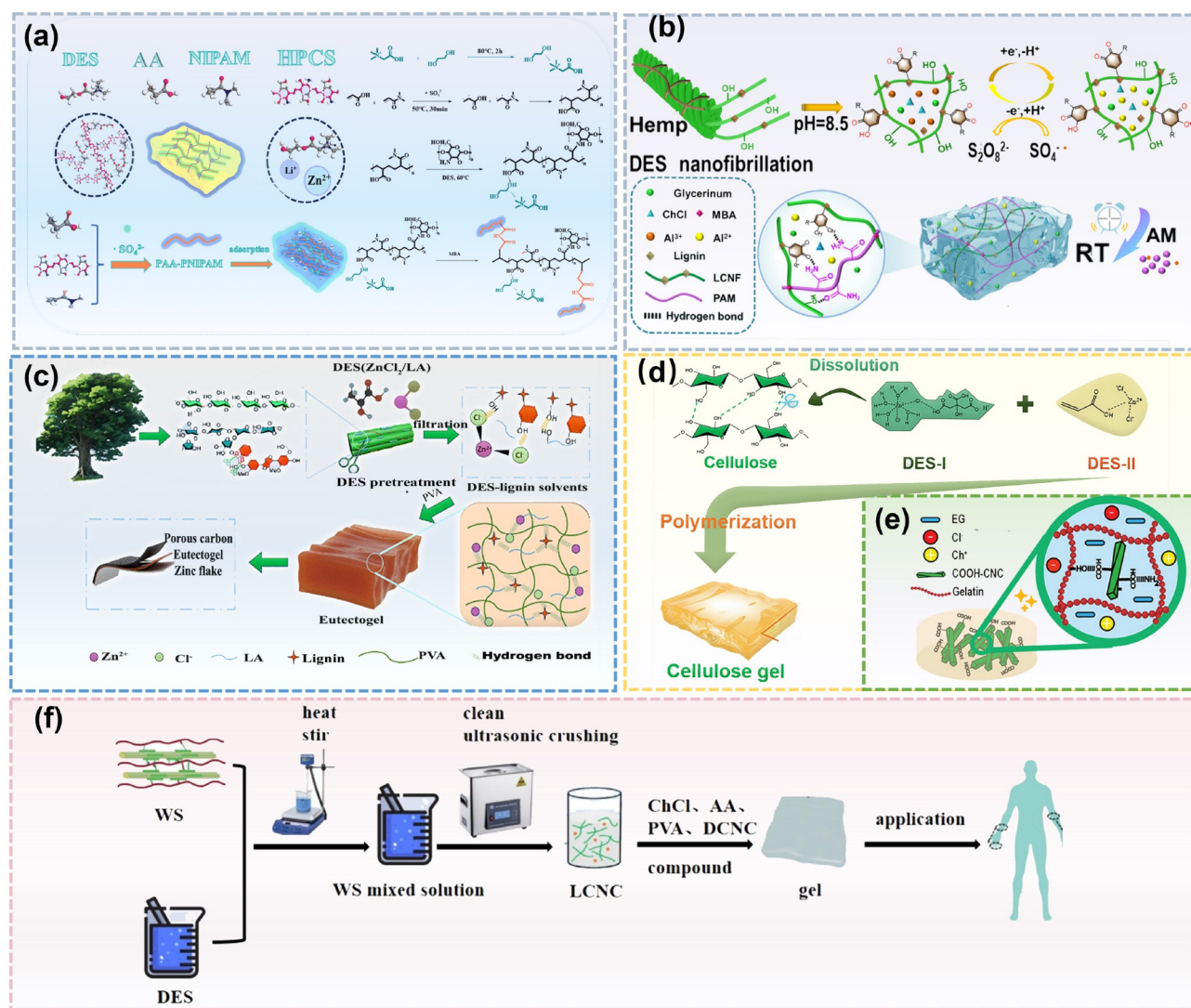


图3 (网络版彩图) (a) HPCS基共晶凝胶制备^[48]; (b) LCNF基共晶凝胶制备^[49]; (c) 木质素基DES凝胶电解质制备^[50]; (d) 纤维素基共晶凝胶制备^[51]; (e) CNC基共晶凝胶制备^[52]; (f) WS基共晶凝胶制备^[53]

Figure 3 (Color online) (a) Preparation of HPCS-based eutectogel [48]; (b) preparation of LCNF-based DES eutectogel [49]; (c) preparation of lignin-based DES gel electrolyte [50]; (d) preparation of cellulose-based eutectogel [51]; (e) preparation of CNC-based eutectogel [52]; (f) preparation of WS-based eutectogel [53].

AA和衣康酸(IA)来构建具有不同性质和功能共晶凝胶(图4a3)。同时利用密度泛函理论和分子动力学模拟,从多个角度揭示了PAM-ChCl-Gly共晶凝胶的快速凝胶化机理,并将其应用于柔性传感。该方法主要优势在于制备过程简便,但是需考虑原料与DES之间相容性问题,这很大程度上限制了其应用范围。

第二类将聚合物单体转化为DES,然后引发聚合反应形成凝胶,其中一种或多种聚合单体充当氢键供体;DES单体(DEMs)的概念最早由Isik等^[61]于2016年

提出,他利用季铵盐作为氢键受体和各种氢键供体(柠檬酸、对苯二甲酸和氯胺酮)来制备共晶凝胶(图4b1),这种简单且具有成本效益的方法,近年来吸引了大量的研究兴趣。Lin等^[62]将ChCl作为氢键受体,AA作为氢键供体构建的二元DES,通过光引发聚合反应制备的聚DES(PDES)(图4b2),研究表明通过改变直接配位形成氢键的阴离子,会导致其氢键相互作用能发生相应的改变,从而影响C=C双键活性。同样,当弱配位阳离子发生改变时,阳离子体积变化产生的空间效

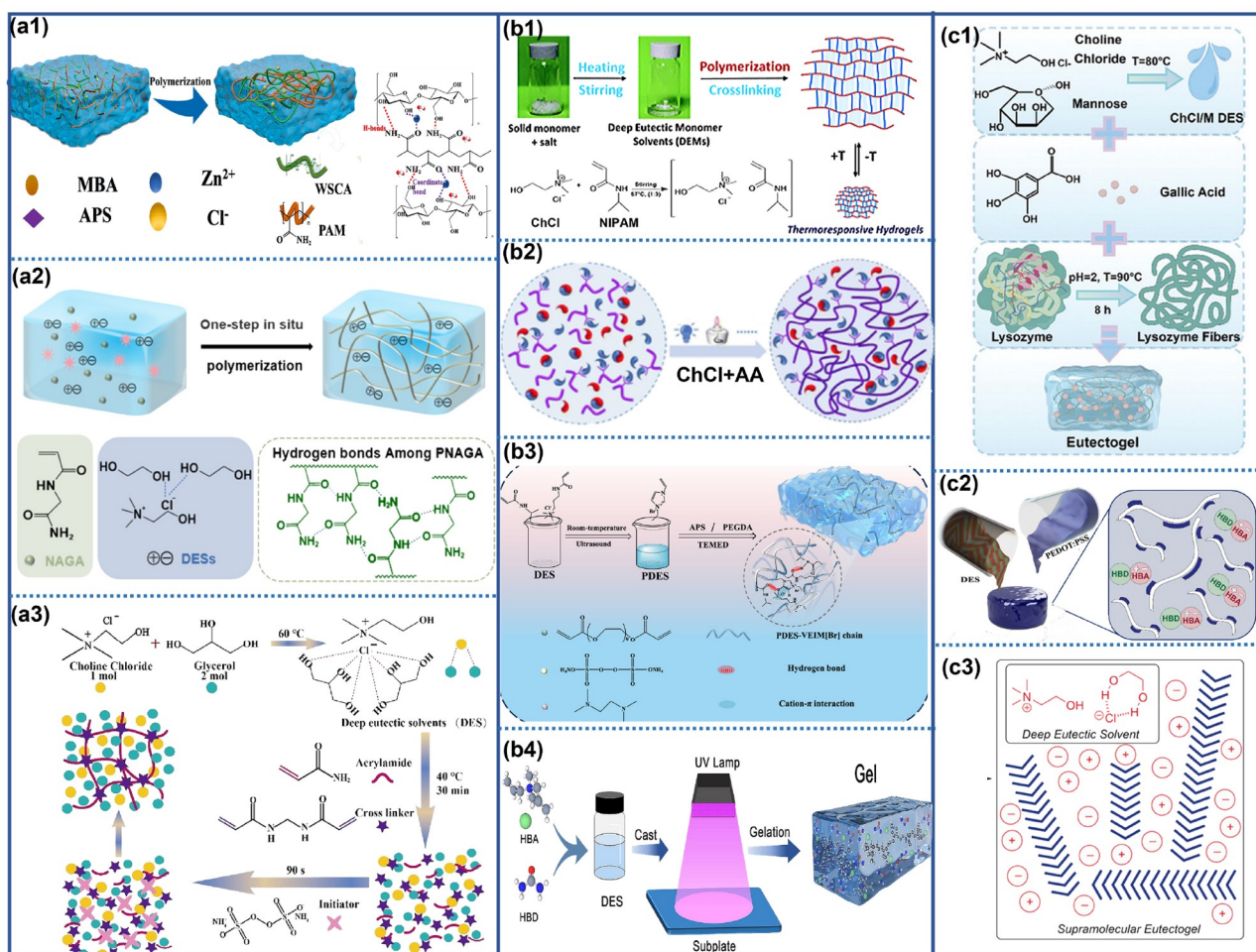


图 4 (网络版彩图) (a1) EG/ZnCl₂为溶剂制备共晶凝胶^[58]; (a2) DES为溶剂制备PNAGA基共晶凝胶^[59]; (a3) ChCl/Gly为溶剂制备共晶凝胶^[60]; (b1) ChCl基可聚合DES制备共晶凝胶^[61]; (b2) ChCl/AA光引发聚合制备共晶凝胶^[62]; (b3) ChCl/AM热引发聚合制备共晶凝胶^[63]; (b4) 可聚合氢键受体与urea光引发聚合制备共晶凝胶^[64]; (c1) ChCl/M-DES自组装制备超分子共晶凝胶^[67]; (c2) DES/(PEDOT:PSS)作为3D打印油墨制备超分子共晶凝胶^[68]; (c3) ChCl/DBS自组装制备超分子共晶凝胶^[69]。

Figure 4 (Color online) (a1) Eutectogel prepared using EG/ZnCl₂ as the solvent [58]; (a2) PNAGA-based eutectogel prepared using a DES as the solvent [59]; (a3) eutectogel prepared using ChCl/Gly as the solvent [60]; (b1) eutectogel prepared from a polymerizable DES based on ChCl [61]; (b2) eutectogel prepared via photo-initiated polymerization of ChCl/AA [62]; (b3) eutectogel prepared via thermal-initiated polymerization of ChCl/AM [63]; (b4) eutectogel prepared via photo-initiated polymerization of a polymerizable hydrogen bond acceptor and urea [64]; (c1) supramolecular eutectogel prepared via self-assembly of ChCl/M-DES [67]; (c2) supramolecular eutectogel prepared using a DES/(PEDOT:PSS) mixture as a three-dimensional (3D) printing ink [68]; (c3) supramolecular eutectogel prepared via self-assembly of ChCl/DBS [69].

应与氢键相互作用, 会改变PDES内部的氢键相互作用能, 从而影响聚合动力学。Kong等^[63]引入含有双键的氢键供体构建可聚合的DES溶液与离子液体共混, 原位加热制备了共晶凝胶(图4b3), 表现出良好的机械性能、黏附力以及优异的热电转换和热电响应性能。Chang等^[64]将无水二烯丙基二甲基氯化铵(DMDAAC)和urea混合, 合成了具有广泛溶解度的可聚合DES, 在光引发时聚合形成多功能共晶凝胶(图4b4)。Deng团队^[65]将ChCl、AA与不同质量分数的水混合, 通过加

入PVA与光引发剂构建出PDES弹性体。该方法通常无需复杂纯化步骤, 仅需将氢键供体聚合物与受体按特定比例均匀混合, 在适中温度(通常为60℃~80℃)下搅拌至形成均一透明的液体即可。该过程无需溶剂参与, 避免了挥发性有机溶剂的使用与后续去除的难题, 符合绿色化学原则。但其高黏度导致的低电导率、机械与电化学性能的权衡, 以及长期稳定性等核心弊端, 是其从实验室走向实际应用必须跨越的障碍。

第三类超分子共晶凝胶是一类新兴的柔性材料,

通过小分子化合物在DES中基于可逆非共价键相互作用自组装形成。这类材料为在无水或疏水介质中构建功能性超分子凝胶提供了新的研究方向,并展现出优异的性能,如热稳定性、力学稳定性、抗冻性、抗溶胀性。凭借这些特性,超分子共晶凝胶在柔性电致变色器件、环境保护、生物医学工程以及废水处理等领域具有广泛的应用前景。Zhang等^[66]通过疏辛酸在可聚合疏水性DES中原位开环聚合制备了一种新型超分子共晶凝胶,通过疏水相互作用和多重动态相互作用使超分子共晶凝胶表现出高光学透明度、极高的拉伸性和自修复性。Cheng等^[67]将由ChCl和甘露糖构成的DES (ChCl/M-DES)、没食子酸(GA)和溶菌酶纤维(FLy)的自组装制备了一种可注射的共晶凝胶并用于牙周炎的治疗(图4c1)。Aguzin等^[68]将DES与离子液体聚(3,4-乙烯二氧噻吩)/聚(苯乙烯磺酸) (PEDOT:PSS)混合,通过氢键与静电相互作用形成了一系列自组装共晶凝胶(图4c2),可作为3D打印油墨,应用于柔性生物电子领域。Ruiz-Olles等^[69]基于ChCl与一系列氢键供体(如醇类或urea)以1:2的摩尔比混合而成,加入1,3,2,4-二苄叉山梨醇(DBS)采用加热/冷却循环方式促进DBS的溶解,通过分子间的非共价相互作用成功制备出一系列DES超分子凝胶(图4c3)。Gu等^[70]利用天然鸟苷和H₃BO₃的配合物在ChCl/丙二醇(MPG) DES中显示出优异的胶凝能力,制备的超分子共晶凝胶显示溶剂诱导的手性倒置和极高的离子电导率(高达7.78 mS cm⁻¹),以及出色的触变性/可注射性能、高热稳定性和出色的电致变色活性。Zhang等^[71]开发了一系列D-葡萄糖缩醛凝胶剂(Dan),它们在基于ChCl和多元醇或urea的DES中表现出优异的凝胶能力,所构建的超分子共晶凝胶可在导电材料和界面润滑方面应用。超分子共晶凝胶在无水介质中能够保持良好的功能性,如优异的耐温性。然而,由于其结构依赖于氢键等非共价相互作用的自主装,这类凝胶本质上机械强度较低,难以维持稳定的动态力学性能。

鉴于柔性传感、能源存储与生物医学等应用领域对材料性能存在显著差异化需求。例如,柔性传感依赖材料的高拉伸性与信号灵敏度,能源转换存储追求高离子电导率与宽电化学窗口,而生物医学应用则强调优异的生物相容性与降解可控。共晶凝胶作为新兴多功能材料,必须依据具体应用场景开展精准的性能设计。然而,当前已报道的共晶凝胶在温度、湿度波动

等复杂环境下的长期稳定性仍显不足,功能集成度较低,难以支撑跨场景协同应用。因此,在深入理解其氢键网络、组分-结构-性能间关系的基础上,进一步拓展共晶凝胶的功能化应用边界,已成为推动该领域向前发展的关键路径。

3.2 共晶凝胶的性能调控

为拓展共晶凝胶在传感、能源存储、生物医学等领域的应用范围,按需对共晶凝胶进行功能化设计,通过物理、化学方法调控其组成、结构和性能,显著提升共晶凝胶的环境适应性、功能多样性和实际应用价值。目前主要的改性策略可分为以下两类。

物理改性法主要通过反复冻融、溶剂置换、蒸发诱导等手段,通过调控共晶凝胶内部的分子间作用力对凝胶三维网络结构的精准设计,最终实现材料机电性能的定向提升。Shao等^[72]使用蒸发诱导限制策略,将植酸(PA)与ChCl组成的DES封装在PVA网络开发多功能共晶凝胶(PETG)。通过实验验证和模拟计算表明,PA与PVA形成高密度动态氢键,这导致具有无法检测到的晶体区域的多重氢键屏蔽非晶网络(MHSN),从而促进离子迁移以确保高离子电导率。Zhang等^[73]利用PVA在水中和DESs中的溶解性差异,提出了一种简单而通用的溶剂置换方法来调节溶剂-聚合物相互作用,通过“聚合物解离”与“网络重建”优化以制备强韧的共晶凝胶。该凝胶的韧性可高达62.7 MJ m⁻³,抗拉强度高达20.0 MPa。Du等^[74]提出了一种通过冷冻铸造、溶剂交换和湿退火的顺序增强策略,来构建具有超韧机械性能和高离子电导率的超分子共晶凝胶,通过构建有序的离子传输通路以促进高效的离子传输。

在共晶凝胶的改性策略中,化学改性法通过定向引入功能性基团或功能性单体,借助化学键合、接枝共聚等化学反应调控凝胶体系的化学组成与网络交联状态,重构凝胶的化学结构与分子作用机制,以此实现对共晶凝胶性的显著优化与提升。例如,Zeng等^[75]通过以PAA为主要聚合物主链,甲基丙烯酸十二烷基酯/十二烷基硫酸钠(LMA/SDS)为胶束交联剂,由ChCl/原儿茶酸(PCA)/水组成的三元DES (t-DES)与交联剂共混合成共晶凝胶,由于t-DES中的强氢键网络,共晶凝胶具有理想的环境耐受性。在Mercken等^[76]选择双(三氟甲烷)磺酰亚胺钠(NaTFSI)和NMAC合成DES,后将DES封装在有机改性硅烷中合成共晶凝胶电解质。无

机主体基质的有机改性增强了共晶凝胶的柔韧性，将其杨氏模量从4.8 MPa降低到2.1 MPa，这导致电解质/电极接触得到改善，降低了电荷转移电阻。Wu等^[77]将由支化聚丙烯酸(PAA)和单乙醇胺(MEA)组成的静电驱动超分子网络集成到具有壳聚糖季铵盐(CQS)的DES中，合成可降解的共晶凝胶，通过动态和可逆的超分子相互作用不仅显著增强了PAA/MEA/CQS共晶凝胶的机械性能，而且能够实现快速降解。Pei等^[78]报道了一种基于Li-N相互作用诱导的1,2-二甲基咪唑(DMIm)基共晶凝胶聚合物电解质，该电解质在加入给电子的DMIm后能够有效解离LiTFSI，形成DES电解质(DEE)。进一步引入吸电子的聚偏二氟乙烯(PVDF)聚合物，不仅改变了Li⁺离子的配位环境，还显著提高了其迁移率和电解质与锂金属负极之间的界面稳定性。Wang等^[79]将LiCl和ZnCl₂被用作氢键受体，EG作为DES的氢键供体。然后将PVA溶解在DES中，通过组分之间的多氢键以及金属离子和PVA分子之间的配位键形成共晶凝胶，所制备的共晶凝胶具有高强度、高导电性和优异的抗冻性。

基于上述改性策略，为进一步提升共晶凝胶的导电性、机械性能和扩展凝胶的功能化应用范围，通常会引入功能分子，或改变凝胶建构策略，使得DES在复合凝胶中不仅作为液体组分，还通过其高电导率和低蒸气压特性，为凝胶提供离子导电性和氢键增韧作用，对于共晶凝胶的功能性提升主要分为以下四个部

分：提升其离子电导率、优化其机械性能、赋予其自愈性和探究其生物相容性与抗菌性(表1)。

导电凝胶具有良好的导电性和柔韧性，在人工皮肤、植入式电子、运动传感和储能器件等领域引起了广泛关注。对于共晶凝胶而言，其电导率的增强效果主要取决于体系中可移动离子的浓度及其迁移速率^[88]。为提高电导率，一方面，可通过构建有序的离子传输通道，降低离子迁移能垒，从而促进离子高效传输；另一方面，可通过调控离子传输介质的理化性质(如亲离子性、结构有序度等)，在提高离子迁移率的同时增加有效离子浓度，实现电导率的协同提升^[89]。Ma等^[90]制备的具有双离子通道(PSDIC-gel)的相分离共晶凝胶，通过混合亲水/疏水可聚合的DES，通过聚合诱导的相分离自发形成双离子通道(图5a1)。含有Li⁺通道的亲水PAA相富含氢键和离子偶极相互作用，可提供机械强度和导电性。Liu等^[99]将阳离子CQS均匀嵌入共晶凝胶的三维多孔框架中，以构建离子迁移通道，使该凝胶获得优异的电导率(~4.0 mS cm⁻¹)。Li等^[91]提出了一种多动态氢键相互作用策略来制备由衣康酸/ChCl DESs (IA-DESs)和乳酸/ChCl DESs (LA-DESs)组成的多功能生物物质共晶凝胶。LA-DESs的引入可以为共晶凝胶提供多种氢键相互作用，并从解离的阳离子和阴离子中获得足够的移动电荷，从而提高共晶凝胶的机械性能和离子电导率(图5a2)。Huang等^[100]分别在共晶凝胶中引入海藻酸钠(SA)与PVA构建的双网络共晶凝胶，

表 1 不同制备方法共晶凝胶重要性质总结及应用领域

Table 1 Summary of important properties and application fields of eutectic gels prepared by different methods

构筑方法	共晶凝胶体系 ^{a)}	电导率 (mS cm ⁻¹)	断裂伸长率 (%)	抗拉强度 (MPa)	自愈性	生物相容性	应用领域
DES作为溶剂	AMCl/EG-PAA/DMAPS ^[80]	15.7	220	0.051	有	—	能源储存与转化
	ChCl/EG-P(NAM-HEMA) ^[81]	78.0	648	0.938	无	—	柔性传感
	ZnCl ₂ /H ₂ O/H ₃ PO ₄ -Cellulose-PAM ^[82]	16.4	4086	0.099	有	—	柔性传感
PDES共晶凝胶	ChCl/HEAA-AM-PA _{10%} ^[83]	0.18	1518	1.99	有	—	柔性传感
	DLPD ^[84]	7.2	2860	0.090	有	有	柔性传感
	GLCL ^[85]	—	>300	1.53	有(84.7%)	—	能源转化
超分子作用 共晶凝胶	PNCMA ^[86]	—	>300	12.9	—	—	柔性传感
	DES/Fly/GA ^[67]	—	—	—	可注射性	有	药物递送
	SP-DN ^[87]	0.57	>4000	0.200	有	—	柔性传感
	DES/DBS ^[69]	10	—	—	—	—	—

a) 氯化铵/乙二醇-聚丙烯酸/3-磺丙基十四烷基二甲基铵(AMCl/EG-PAA/DMAPS); N-丙烯酰胺-甲基丙烯酸羟乙酯(NAM-HEMA); N-(2-羟乙基)丙烯酰胺(HEAA); 聚(N-氰甲基丙烯酸胺) (PNCMA)。

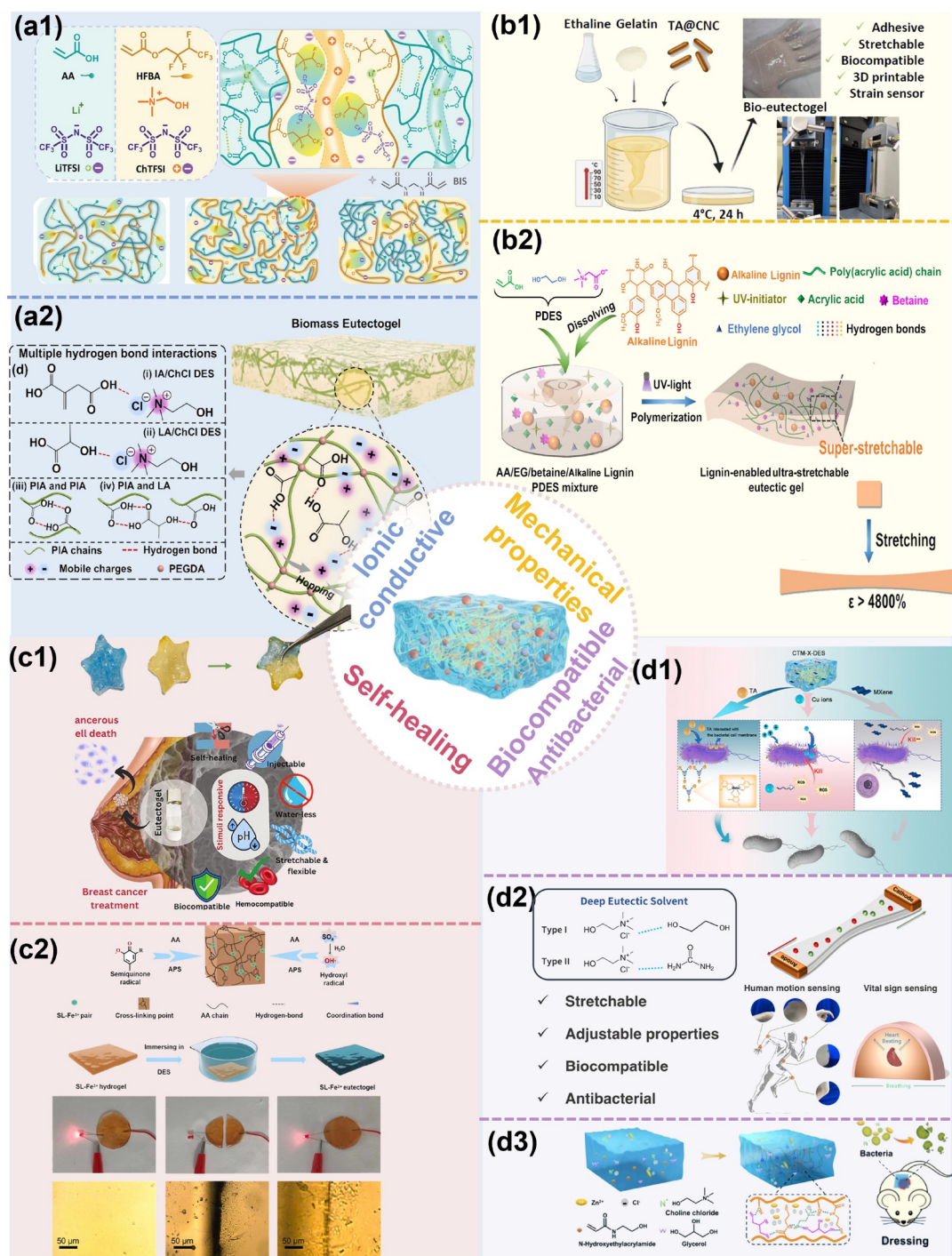


图 5 (网络版彩图) (a1) PSDIC-gel导电凝胶双离子通道^[90]; (a2) LA-DES凝胶增强导电性示意图^[91]; (b1) TA@CNC基共晶凝胶增强机械性能^[92]; (b2) PDES超柔性共晶凝胶^[93]; (c1) 咪唑基DES凝胶自修复过程^[94]; (c2) 磺化木质素基共晶凝胶制备及自修复过程^[95]; (d1) CTM-DES凝胶抗菌机制^[96]; (d2) 二元DES凝胶抗菌性与生物相容性^[97]; (d3) 锌离子基共晶凝胶抗菌性^[98]

Figure 5 (Color online) (a1) PSDIC-gel exhibits dual-ion conductive channels ^[90]; (a2) LA-DES eutectogels show enhanced conductivity ^[91]; (b1) TA@CNC-based eutectogels achieve mechanical reinforcement ^[92]; (b2) PDES eutectogels display ultra-flexible properties ^[93]; (c1) imidazole-based eutectogels illustrate self-healing capability ^[94]; (c2) sulfonated lignin-based eutectogels exhibit both preparation process and self-healing behavior ^[95]; (d1) CTM-DES eutectogels reveal antibacterial mechanism ^[96]; (d2) binary DES gels demonstrate antibacterial properties and biocompatibility ^[97]; (d3) zinc ion-based eutectogels show significant antibacterial performance ^[98].

由于SA表面含有丰富的-COO-在离子传输中发挥了积极作用, 离子电导率(3.0 mS cm^{-1})相较添加前提高了5倍.

与传统水凝胶相比, 共晶凝胶在机械性能方面展现出显著优势, 这主要得益于其独特的微观结构以及和DES之间的相互作用, 从而实现多因素、可微调的力学调控, 具体来说, 共晶凝胶的力学增强效果主要受聚合物网络的交联密度、分子链间作用力以及能量耗散机制的影响^[101]. 为实现机械性能的优化, 可通过构建双网络、引入纳米复合结构或设计拓扑纠缠网络, 增强材料的结构稳定性与抗变形能力; 此外, 通过调控聚合物链的刚性、动态键含量及界面相互作用, 同步实现高强度与高韧性的协同提升. Mercadal等^[92]将单宁酸(TA)修饰的纤维素纳米晶(TA@CNC)与明胶和由ChCl和EG共混后, 所制备的共晶凝胶拉伸强度与断裂伸长率相比不添加TA@CNC时增加了两倍(图5b1). Zhang等^[102]通过TA@CNC作为多功能氢键供体与ChCl-AA结合, 构建了PDES导电弹性体, 由于TA@CNC上刚性结晶区域的存在和足够的动态相互作用位点赋予共晶凝胶(ACTC)优异的机械性能($\sim 496 \text{ kPa}$, 2400%)、强大的附着力($\sim 68.6 \text{ kPa}$)和良好的自黏性与自愈性. Jia等^[93]通过PDES溶剂处理的木质素, 然后进行原位聚合, 制备了具有优异自黏性和高导电性的木质素支持超可拉伸共晶凝胶(LEG) (图5b2). Shen等^[103]利用DES和聚合物链(聚甲基丙烯酸PAAc与聚甲基丙烯酰胺PMAAM)之间丰富的非共价交联, 制备了一类新型共晶凝胶(图5b3). 液体含量超过60 wt%的共晶凝胶表现出高杨氏模量($\sim 655 \text{ MPa}$)、优异的断裂强度($\sim 16 \text{ MPa}$)和韧性($\sim 46 \text{ MJ m}^{-3}$).

实现材料的自修复能力是提升柔性材料耐久性与功能可靠性的重要途径之一. 共晶凝胶的自愈性能, 主要依赖于动态可逆键的存在、分子链的迁移能力以及外部刺激的响应特性. 为实现高效自愈性, 通过引入动态共价键(如亚胺键、二硫键)或超分子作用(如氢键、离子配位), 为材料提供可逆的断裂与重建机制; 同时, 通过调控聚合物链的柔顺性、相容性及界面流动性, 协同实现室温下的自发修复与力学性能的快速恢复^[104]. Parsana等^[94]通过咪唑基DES与PVA相互作用制成的共晶凝胶可作为癌症治疗的局部药物递送载体, 凝胶内部含有丰富的氢键, 氢键具有断裂后快速重整的显著特性, 从而为自修复过程提供了可能(图5c1).

Feng等^[95]利用磺化木质素(SL)和 Fe^{3+} 组成的动态氧化配位体系, 通过浸渍法构建的共晶凝胶表现出优异自修复性, 这得益于凝胶内部可逆配位键和氢键(图5c2). Lv等^[105]引入两亲性离子微球(ADM)通过解离与PDES(ChCl-PAA)相互作用, 构建动态键合的受限结构域. ADM表面和球体基质富含高极性的磺酸基团和动态电耦合的两亲离子结构, 它们形成强氢键, 并与PAA分子链的侧基发生动态分子间静电相互作用. 这赋予了受限域在材料被外力破坏时通过分子链弛豫运动重新建立超分子相互作用的动态能力, 从而使得共晶凝胶具有优异的自愈性. Vakili等^[106]通过在聚环糊精(PCD)/多巴胺接枝明胶(Gel-DOP)/氧化海藻酸钠(OSA)存在下掺入二烯丙基二甲甲基氯化铵(DADMAC)和Gly制备. 合成的共晶凝胶具有可逆的席夫基键、氢键和主客体相互作用, 可在网络中断时实现快速自愈.

共晶凝胶的生物相容性, 主要取决于溶剂组分的生物来源性、降解产物的无毒性及代谢途径, 以及材料-组织界面的免疫响应水平. 为实现优良的生物相容性, 可从两方面进行优化: 其一, 通过选择内源性或天然来源的DES组分(如胆碱类、氨基酸、有机酸等), 从源头上降低免疫原性与细胞毒性; 其二, 通过调控材料的表面化学、孔隙结构与降解动力学, 同步实现组织整合促进与炎症反应抑制的双重目标^[107]. Hu等^[108]开发了一种基于柠檬酸与甜菜碱DES系统的新型多功能共价聚合物共晶凝胶, 通过静电相互作用、氢键和范德华力赋予了凝胶优异的导电性、机械稳定性、超强的水下黏附性能、极端条件下的黏附性能和生物相容性. Xia等^[109]将黄原胶在有水环境中退火加入NADES(ChCl-木糖醇(Xyl))形成稳定的凝胶. 该凝胶表现出优异的生物相容性、可降解性与黏弹性, 在医药和食品等领域显示出巨大的应用潜力. Chen等^[96]引入了TA、Mxene分子以及铜离子, 三者协同抗菌作用, 赋予了共晶凝胶优异的抗菌性能(图5d1). Yang等^[97]制备的二元共晶凝胶与水凝胶基应变传感器相比具有卓越的机械性能、环境稳定性和抗菌性能, 优异的抗菌性能源于DES中的ChCl会解离为胆碱阳离子(Ch^+), 在酸性环境可以渗透和攻击细菌细胞膜(图5d2). Li等^[110]报道了一种新型的“水包DES”凝胶(DIWH), 无需溶剂置换, 通过原位一步凝胶化过程, 将水与DES相结合. DES中含有 Ch^+ , 赋予了DIWH优异的抗菌性能. Meng等^[98]成功合成了一种由Gly、 ZnCl_2 和ChCl组成, 并引入聚合反

应性双键, 制备了一种环保抗菌的绿色共晶凝胶, 可归因于 Zn^{2+} 提供了显著的抗菌作用(图5d3)。

共晶凝胶的功能化设计, 核心在于打破材料性能之间的传统权衡, 实现多种特性的协同增强。通过精巧的组分设计, 如引入特定氢键供/受体或功能性离子, 可在提升其离子电导率的同时, 构筑更为动态、稳定的三维网络, 从而同步增强材料的机械强度与韧性。这种基于离子传输路径与分子间作用力的协同调控, 进一步赋予了共晶凝胶卓越的自愈性能: 受损的氢键网络可在外界刺激下可逆重组, 实现结构与功能的自主恢复。此外, 得益于DES本身良好的生物相容性基础, 共晶凝胶可通过整合天然高分子或生物活性分子, 在复杂生理环境中保持优异的细胞相容性与组织亲和力, 甚至实现降解行为的精准调控。由此可见, 共晶凝胶的独特价值, 不仅在于其单一性能的优化, 更在于它能够将高电导、高机械强度、自愈性及生物相容性等多重功能一体化集成, 有望为柔性电子与生物医疗等领域开辟一条新的路径。

4 共晶凝胶应用领域

4.1 柔性传感材料

对于应变、压力等柔性传感器而言, 其性能核心在于材料如何将机械形变高效转换为电信号。该过程本质上受制于材料的微观结构: 外部拉伸通过延长离子传输路径与扰乱传导通道, 直接影响电阻变化。因此, 共晶凝胶在传感领域的优异机电性能, 源于其精心的结构设计——高电导率与高回弹性的一体化构建, 这正是实现高灵敏度、快速响应、宽工作范围与长耐久性的关键。Wei等^[111]将AA和LMA在DES与水的二元溶剂中混合, 通过一步光聚合制备了一种具有高透明度、抗冻、抗溶胀、自黏性和自修复性能的多功能共晶凝胶。通过在凝胶内部构建稳定的疏水相互作用和静电吸引力, 从而产生优异的机械性能(断裂伸长率为~2890%)和抗溶胀性能, 该应变传感器可以在低温下监测运动并传输加密信息(图6a)。此外, DES溶剂通常会赋予共晶凝胶优异的抗冻性, 可有效抑制冰晶生成, 避免凝胶结构冻融破坏, 进而维持材料的力学柔性与功能稳定性。Lin等^[112]开发了一种多功能PVA-PAA-聚多巴胺(PDA)-DES共晶凝胶, 通过 ZnCl_2 -EG共晶网络设计, 实现了-40℃抗冻、30天保水的宽

温度稳定性, 同时兼具1040%拉伸性与自修复能力。首次将该凝胶与人工智能(AI)结合, 构建了肩痛监测-光热治疗闭环系统, CNN模型识别准确率>96%, 突破了传统诊断的主观性局限(图6b)。Cao和Yuan^[83]通过简单的紫外光引发一步聚合制备了具有优异机械性能、自修复、耐环境性、可逆荧光和高导电性的共晶凝胶。丰富的氢键和多种动态相互作用使共晶凝胶具有优异的拉伸强度(1.99 MPa)、高拉伸性(>1500%)、高韧性(20.85 MJ m⁻³)、强自黏性(192 kPa)和一定的自愈性(>92%), 该凝胶可用于非接触式信息写入和传输、运动监测、无线通信和人机交互, 实现了数字和视觉信号互补、高效多功能集成的工作模式(图6c)。Yang等^[84]以二醛木聚糖/液态金属(DAX/LM)悬浮液为引发剂, 通过自由基聚合法将由ChCl与AA组成的可聚合DES制备为具有致密氢键网络的液态金属基共晶凝胶, 所得的共晶凝胶具有极高的拉伸性(2860%)、理想的自修复能力、优异的环境稳定性以及对拉伸应变($G_F = 4.08$)和温度($T_{CR} = 5.35\% \text{ K}^{-1}$)的出色响应性, 可用作人体运动识别和温度监测的多功能柔性传感器(图6d)。Wang等^[113]提出了一种基于孔-桥结构和分子-拥挤效应的协同策略制备的共晶凝胶显示出优异的环境耐受性。值得注意的是, 该凝胶具有有效的抗菌能力, 同时表现出优异的灵敏度($G_F = 4.49$), 可用于关节运动和心电图信号的监测, 以及光热治疗。Zhang等^[114]通过LMA和甲基丙烯酸缩水甘油酯(GMA)在疏水性DES中的一步聚合, 产生了一种具有优异的长期水下稳定性的疏水性共晶凝胶。疏水性凝胶网络使所制备的共晶凝胶在水性环境中具有出色的耐水和优异的机械性能(图6e)。Yao等^[86]用N-氰甲基丙烯酰胺(NCMA)与LiTFSI混合制备了超分子共晶凝胶, 聚合后的poly NCMA/LiTFSI凝胶可用于柔性应变与温度传感(图6f)。近年来, 通过构建具有优异抗疲劳性、一定黏附性和高离子电导率的共晶凝胶已在医疗健康监测、可穿戴设备和人机交互等领域展现出广阔的应用前景, 新成果的不断涌现, 推动着该领域的不断发展。

4.2 能源转化与储存

共晶凝胶与离子凝胶在物理化学性质上具有相似性, 其自身富含可自由移动的阴阳离子, 可作为高效的离子传输介质; 进一步通过将其限制在三维聚合物框架中, 实现了离子导电路径的稳定整合, “凝胶化”结

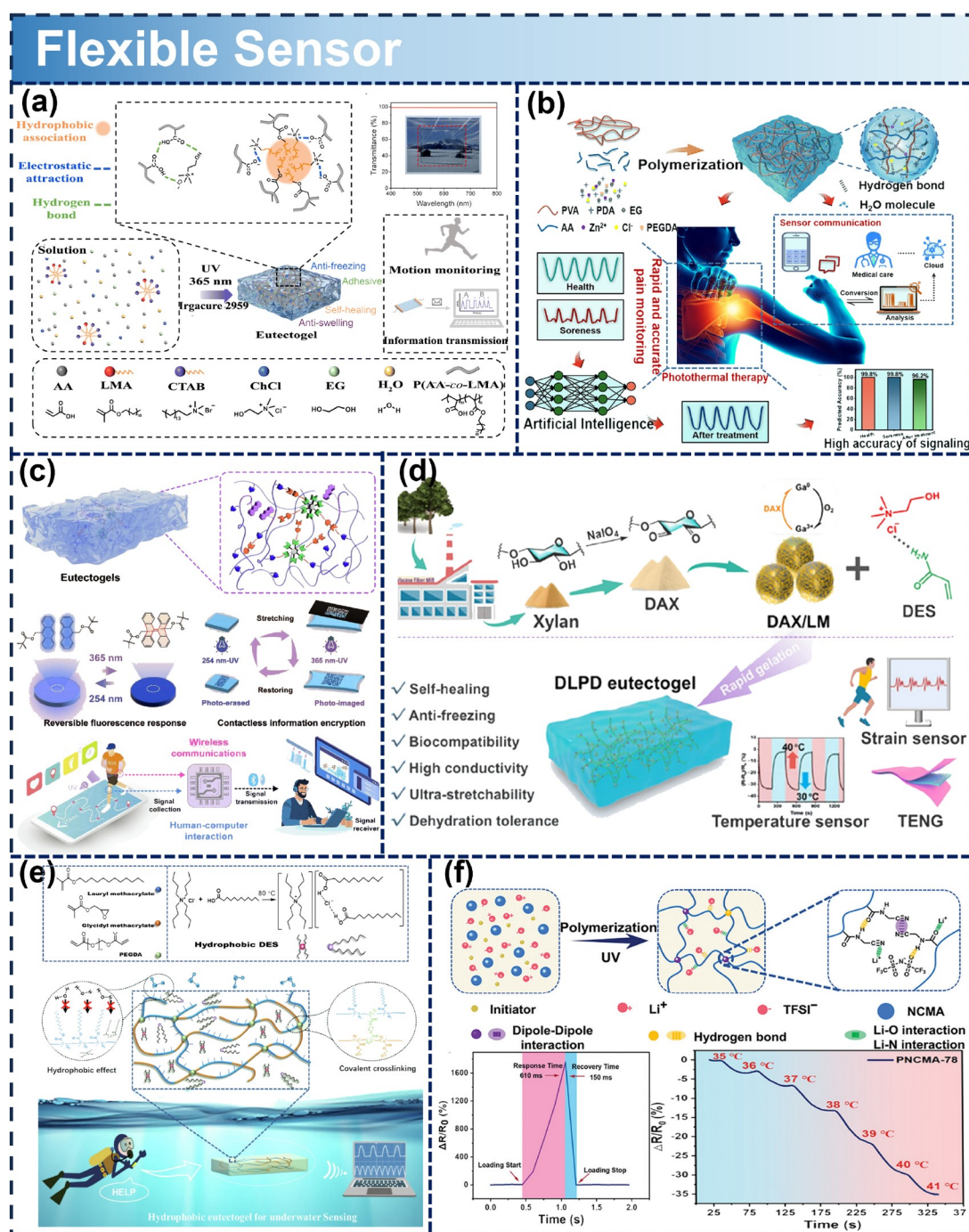


图 6 (网络版彩图) (a) P(AA-co-LMA)基共晶凝胶用于低温下监测运动并传输加密信息^[111]; (b) PVA-PAA-PDA-DES共晶凝胶与AI结合构建肩痛监测-光热治疗闭环系统^[112]; (c) 共晶凝胶用于非接触式信息写入和传输、运动监测、无线通信和人机交互^[83]; (d) DLPD共晶凝胶用于应变、温度传感^[84]; (e) 疏水性共晶凝胶用于水下运动监测^[114]; (f) poly NCMA/LiTFSI共晶凝胶用于应变、温度传感^[86]

Figure 6 (Color online) (a) P(AA-co-LMA)-based eutectogel enables motion monitoring and encrypted information transmission under cryogenic conditions ^[111]; (b) integration of PVA-PAA-PDA-DES eutectogel with AI constructs a closed-loop system for shoulder pain monitoring and photothermal therapy ^[112]; (c) eutectogel demonstrates capabilities in contactless information writing/transmission, motion monitoring, wireless communication, and human-machine interaction ^[83]; (d) DLPD eutectogel serves for strain and temperature sensing ^[84]; (e) hydrophobic eutectogel achieves underwater motion monitoring ^[114]; (f) poly NCMA/LiTFSI eutectogel functions in strain and temperature sensing applications ^[86].

构一方面赋予了材料优异的机械柔性和形状适应性, 确保了与电极之间紧密且稳定的界面接触; 另一方面, 其具备比传统水系电解液更宽的电化学窗口, 同时从根本上解决了液态电解质的泄漏问题. 在应用层面, 这种稳定的离子传导、宽电化学稳定性和优异的界面相容性, 共同促使共晶凝胶成为开发高效、安全、柔性化能量存储与转换系统的关键材料.

4.2.1 能源转化

在能源转化领域, 环保DES因其低成本、良好的溶剂化能力、高离子电导率及宽耐温性等综合优势, 被成功应用于热电(TE)材料与摩擦纳米发电机(TENG)的构筑中. 基于Soret效应, 共晶凝胶中可通过阴阳离子的解离与迁移富集实现温差发电. Chen等^[115]通过浸渍法合成的纤维素基共晶凝胶, 其中CNF/ChCl:EG-40%具有优异的Seebeck系数($\sim 17.96 \text{ mV K}^{-1}$)、极低的热导率($\sim 0.1847 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$), 说明共晶凝胶具有与传统离子凝胶相当的热电性能(图7a). 在此基础上Chen等^[96]通过引入TA、MXene纳米片与金属盐对共晶凝胶及其框架进行改性, 所制备的CTM-15-DES共晶凝胶具有优异的Seebeck系数($\sim 23.03 \text{ mV K}^{-1}$)、较高的电导率($\sim 33.90 \text{ mS cm}^{-1}$), 其热电性能与普通DES离子凝胶相比具有明显提升, 这主要归因于MXene与Cu离子通过构建新的离子传输通路, 增加了该凝胶的电导率和Seebeck系数(图7b). Wu等^[116]使用含水的DES策略开发了一种高性能低温离子热电材料, 所制备的共晶凝胶热电池Seebeck系数达到 2.06 mV K^{-1} . 将20个模块串联后, $\Delta T = 8.3 \text{ K}$ 时的电流和电压分别为 0.033 mA 和 0.33 V . 该DES凝胶热电池的抗冻能力为制造寒冷地区所需的凝胶基热电池提供了一种新策略(图7c). Chen等^[117]利用一锅法在紫外光下引发自由基聚合反应制备出PDES-MCC_x%凝胶, 其中PDES-MCC₂%凝胶具有较大的Seebeck系数($\sim 25.86 \text{ mV K}^{-1}$), 这归因于ChCl在凝胶内部可以解离 Ch^+ 与 Cl^- , Cl^- 和氢键供体结合后与纤维素构建了氢键超分子网络, 基于Soret效应, 阳离子向低温端移动, 利用温差实现热电转化, 并为柔性传感器供电. Ouyang团队^[45]开发了一种WPU和ChCl:EG制成的共晶凝胶, 其具有高热电性能和机械性能. ChCl:EG作为一种ChCl基DES, 具有高离子电导率与离子液体相似的非挥发性, 同时, 与离子液体相比具有成本低、环境

友好的优点. 该共晶凝胶在90%的相对湿度下具有 8.4 mS cm^{-1} 的高离子电导率和 $0.20 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ 的低热导率. Yang等^[80]将两性离子基团掺入共晶凝胶中, 通过解离溶剂的阳离子和阴离子, 产生充足的移动电荷, 从而产生优异的离子电导率, 成功构建了最大输出功率密度为 112 mW m^{-2} 的TENG, 该TENG也能够产生稳定的电信号, 并有效地为电子设备供电(图7d). Xu团队^[118]通过一步固化策略, 引入MXene二维纳米片制备共晶凝胶具有优异的机电性能, 组装后的TENG电子皮肤表现出高且稳定的电输出性能(开路电压($\sim 224 \text{ V}$)、短路电流($\sim 7.1 \text{ }\mu\text{A}$)和短路电荷($\sim 640 \text{ nC}$)), 同时, TENG可以点亮130个发光二极管(LED, 图7e). Sun等^[85]引入内外双重增强策略, 将GMA和DES (LA/ChCl)混合, 构建多氢键动态交联网络作为内部增强剂, 并集成了植物衍生的木质素作为外部增强剂. 值得注意的是, 所得的共晶凝胶(GLCL)表现出优异的极端环境耐受性和耐用性(图7f), 在较宽的温度范围内(-40°C ~ 100°C)和10000次重复接触分离循环中保持一致的电输出, 得益于凝胶内部构建出氢键动态交联网络. 此外, GLCL-TENG在全天候生物力学能量收集和准确的个体运动检测方面表现出色, 并可用作无线车辆控制的自供电接口.

4.2.2 能源储存

在能源储存方面, 共晶凝胶可以作为相变材料(PCM)使用, 用于热能储存, 其在热性能方面明显优于水凝胶, 主要体现在凝胶基质和DES共同决定的高热稳定性上. 它们可以在很宽的温度范围内保持其结构和性能, 并具有多因素调节的热敏性. 它们可以根据温度变化灵活调整其物理和化学性质, 从而实现更广泛的应用. 当DES处于最低共熔点温度下, 体系在相变时释放或吸收大量潜热, 同时保持整体形状不变. 这种“固-液-胶”三相结构兼具相变材料的高潜热和凝胶的形状稳定性, 避免了传统相变材料在熔融后泄漏的问题. Wang等^[119]通过结合水稻改性碳气凝胶(CA)和DES (六水合氯化镁-十二水合硫酸铝铵 $\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ - $\text{NH}_4\text{Al}(\text{SO}_4)_2 \cdot 12\text{H}_2\text{O}$)提出了新型PCM, 其储热密度可达 193.85 J g^{-1} , 该材料在不同的温度范围进行100次循环结果表明, 该材料具有优异的热循环稳定性(图8a). Xi等^[120]通过冷冻干燥和碳化过程来制备具有定向网络的多孔壳聚糖基碳气凝胶, 后在由 MgCl_2

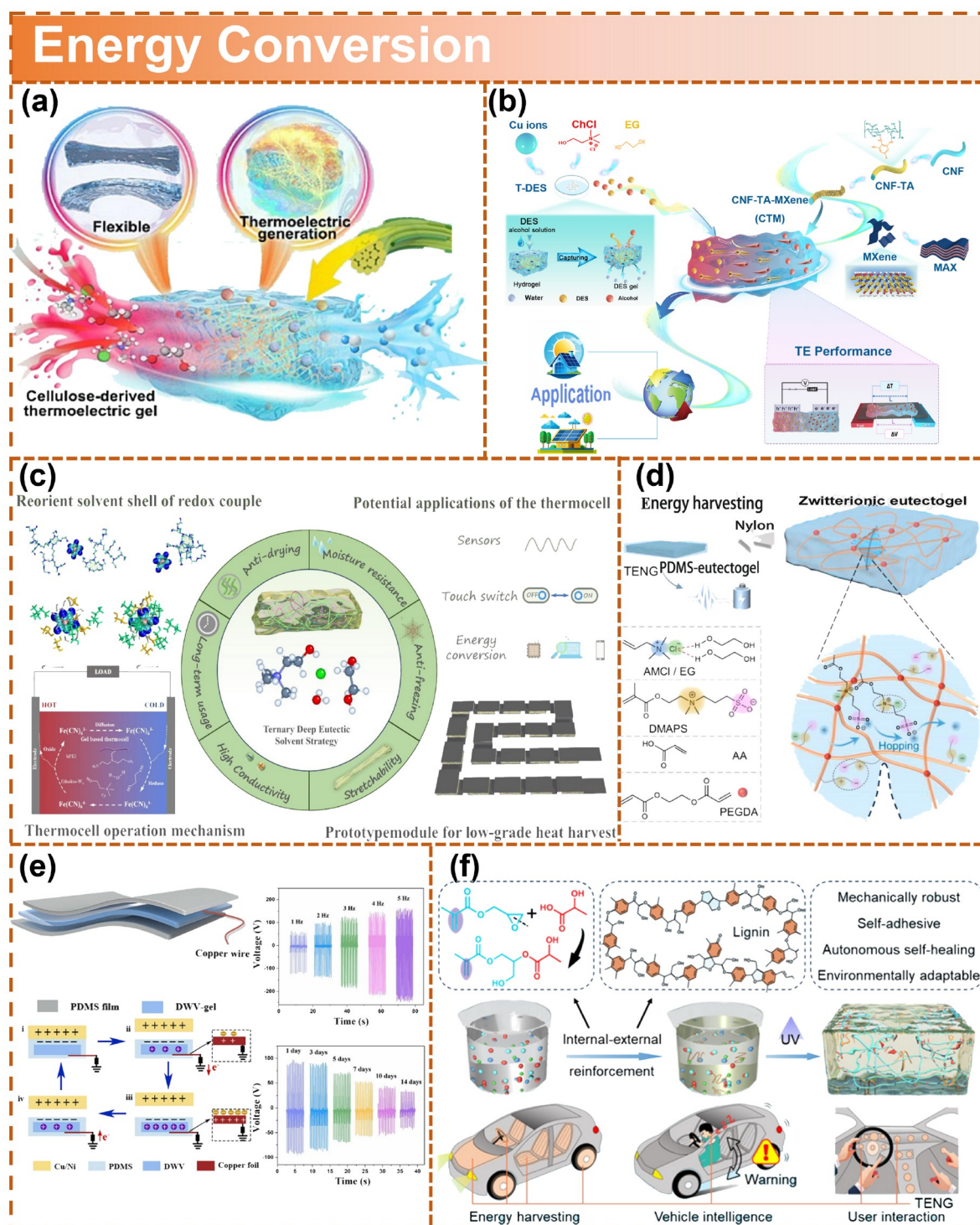


图 7 (网络版彩图) (a) CNF/DES共晶凝胶用于热电转化^[115]; (b) CTM-DES共晶凝胶用于低温余热回收^[96]; (c) 含水共晶凝胶作为离子热电池^[116]; (d) PDMS共晶凝胶用于机械能转化^[80]; (e) 定向二维纳米片共晶凝胶用于TENG^[118]; (f) GLCL共晶凝胶制备为TENG^[85]

Figure 7 (Color online) (a) CNF-DES eutectogel for thermoelectric conversion [115]; (b) CTM-DES eutectogel for low-grade waste heat recovery [96]; (c) hydrous eutectogel as ionic thermocell [116]; (d) PDMS eutectogel for mechanical energy conversion [80]; (e) aligned 2D nanosheet-enhanced eutectogel for triboelectric nanogenerator (TENG) applications [118]; (f) GLCL eutectogel fabricated as TENG device [85].

$6\text{H}_2\text{O}\cdot\text{NH}_4\text{Al}(\text{SO}_4)_2\cdot 12\text{H}_2\text{O}$ 构成的DES浸渍后所得的共晶凝胶具有 0.77 W mK^{-1} 的增强热导率和高达 214.8 J g^{-1} 的高储能密度, 同时光热转换效率高达89.5%, 为高效太阳能储存提供了一条新途径(图8b)。

电化学储能系统通常由电极材料、电解质和集流体组成。电解液作为电化学储能系统的重要组成部分, 应具有良好的电极相容性、高离子电导率和热/电化学稳定性, 共晶凝胶与水凝胶相比具有更宽电化学窗口, 与有机凝胶和传统离子相比更加经济环保, 因此共晶凝胶近年来也常被用于固态电解质, 复合成超级电容器和锌离子电池等用于电能储存^[121]。Xu等^[122]制备的PAA/DES/CNF共晶凝胶电解质在较宽的温度范围($-20\text{ }^{\circ}\text{C}\sim 60\text{ }^{\circ}\text{C}$)内表现出优异的离子电导率(45.5 mS cm^{-1})和较宽的电化学稳定性窗口($0\sim 1.6\text{ V}$)。这些增强的特性归因于CNF、PAA和DES之间的相互作用促进的动态离子传输途径。基于这些特性, 组装的超级电容器在 1 A g^{-1} 的电流密度下表现出 94.4 F g^{-1} 的高比电容, 并在机械变形和极端温度下保持超过93%的容量稳定性, 以及在5000次循环中的高电容保持率($\sim 90.1\%$) (图8c)。Li等^[123]使用DES和碱性溶液作为聚合介质设计了一种新型PAAM/PDA基共晶凝胶, 将其制备为超级电容器, 其比电容为 108.37 mF cm^{-2} , 电流密度为 1 mA cm^{-2} , 将三个模块串联得到的柔性超级电容器可以点亮LED灯泡并为定时器供电(图8d)。此外, 共晶凝胶还可以作为锂离子电池的固态电解质, 提高电池的安全性和能量密度。Liu等^[124]开发了一种新型乙酰胺(CHNO)/ $\text{ZnCl}_2/\text{H}_2\text{O}$ 三元DES, 通过将PAA聚合物网络引入DES, 采用一锅法合成了碱性凝胶电解质(命名为PAA-DES), 并将其应用于柔性锌空气电池(FZAB), 所得PAA-DES共晶凝胶表现出优异的拉伸性能和电解液保留率, 并有效抑制锌负极的枝晶生长(图8e)。Peng等^[125]将锌基DES (ZDES)与少量水结合, 加入交联剂PVA, 通过一锅法合成高度稳定的共晶凝胶电解质(PVA-ZDES)。这种凝胶电解质具有强大的物理交联网络, 并具有良好的机械性能(最大拉伸强度为 0.74 MPa)、出色的离子电导率(4.55 mS cm^{-1})、稳定的电化学窗口($\sim 2.1\text{ V}$)以及防冻和阻燃能力。基于共晶凝胶电解质组装的 $\text{Zn}||\text{PANI}$ 纽扣电池表现出卓越的循环稳定性, 在 1 A g^{-1} 下循环2000次后仍能保持79%的容量(图8f)。

共晶凝胶凭借其宽电化学窗口、高离子电导率及

卓越的机械柔性, 完美契合了高效能源器件对关键材料的核心要求。这些特性使其在构建下一代高安全、高性能的能量存储与转换系统中展现出明显的优势。

4.3 生物医学

共晶凝胶形成的三维网络结构可以限制药物分子的运动, 减少药物分子与完结环境因素接触。此外, DES的氢键供体与受体会与药物分子产生相互作用, 可以固定药物分子的构象以保证药物分子活性的保持。例如, Picchio等^[126]将THEDES固定到天然多酚动态交联的蛋白质支架中, 制备了皮肤渗透能力的共晶凝胶体系。该凝胶表现出应变硬化行为、热可逆的凝胶到溶胶转变以及优异的黏合性能, 为局部药物递送提供了新的解决方案(图9a)。DES和凝胶基质交织形成的3D网络具有不同大小的孔隙, 可以精确调节这些孔隙的大小和连通性, 从而确定药物分子从凝胶中扩散出来的速率。Meneses等^[127]将甜菜碱与Gly按摩尔比1:2混合制备NADES, 通过酶介导的交联制备共晶凝胶, 将酮洛芬负载到共晶凝胶中, 并进行释放研究。结果表明, NADES的存在对于载药凝胶的配制至关重要, 其能够在70天内释放高达10%药物(图9b)。Liu等^[128]通过优化氢供体和受体的成分和比例, 开发了一种共晶凝胶, 实现了良好的伤口止血($\sim 15\text{ s}$ 内)、伤口愈合($\sim 12\text{ d}$ 内)和监测给药性能(图9c)。此外, 在组织工程中, 共晶凝胶在组织修复和密封、组织工程材料的性能优化以及多功能应用方面发挥着独特的作用。Tian等^[129]制备的PDES通过丙烯酸酯聚合交联和二硫键交联, 制备了双网络共晶凝胶, 当与外源性电刺激相结合时, 共晶凝胶表现出减少炎症、刺激细胞增殖和迁移、促进胶原蛋白沉积和血管生成以及促进皮肤组织重塑的能力(图9d)。Zhou等^[130]通过一锅法制备了由DES(ChCl-EG)、PVA、CS、TA、铜离子组成的共晶凝胶。体外研究表明, 该凝胶具有优异的止血性能、良好的生物相容性和广谱抗菌性能, 值得一提的是, 在耐甲氧西林金黄色葡萄球菌感染的皮肤伤口模型中, 共晶凝胶可以通过抑制炎症加剧、增加胶原蛋白沉积、加速再上皮化、促进毛囊和新血管的形成来显著加速感染伤口的愈合。Wang等^[131]合成了NADES (ChCl-Mannose)凝胶, 体外实验表明, 该凝胶具有出色的细胞相容性和抗菌性能, 同时, 可促进伤口愈合, 9天内皮肤恢复率接近100%, 优于已报道的其他伤口敷料。

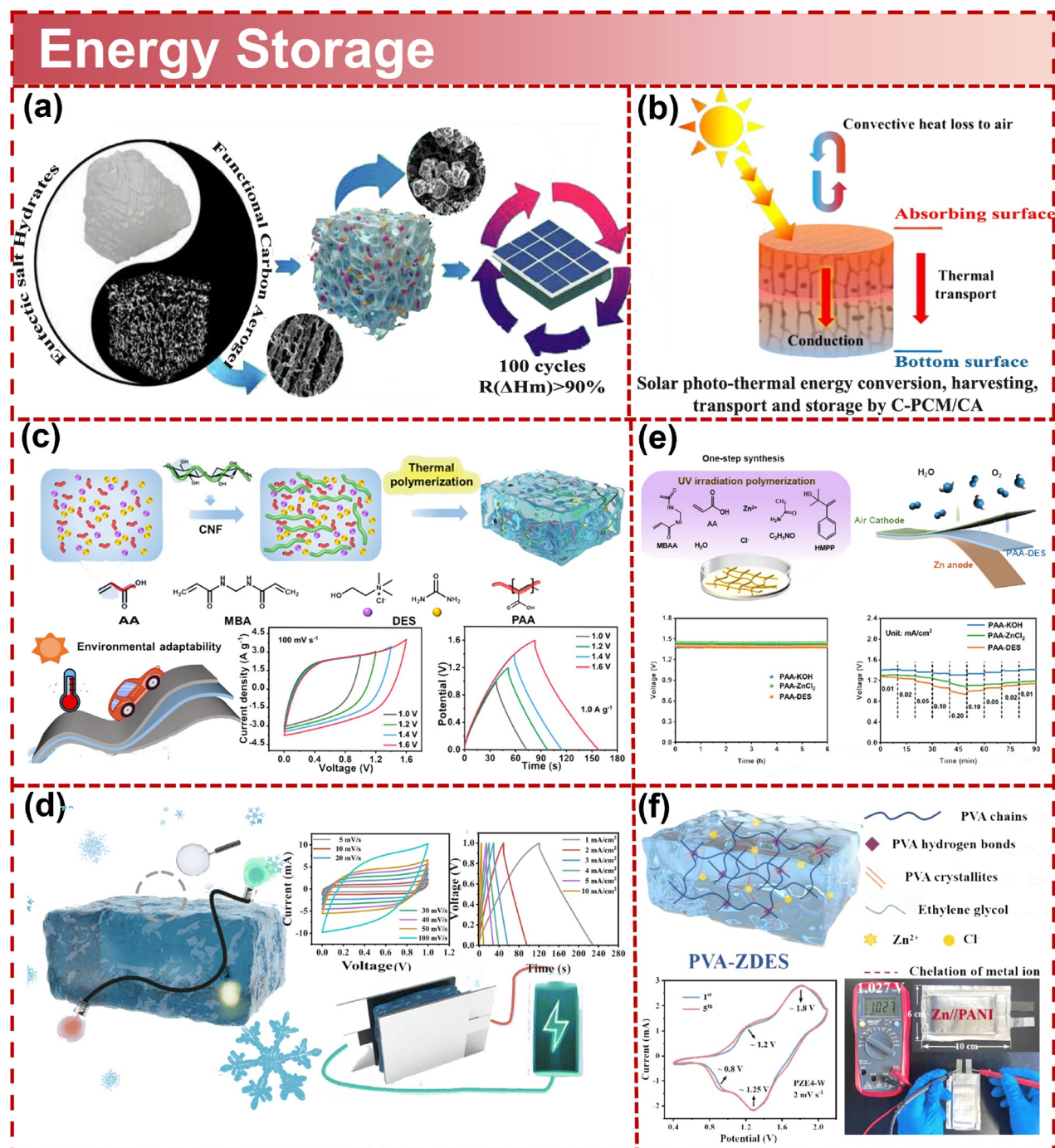


图 8 (网络版彩图) (a) 共晶凝胶用于相变储热^[119]; (b) 共晶凝胶用于太阳能储热^[120]; (c) CNF基共晶凝胶用于电能储热^[122]; (d) PAM-PDA基共晶凝胶制备超级电容器^[123]; (e) PAA-DES作为FZAB电解质^[124]; (f) PVA-ZDES共晶凝胶作为电解质^[125]

Figure 8 (Color online) (a) Phase-change thermal storage using eutectic gels^[119]; (b) solar energy storage with eutectic gels^[120]; (c) electrical energy storage employing CNF-based eutectic gels^[122]; (d) fabrication of supercapacitors using PAM-PDA-based eutectic gels^[123]; (e) PAA-DES eutectic gel serving as flexible zinc-air battery (FZAB) electrolyte^[124]; (f) PVA-ZDES eutectic gel applied as advanced battery electrolyte^[125].

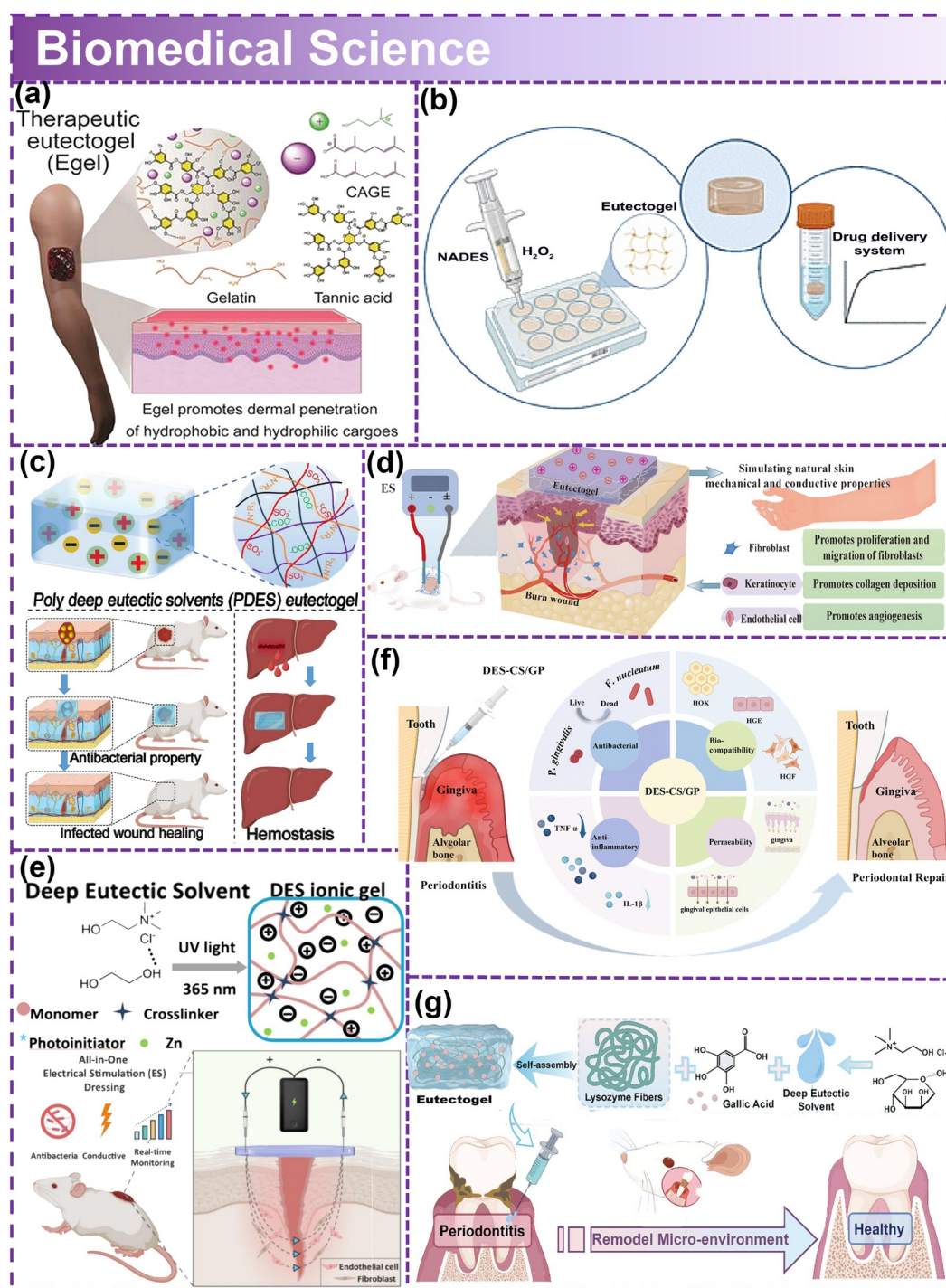


图 9 (网络版彩图) (a) THEDES凝胶用于局部药物递送^[126]; (b) 酮洛芬负载到共晶凝胶用于载药研究^[127]; (c) 双网络共晶凝胶辅助电刺激疗法促进伤口愈合^[128]; (d) 共晶凝胶促进伤口愈合^[129]; (e) 锌基共晶凝胶促进伤口愈合^[132]; (f) DES-CS/GP用于牙周炎治疗^[134]; (g) 自组装共晶凝胶促进小分子药物渗透^[67]

Figure 9 (Color online) (a) THEDES gel for localized drug delivery ^[126]; (b) ketoprofen-loaded eutectogel for drug carrier investigation ^[127]; (c) dual-network eutectogel-assisted electrostimulation therapy for wound healing enhancement ^[128]; (d) PDES eutectogel promoting wound regeneration ^[129]; (e) zinc-based eutectogel for improved wound recovery ^[132]; (f) DES-CS/GP composite for periodontitis treatment ^[134]; (g) self-assembling eutectogel enhancing transdermal drug permeation of small molecules ^[67].

Yang等^[132]合成DES (ChCl-EG)同时引入锌离子, 该凝胶对革兰氏阳性菌和革兰氏阴性菌均具有强大的抗菌功效, 同时保持了强大的生物相容性. 体内测试表明, 共晶凝胶敷料显著增强了伤口愈合过程的多个方面, 包括与对照组相比加速伤口闭合、增加表皮再生(2.16倍)、增强新上皮形成(2.03倍)、血管密度升高(2.98倍)和改善胶原蛋白沉积(1.08倍) (图9e). Li等^[133]利用透明质酸钠(SH)和NADES开发了一种由多巴胺(DA)原位涂覆的新型共晶凝胶伤口敷料(DES-DA-SH@Ag). DES-DASH@Ag凝胶在使用NIH-3T3成纤维细胞进行测试时表现出良好的细胞相容性, 并对感染暴露伤口的两种细菌具有显著的抗菌作用, 同时可促进伤口区域小鼠皮肤组织的再生. Zhang等^[134]通过将DES (水杨酸-ChCl)掺入壳聚糖/ β -甘油磷酸钠(CS/GP)水凝胶基质中开发了一种多功能共晶凝胶, 用于治疗牙周炎(图9f). Cheng等^[67]所制备的自组装共晶凝胶通过促进细菌控制、活性氧清除和通过促进小分子药物的细胞渗透来调节巨噬细胞, 从而表现出提高炎症性疾病治疗/疗法疗效的潜力(图9g). DES与其他溶剂相比, 可通过组分筛选增强其生物相容性、生物降解性和促渗透性, 功能化共晶凝胶解决了传统药物递送系统在扩散性和渗透性方面的局限性, 为药物递送、伤口敷料、炎症治疗等领域提供了新的治疗选择.

5 总结与展望

共晶凝胶融合了DES的特性与三维网络结构的功能优势, 在柔性传感、能源转化与储存、生物医学等领域展现出重要的应用价值. 本文综述了共晶凝胶的组成特性、功能化设计策略, 及其在上述关键领域的具体应用. 但共晶凝胶发展仍面临以下问题亟待解决. 首先, 共晶凝胶与传统凝胶相同存在电导率与机械性

能之间的平衡难以实现——高交联密度虽可增强结构稳定性, 却会限制离子迁移, 导致离子电导率下降. 这需要对于DES/DES、DES/聚合物链、聚合物链之间的相互作用进行详细机制探究, 明确离子迁移与凝胶基体框架之间的相互作用. 其次, 目前的共晶凝胶主要基于均匀的块状结构构建, 这限制了它们在机电、自修复结构稳定性和分子溶剂化耐溶剂能力之间的协同性能. 此外, 其生物相容性与免疫响应问题需进一步探究, 尽管DES本身生物相容性良好, 但长期植入人体可能引发炎症反应, 制约了其体内应用.

为应对上述挑战, 未来研究可从以下方向系统推进. (1) 优化共晶凝胶的组分设计, 通过深入解析体系内多重相互作用机制, 通过设计凝胶内部梯度协同提升其机电性能, 如引入聚电解质作为共晶凝胶的主链, 它可以将额外的自由移动离子释放到DESs介质中; 另一种典型策略是将二次电子导电网络, 如导电聚合物、碳纳米管、石墨烯、MXene和液态金属引入其中, 设计离子电子双导电机制柔性材料. (2) 突破传统制备方法, 引入3D打印、静电纺丝、辐射诱导聚合交联等先进技术, 以实现结构的精准可控构筑, 引入梯度结构设计实现共晶凝胶在高灵敏度柔性传感、柔性制动和仿生软体机器人等领域的进一步应用. 具体而言, 在3D打印中, 前驱体墨水通常需具备10~1000 Pa s范围内的表观黏度, 在打印后, 墨水的弹性模量(G')需要快速恢复并超过损耗模量(G''). 同时, 可引入含双键单体, 为辐射诱导技术构建共晶凝胶提供反应位点. (3) 融合AI方法, 借助机器学习算法对材料性能数据集进行特征提取与模式识别, 建立组成与性能之间的构效关系模型, 进而实现性能预测与最优配方的智能筛选, 通过算法辅助实现精确选择氢键供体和受体基团构建DES对于定制凝胶特性以适应特定应用场景至关重要. 共晶凝胶的构建与功能化是DES工程化应用的关键环节.

参考文献

- 1 Liu XY, Chen W, Qian C, Yu HQ. *Environ Sci Technol*, 2017, 51: 4812–4820
- 2 Huang W, Wu X, Qi J, Zhu Q, Wu W, Lu Y, Chen Z. *Drug Discov Today*, 2020, 25: 901–908
- 3 Liu J, Chen Z, Chen Y, Rehman HU, Guo Y, Li H, Liu H. *Adv Funct Mater*, 2021, 31: 2101464
- 4 Zhang F, Jiang S, Zhao D, Diao Y, Liu X, Chen J, Liu J, Yang H. *Chem Eng J*, 2024, 485: 149810
- 5 Wang W, Lin H, Huang Y, Zhang X, Yang Z, Huang W. *Chem Eng J*, 2024, 500: 156871

- 6 Zhang L, Jiang D, Dong T, Das R, Pan D, Sun C, Wu Z, Zhang Q, Liu C, Guo Z. *Chem Record*, 2020, 20: 948–967
- 7 Fan X, Liu S, Jia Z, Koh JJ, Yeo JCC, Wang CG, Surat'man NE, Loh XJ, Le Bideau J, He C, Li Z, Loh TP. *Chem Soc Rev*, 2023, 52: 2497–2527
- 8 Hu X, Zuo D, Cheng S, Chen S, Liu Y, Bao W, Deng S, Harris SJ, Wan J. *Chem Soc Rev*, 2023, 52: 1103–1128
- 9 Min J, Tu J, Xu C, Lukas H, Shin S, Yang Y, Solomon SA, Mukasa D, Gao W. *Chem Rev*, 2023, 123: 5049–5138
- 10 Wang J, Zhen Y, Hao J, Chai C. *Adv Colloid Interface Sci*, 2025, 346: 103659
- 11 Zhang YY, Ji XY, Lu XH. *Sci Sin Chim*, 2014, 44: 927–941 (in Chinese) [张盈盈, 吉晓燕, 陆小华. 中国科学:化学, 2014, 44: 927–941]
- 12 Boubilia A, Lemaoui T, Abu Hatab F, Darwish AS, Banat F, Benguerba Y, AlNashef IM. *J Mol Liquids*, 2022, 366: 120225
- 13 Xiao T, Hou M, Guo X, Cao X, Li C, Zhang Q, Jia W, Sun Y, Guo Y, Shi H. *Renew Sustain Energy Rev*, 2024, 192: 114243
- 14 Liu J, Li X, Row KH. *J Mol Liquids*, 2022, 362: 119654
- 15 Liu C, Sun W, Huo Y, Zhao J, Said Z. *J Mol Liquids*, 2022, 363: 119862
- 16 Kivelä H, Salomäki M, Vainikka P, Mäkilä E, Poletti F, Ruggeri S, Terzi F, Lukkari J. *J Phys Chem B*, 2022, 126: 513–527
- 17 Abranches DO, Martins MAR, Silva LP, Schaeffer N, Pinho SP, Coutinho JAP. *Chem Commun*, 2019, 55: 10253–10256
- 18 Abbott AP, Capper G, Davies DL, Rasheed RK, Tambyrajah V. *Chem Commun*, 2003, 9: 70–71
- 19 Abbott AP, Boothby D, Capper G, Davies DL, Rasheed RK. *J Am Chem Soc*, 2004, 126: 9142–9147
- 20 Abbott AP, Capper G, Davies DL, Rasheed RK. *Chem Eur J*, 2004, 10: 3769–3774
- 21 Abbott AP, Capper G, Swain BG, Wheeler DA. *Trans IMF*, 2005, 83: 51–53
- 22 Abbott A, Barron J, Ryder K, Wilson D. *Chem Eur J*, 2007, 13: 6495–6501
- 23 Abood HMA, Abbott AP, Ballantyne AD, Ryder KS. *Chem Commun*, 2011, 47: 3523–3525
- 24 Dai Y, van Spronsen J, Witkamp GJ, Verpoorte R, Choi YH. *Anal Chim Acta*, 2013, 766: 61–68
- 25 Paiva A, Craveiro R, Aroso I, Martins M, Reis RL, Duarte ARC. *ACS Sustain Chem Eng*, 2014, 2: 1063–1071
- 26 van Osch DJGP, Zubeir LF, van den Bruinhorst A, Rocha MAA, Kroon MC. *Green Chem*, 2015, 17: 4518–4521
- 27 Aroso IM, Craveiro R, Rocha Â, Dionísio M, Barreiros S, Reis RL, Paiva A, Duarte ARC. *Int J Pharm*, 2015, 492: 73–79
- 28 Shi R, Yu D, Zhou F, Yu J, Mu T. *Chem Commun*, 2022, 58: 4607–4610
- 29 Yu D, Mou H, Zhao X, Wang Y, Mu T. *Chem Asian J*, 2019, 14: 3350–3356
- 30 Yu D, Mou H, Fu H, Lan X, Wang Y, Mu T. *Chem Asian J*, 2019, 14: 4183–4188
- 31 Prabhune A, Dey R. *J Mol Liquids*, 2023, 379: 121676
- 32 Gachuz EJ, Castillo-Santillán M, Juárez-Moreno K, Maya-Cornejo J, Martínez-Richa A, Andrio A, Compañ V, Mota-Morales JD. *Green Chem*, 2020, 22: 5785–5797
- 33 Du Y, Xu J, Paul B, Eklund P. *Appl Mater Today*, 2018, 12: 366–388
- 34 Hansen BB, Spittle S, Chen B, Poe D, Zhang Y, Klein JM, Horton A, Adhikari L, Zelovich T, Doherty BW, Gurkan B, Maginn EJ, Ragauskas A, Dadmun M, Zawodzinski TA, Baker GA, Tuckerman ME, Savinell RF, Sangoro JR. *Chem Rev*, 2021, 121: 1232–1285
- 35 Migliorati V, D'Angelo P. *Chem Phys Lett*, 2021, 777: 138702
- 36 Chakraborty S, Chormale JH, Bansal AK. *Int J Pharm*, 2021, 610: 121203
- 37 Jurić T, Uka D, Holló BB, Jović B, Kordić B, Popović BM. *J Mol Liquids*, 2021, 343: 116968
- 38 Dai X, Meng Q, Zhang F, Zou Y, Di C, Zhu D. *J Energy Chem*, 2021, 62: 204–219
- 39 Goel N, Sinha N, Kumar B. *Mater Res Bull*, 2013, 48: 1632–1636
- 40 Yan C, Li W, Liu Z, Zheng S, Hu Y, Zhou Y, Guo J, Ou X, Li Q, Yu J, Li L, Yang M, Liu Q, Yan F. *Adv Funct Mater*, 2024, 34: 2314408
- 41 Li X, Li Z, Guo Z, Zhang C, Xu X, Tu J, Wang X, Gu C. *ACS Appl Mater Interfaces*, 2024, 16: 36901–36910
- 42 Huang WJ, Vo TH, Sheng YJ, Tsao HK. *J Mol Liquids*, 2024, 396: 124011
- 43 Li Z, Zhang S, Jiang Z, Cai D, Gu C, Tu J. *Mater Chem Phys*, 2021, 267: 124701
- 44 Deshmukh SP, Das R, Kundu D. *J Power Sour*, 2024, 600: 234270
- 45 Zhao Y, Cheng H, Li Y, Rao J, Yue S, Le Q, Qian Q, Liu Z, Ouyang J. *J Mater Chem A*, 2022, 10: 4222–4229
- 46 Hao P, Cheng X, Lu X, Zhou Q, Yan D, Xin J, Xu J, Li Y. *Chem Eng J*, 2024, 493: 152871
- 47 Thomas B, Raj MC, B AK, H RM, Joy J, Moores A, Drisko GL, Sanchez C. *Chem Rev*, 2018, 118: 11575–11625
- 48 Chen L, Zhu J, Chen N, Song J, Li Y, Chen X, Niu Y. *J Mater Chem C*, 2025, 13: 5599–5610
- 49 Cheng X, Li T, Zhang C, Zhang Q, Wang S, Zhu E, Zhang L, Wang Z. *J Colloid Interface Sci*, 2025, 685: 948–960

- 50 Bai Y, Zhang XF, Wu Y, Liu H, Yao J. *J Mater Chem A*, 2024, 12: 28307–28314
- 51 Shu L, Zhang XF, Miu J, Yao J. *ACS Appl Polym Mater*, 2024, 6: 13785–13794
- 52 Carrasco-Saavedra S, Tanguy NR, García-Nieto I, Pimentel-Domínguez R, Panzer MJ, Mota-Morales JD. *Adv Mater Inter*, 2024, 11: 2300536
- 53 Liu A, Li X, Xu W, Duan X, Shi J, Li X, Chu J, Lei H. *Int J Biol Macromol*, 2025, 284: 138188
- 54 Sun S, Yu L, Teng J, Gu Y, Pang Y, Xu X, Wang W, Li Y. *Appl Mater Today*, 2024, 39: 102342
- 55 Tang N, Jiang Y, Zhang H, Hu J. *Nano Res*, 2026, 19: 94907847
- 56 Ge G, Mandal K, Haghniaz R, Li M, Xiao X, Carlson L, Jucaud V, Dokmeci MR, Ho GW, Khademhosseini A. *Adv Funct Mater*, 2023, 33: 2207388
- 57 Wang H, Li J, Yu X, Yan G, Tang X, Sun Y, Zeng X, Lin L. *Carbohydrate Polym*, 2021, 255: 117443
- 58 Pang Y, Zhang K, Luan X, Zhu B, Shen W, Xie C, Li L, Pang J. *Chem Eng J*, 2023, 477: 146974
- 59 Xing S, Zhang G, Zhang A, Chang Z, Guo Z, Dong A, Zhang J. *J Polym Sci*, 2024, 62: 925–936
- 60 Li X, Yan M, Xiao J, Lian H. *J Colloid Interface Sci*, 2023, 650: 1382–1392
- 61 Isik M, Ruiperez F, Sardon H, Gonzalez A, Zulficar S, Mecerreyes D. *Macromol Rapid Commun*, 2016, 37: 1135–1142
- 62 Lin L, Li R, Chen G, Wang X, Cheng J, Zhao J, Zhao K, He M. *Polym Chem*, 2024, 15: 783–795
- 63 Kong L, Ning H, Du M, Chen M, Li X, Zhao F, Li J, Zheng X, Liu X, Li Y, Ma S, Zhou S, Xu W. *ACS Appl Mater Interfaces*, 2025, 17: 17412–17423
- 64 Chang S, Rong K, Wang Y, Yu Z, Zhai J, Tian H, Fang Y, Dong S. *Chem Eng J*, 2024, 499: 156597
- 65 Li Y, Deng X, Cao P, Liu H, Qing R, Dai Z, Guo F. *Int J Biol Macromol*, 2025, 311: 143914
- 66 Zhang H, Hu Y, Liu Z, Li R', Cao Y. *ACS Mater Lett*, 2023, 5: 2621–2628
- 67 Cheng Z, Kang M, Peng X, Ren L, Xie J, Yuan Q, Xu X, Li J. *Adv Mater*, 2025, 37: 2412866
- 68 Aguzin A, Dominguez-Alfaro A, Criado-Gonzalez M, Velasco-Bosom S, Picchio ML, Casado N, Mitoudi-Vagourdi E, Minari RJ, Malliaras GG, Mecerreyes D. *Mater Horiz*, 2023, 10: 2516–2524
- 69 Ruiz-Olles J, Slavik P, Whitelaw NK, Smith DK. *Angew Chem Int Ed*, 2019, 58: 4173–4178
- 70 Gu C, Peng Y, Li J, Wang H, Xie X, Cao X, Liu C. *Angew Chem Int Ed*, 2020, 59: 18768–18773
- 71 Zhang B, Sun H, Huang Y, Zhang B, Wang F, Song J. *Chem Eng J*, 2021, 425: 131518
- 72 Shao Y, Dang C, Qi H, Liu Z, Pei H, Lu T, Zhai W. *Matter*, 2024, 7: 4076–4098
- 73 Zhang H, Tang N, Yu X, Li M, Hu J. *Adv Funct Mater*, 2022, 32: 2206305
- 74 Du S, Chen X, Li M, Peng B, Lyu Q, Zhang L, Zhu J. *Adv Funct Mater*, 2025, 35: 2409726
- 75 Zeng G, Chen S, Zhou Y, Li G, Li G, Zhu J, Xu C, Xin Y. *ACS Appl Mater Interfaces*, 2025, 17: 38532–38544
- 76 Mercken J, De Sloovere D, Joos B, Ghogare D, Verhille Y, Smeets S, Derveaux E, Adriaenssens P, Van Bael M, Hardy A. *ChemSusChem*, 2025, 18: e2500427
- 77 Wu Y, Yang L, Wang J, Li S, Zhang X, Chen D, Ma Y, Yang W. *ACS Appl Mater Interfaces*, 2023, 15: 36759–36770
- 78 Pei X, Li Y, Ou T, Liang X, Yang Y, Jia E, Tan Y, Guo S. *Angew Chem Int Ed*, 2022, 61: e202205075
- 79 Wang J, Zhan B, Zhang S, Wang Y, Yan L. *ACS Appl Polym Mater*, 2022, 4: 2057–2064
- 80 Yang J, Chang L, Deng H, Cao Z. *ACS Nano*, 2024, 18: 18980–18991
- 81 Zhang X, Rong Y, Li H, Fei J, Huang X, Bao Q, An J. *Chem Eng J*, 2024, 481: 149004
- 82 Chen W, Ma J, Yu D, Li N, Ji X. *Int J Biol Macromol*, 2024, 266: 131129
- 83 Cao Q, Yuan W. *Chem Eng J*, 2024, 494: 153254
- 84 Yang J, Yan Y, Huang L, Ma M, Li M, Peng F, Huan W, Bian J. *ACS Nano*, 2025, 19: 2171–2184
- 85 Sun S, Hao S, Liu Y, Sun S, Xu Y, Jiang M, Shao C, Wen J, Sun R. *ACS Nano*, 2025, 19: 811–825
- 86 Yao P, Bao Q, Yao Y, Xiao M, Xu Z, Yang J, Liu W. *Adv Mater*, 2023, 35: 2300114
- 87 Liang Y, Wang K, Li J, Wang H, Xie X, Cui Y, Zhang Y, Wang M, Liu C. *Adv Funct Mater*, 2021, 31: 2104963
- 88 Chen J, Liu F, Abdiryim T, Liu X. *Adv Compos Hybrid Mater*, 2024, 7: 35
- 89 Roy A, Afshari R, Jain S, Zheng Y, Lin MH, Zenkar S, Yin J, Chen J, Peppas NA, Annabi N. *Chem Soc Rev*, 2025, 54: 2595–2652
- 90 Ma H, Wang M, Hou J, Wang X, Sun P, Wang F. *Adv Mater*, 2025, 37: 2500770
- 91 Li Z, Lu Y, Xiao D, Sun Y, Xu Y, Han J, Xu J, Xu B, Li C. *Nano Energy*, 2025, 135: 110630

- 92 Mercadal PA, Romero MR, Montesinos MM, Real JP, Picchio ML, González A. *ACS Appl Electron Mater*, 2023, 5: 2184–2196
- 93 Jia Q, Wang X, Lu C, Zhang D, Gao S, Yu J, Wang C, Wang J, Yong Q, Chu F. *Int J Biol Macromol*, 2025, 294: 139429
- 94 Parsana N, Ukani H, El Seoud OA, Al-Ghamdi A, Malek N. *Chem Eng J*, 2024, 488: 150703
- 95 Feng Y, Yu J, Sun D, Dang C, Ren W, Shao C, Sun R. *Nano Energy*, 2022, 98: 107284
- 96 Chen Y, Hong G, Li L, Qu Q, Li G, Teng K, Ge L, Wu J, Zhang H. *Compos Part B-Eng*, 2025, 295: 112166
- 97 Yang JY, Kumar A, Shaikh MO, Huang SH, Chou YN, Yang CC, Hsu CK, Kuo LC, Chuang CH. *ACS Appl Mater Interfaces*, 2023, 15: 55244–55257
- 98 Meng L, Sun H, Zhang H, Zhang Y, Ding C, Xu X, Li J. *Sci China Mater*, 2024, 67: 3861–3871
- 99 Liu W, Lan Y, Li H, Liu C, Dufresne A, Fu L, Lin B, Xu C, Huang B. *Int J Biol Macromol*, 2025, 286: 138229
- 100 Huang B, Liu W, Lan Y, Huang Y, Fu L, Lin B, Xu C. *Chem Eng J*, 2024, 480: 147888
- 101 Guo R, Bao Y, Zheng X, Zhang W, Liu C, Chen J, Xu J, Wang L, Ma J. *Adv Funct Mater*, 2023, 33: 2213283
- 102 Zhang X, Fu Q, Wang Y, Zhao H, Hao S, Ma C, Xu F, Yang J. *Adv Funct Mater*, 2024, 34: 2307400
- 103 Shen H, Wang Y, Ma B, Zhou S, Wang J, Yu Z. *Chem Commun*, 2025, 61: 11271–11274
- 104 Zhao Y, Ohm Y, Liao J, Luo Y, Cheng HY, Won P, Roberts P, Carneiro MR, Islam MF, Ahn JH, Walker LM, Majidi C. *Nat Electron*, 2023, 6: 206–215
- 105 Lv Y, Li C, Yang Z, Gan M, Wang Y, Lu M, Zhang X, Min L. *Adv Sci*, 2024, 11: 2410446
- 106 Vakili S, Mohamadnia Z, Ahmadi E. *Biomacromolecules*, 2024, 25: 7704–7722
- 107 Hu Y, Yang W, Zhan J, Pu C, Zhong L, Hou H. *Adv Funct Mater*, 2025, 35: 2425778
- 108 Hu Y, Zhan J, Pu C, Yang W, Zhong L, Xu Z, Pan Y, Hou H. *Chem Eng J*, 2025, 509: 161269
- 109 Xia H, Ren M, Zou Y, Qin S, Zeng C. *Molecules*, 2020, 25: 3314
- 110 Li J, Wang C, Xing Y, Wang Y, Wang L, Shao C, Jiang W, Ji X, Yang G, Chen J, Lyu G. *ACS Sustain Chem Eng*, 2023, 11: 10578–10589
- 111 Wei Z, Jia L, Yu J, Xu H, Guo X, Xiang T, Zhou S. *Mater Horiz*, 2025, 12: 2604–2618
- 112 Lin W, Zhang J, Pan G, Lin Y, Chen D, Lu J, Li J, Huang J, Li Z, Lin X, Sun Y, Yi G, Qin Y. *Adv Funct Mater*, 2025, 35: e09779
- 113 Wang W, Ma Z, Hu Z, Long Y, Wu F, Huang X, Nisa F, Liang H, Dong Y, Wang J, Tahir M, Xu J, He L. *Adv Funct Mater*, 2025, 35: 2502844
- 114 Zhang X, Liu S, Wang X, Peng J, Yang W, Ma Y, Fan K. *J Colloid Interface Sci*, 2024, 654: 1348–1355
- 115 Chen Y, Hong G, Li L, Qu Q, Li G, Wu J, Ge L. *Chem Eng J*, 2024, 483: 149344
- 116 Wu H, Song J, Gao N, Pang X, Li Y, Xu Z, Yu X. *Chem Eng J*, 2025, 505: 159714
- 117 Chen Y, Zhang H, Hong G, Li L, Qu Q. *Carbohydrate Polym*, 2025, 355: 123349
- 118 Chen T, Wei Q, Ma Y, Tang Y, Ma L, Deng S, Xu B. *Nano Energy*, 2024, 127: 109752
- 119 Wang W, Jiang T, Guo S, Song F, Yu Y, Wang Q, Dong N, Nie B. *J Colloid Interface Sci*, 2025, 699: 138159
- 120 Xi S, Wang L, Shao F, Song M, Xie H, Yu W. *Energy Build*, 2022, 271: 112336
- 121 Lien CW, Vedhanarayanan B, Chen JH, Lin JY, Tsai HH, Shao LD, Lin TW. *Chem Eng J*, 2021, 405: 126706
- 122 Xu L, He Y, Xu Y, Sun S, Liu J, Yang J, Wen J, Yuan T. *Adv Funct Mater*, 2025, 35: 2501263
- 123 Li Q, Tian B, Tang G, Zhan H, Liang J, Guo P, Liu Q, Wu W. *J Mater Chem A*, 2024, 12: 3589–3600
- 124 Liu X, Wang J, Lv P, Zhang Y, Li J, Wei Q. *Energy Storage Mater*, 2024, 69: 103382
- 125 Peng Q, Cao R, Ma H, Li Y, Zhu E, Zhu X, Ma N, Xue M, Zhang X. *J Mater Chem A*, 2025, 13: 6586–6596
- 126 Picchio ML, Orellano MS, Motta MA, Huck-Iriart C, Sánchez-deAlcázar D, López-Domene R, Martín-García B, Larrañaga A, Beloqui A, Mecerreyes D, Calderón M. *Adv Funct Mater*, 2024, 34: 2313747
- 127 Meneses L, Bagaki DA, Roda A, Paiva A, Duarte ARC. *J Mater Chem B*, 2024, 12: 12567–12576
- 128 Liu S, Zhan J, Liu Z, Tan X, Huang J, Pu C, Lin R, Chen Y, Luo Q, Qiu X, Hou H. *Carbohydrate Polym*, 2025, 352: 123192
- 129 Tian Y, Jiang F, Xie H, Chi Z, Liu C. *Adv Healthcare Mater*, 2024, 13: 2304117
- 130 Zhou R, Zhang W, Wu J, Huang J, Wang W, Peng W, Chen J, Bo R, Liu M, Li J. *Int J Biol Macromol*, 2025, 297: 139916
- 131 Wang Y, Zhang Y, Su J, Zhang X, Wang J, Tu Q. *ACS Sustain Chem Eng*, 2020, 8: 14243–14252
- 132 Yang JY, Tsai YL, Cheng TH, Su YL, Hong YK, Lin YC, Lee DH, Yang CC, Hsu CK, Kuo LC, Chuang CH. *Chem Eng J*, 2025, 515: 163849
- 133 Li W, Zhao X, Huang T, Ren Y, Gong W, Guo Y, Wang J, Tu Q. *Int J Biol Macromol*, 2021, 191: 60–70
- 134 Zhang J, Meng L, Jia Y, Li J, Xu X, Xu X. *Mater Horiz*, 2025, 12: 3788–3802

Research progress in the construction and functional applications of eutectogels

Yuxi Chen^{1,2}, Long Zhao^{1*}

¹ State Key Laboratory of Advanced Electromagnetic Technology, School of Electrical and Electronic Engineering, Huazhong University of Science and Technology, Wuhan 430074, China

² School of Chemistry and Chemical Engineering, Huazhong University of Science and Technology, Wuhan 430074, China

*Corresponding author (email: zhaolong@hust.edu.cn)

Abstract: Deep eutectic solvents (DESs), a novel class of green solvents composed of hydrogen bond donors and acceptors, boast advantages such as simple preparation, low cost, and tunable physicochemical properties, rendering them promising for widespread applications. Eutectogels, constructed by integrating DESs as key components, not only inherit the desirable characteristics of DESs but also combine stretchability, high ionic conductivity, biocompatibility, and versatile functional design. As such, they are recognized as a new generation of functional materials capable of replacing conventional ionogels. This article systematically outlines the design strategies for functional eutectogels and reviews their recent research and application progress in three major fields: flexible sensing, energy conversion and storage, and biomedicine. It aims to provide valuable references for the design optimization, performance enhancement, and scalable application of these materials.

Keywords: deep eutectic solvent (DES), eutectogel, functional applications, ionic conductivity, biocompatibility

doi: [10.1360/SSC-2025-0251](https://doi.org/10.1360/SSC-2025-0251)