

· 研究论文 ·

基于相分离结构的高强韧自润滑有机凝胶及其抗黏附性能

赵永龙¹ 李万锋³ 张嘉杰¹ 章家立¹ 杨绍明¹ 刘永鑫¹ 曾良鹏^{1,2*}

(华东交通大学¹材料科学与工程学院²南昌市智能生物材料调控与适配重点实验室 南昌 330013)

(³河南省科学院化学研究所 郑州 450046)

摘要 表面黏附是生产生活中的常见现象,对设施设备的可靠运行产生诸多不利影响.以润滑剂为溶剂的有机凝胶凭借其独特的三维网络结构和表面自润滑特性,在抗黏附领域展现出显著优势.本工作通过将低玻璃化转变温度(T_g)的疏硅油聚甲基丙烯酸月桂酯(PLMA)链段与高 T_g 亲硅油的聚甲基丙烯酸叔丁酯(PTBMA)共聚,制备了一种高强韧低回滞的自润滑有机凝胶.疏硅油PLMA链段可诱导有机凝胶形成连续相分离结构,并与网络本征的高柔性协同赋予凝胶优异的机械性能与自恢复能力.甲基丙烯酸叔丁酯/甲基丙烯酸月桂酯(TBMA/LMA)摩尔比为1/3的PT₁L₃自润滑有机凝胶展现出最佳性能,其拉伸强度、断裂伸长率和杨氏模量分别高达0.35 MPa、798%和0.32 MPa.在静息3 min的加载-卸载循环测试中,该有机凝胶的自恢复率可达94.6%.自润滑有机凝胶表面的液滴滑动角低于7°,冰黏附强度低于20 kPa,对牛血清白蛋白(BSA)和大肠杆菌(*E. coli*)的黏附量分别降低了76.6%和90%,在自清洁与抗黏附领域展现出广阔的应用前景.

关键词 有机凝胶;自润滑;自恢复能力;抗黏附;相分离

引用: 赵永龙,李万锋,张嘉杰,章家立,杨绍明,刘永鑫,曾良鹏.基于相分离结构的高强韧自润滑有机凝胶及其抗黏附性能.高分子学报,doi: 10.11777/j.issn1000-3304.2026.25304.

Citation: Zhao, Y. L.; Li, W. F.; Zhang, J. J.; Zhang, J. L.; Yang, S. M.; Liu, Y. X.; Zeng, L. P. Tough self-lubricating organogels with phase separation structures and their anti-adhesion properties. *Acta Polymerica Sinica* (in Chinese), doi: 10.11777/j.issn1000-3304.2026.25304.

表面黏附是工程材料与服役环境相互作用中普遍存在的现象,长期制约着航天航海运输、能源电力及高湿寒冷地区服役设施设备的可靠运行.生物污损、结垢、结冰等表面黏附问题,不仅会增加设施设备的重量增加,还将改变其空气动力学或流体动力学外形,导致材料性能加速劣化和能源效率的显著下降,引发严重的经济损失和安全隐患^[1-3].为抑制表面黏附带来的多重不利影响,目前已发展出机械清除、物理与/或化学

防护、仿生结构等多种抗黏附技术^[4,5].其中,抗黏附涂层技术因其防护高效、成本可控等优势,成为研究与应用的热点.实践表明,该技术能够将表面黏附所致的经济损失降低约30%~50%,展现出显著的技术与经济价值^[6].

有机凝胶是三维(3D)交联高分子网络和有机溶剂构成的一类软物质新材料.其中,基于低表面能液体构建的自润滑有机凝胶,能够通过网络中低表面能液体的动态润滑与界面自迁移,在其

2025-11-18收稿,2026-01-27录用,网络出版.

基金项目:国家自然科学基金(基金号52501419、52361014)、江西省自然科学基金(基金号20242BAB20186、20252BAC240402)、河南省省级科技研发计划联合基金青年科学家项目(项目号225200810120)和河南省科学院启动费项目(项目号231818022).

*通信联系人, E-mail: zenglp@ecjtu.edu.cn

doi: 10.11777/j.issn1000-3304.2026.25304; CSTR: 32057.14.GFZXB.2026.7560

表面形成稳定的液体润滑层. 该表面润滑层极大地削弱了界面分子作用力与宏观黏附性, 使得自润滑有机凝胶表现出独特的动态抗黏附特性^[7-9]. 此外, 自润滑有机凝胶通常具有良好的生物相容性、环境友好性及组织结构可设计性, 成为当前极具潜力的抗黏附体系. 然而, 目前报道的自润滑有机凝胶的力学强度普遍处于 $10\sim 10^3$ kPa 范围, 难以满足动态载荷与机械磨损交互耦合服役环境的应用^[10]. 因此, 如何在保持其自润滑与抗黏附特性的前提下, 实现力学性能的显著提升, 已成为该领域当前面临的关键挑战之一.

引入能量耗散机制是强韧化凝胶材料的常用策略. 然而, 在自润滑有机凝胶体系中, 非极性的液体润滑剂与聚合物网络间通常难以形成强相互作用, 使得常用的氢键^[11]、离子键^[12]、双网络^[13]、金属配位相互作用^[14]等增强策略难以奏效. 为此, 研究人员提出引入结晶结构^[15]、纳米粒子^[16,17]、疏溶剂相互作用^[18]、偶极-偶极相互作用^[19]和玻璃态结构^[20,21]等方式来增强高分子链间的相互作用力. 然而, 结晶域等微结构的形成往往会限制高分子网络的溶剂化水平, 从而削弱有机凝胶的抗黏附性能. 研究表明, 材料的模量对其抗黏附行为具有重要影响, 材料具有与黏附物相近的适中模量时, 可有效避免界面处产生剧烈的形变梯度, 减少机械互锁, 实现“以柔克刚”的抗黏附^[22,23]. 当发生形变后, 自润滑有机凝胶能

在内部能量耗散极少的状态下迅速恢复原状, 不仅能有效减少在表面附着物在剥离过程中对材料本身的损伤, 并可通过自身微振动促进附着物松动, 从而降低黏附强度并延长其使用寿命^[24].

本工作将高玻璃化转变温度(T_g)亲硅油的链段和低 T_g 的疏硅油链段共聚, 成功制备了一种由硅油和疏水性高分子网络组成的具有相分离结构的自润滑有机凝胶. 系统地研究了有机凝胶的网络结构、力学性能、自润滑性能及其在防冰、防污等抗黏附方面的应用潜力, 以期自润滑有机凝胶在抗黏附涂层方面的应用提供参考.

1 实验部分

1.1 主要原料

甲基丙烯酸叔丁酯(TBMA, 纯度99%)、甲基丙烯酸月桂酯(LMA, 纯度96%)、1,4-丁二醇二丙烯酸酯(BDA, 纯度90%)、二苯甲酮(BP, 分析纯)、羟基封端二甲基硅氧烷(硅油, 纯度>90%)购于上海麦克林科技生化股份有限公司.

1.2 有机凝胶的制备

按图1所示步骤制备自润滑有机凝胶. 根据表1中的配比, 依次称取一定量的TBMA、LMA、BDA、BP充分混合均匀. 然后, 将其注入到自制的夹层模具中, 并置于紫外灯(波长约365 nm)下照射6 h进行聚合反应, 得到不同链段比例的P(TBMA-co-LMA)共聚物. 随后, 将所得共聚物

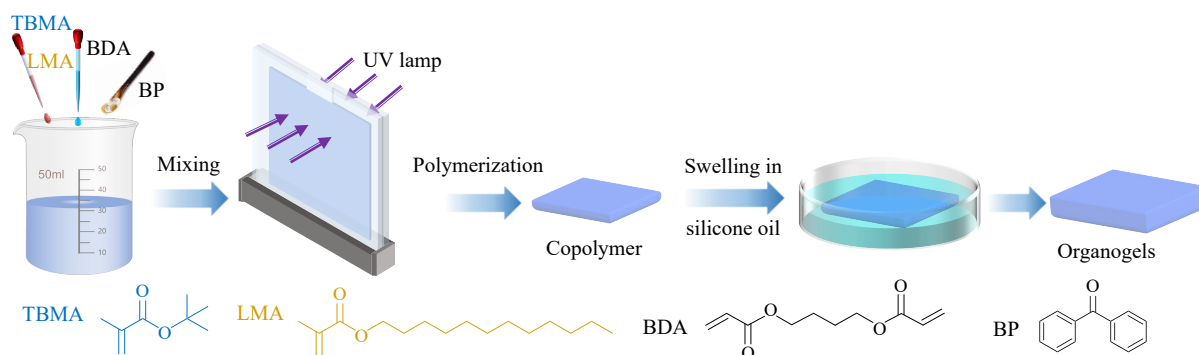


Fig. 1 Schematic diagram for the preparation of self-lubricating organogels.

Table 1 The recipes of self-lubricating organogels with various molar ratios of TBMA/LMA.

Sample	TBMA/LMA (molar ratio)	n_{TBMA} (mol)	n_{LMA} (mol)	n_{BDA} (mmol)	n_{BP} (mmol)
PTBMA	1/0	0.16	0	0.08	0.48
PT ₆ L ₁	6/1	0.18	0.03	0.105	0.63
PT ₃ L ₁	3/1	0.12	0.04	0.08	0.48
PT ₂ L ₁	2/1	0.12	0.06	0.09	0.54
PT ₁ L ₃	1/3	0.04	0.12	0.08	0.48

浸泡于硅油中，直至达到热力学溶胀平衡，即得到P(TBMA-co-LMA)自润滑有机凝胶。为简便，将得到的自润滑有机凝胶简称为PT_xL_y，其中x/y分别代表TBMA与LMA的摩尔比。

1.3 表征与测试

1.3.1 硅油含量

将聚合所得的共聚物浸泡于硅油中充分溶胀制备PT_xL_y自润滑有机凝胶。根据溶胀过程中的样品质量变化，计算了有机凝胶溶胀平衡时的硅油含量。

硅油含量(Q)计算公式：

$$Q = \frac{m_s - m_0}{m_s} \times 100\% \quad (1)$$

式中， m_0 和 m_s 分别为样品在溶胀前的初始重量(g)和溶胀平衡状态下的重量(g)。

1.3.2 透明度测试

通过紫外可见分光光度计(UV-2700)测定有机凝胶在波长为400~800 nm的透过率。

1.3.3 小角X射线散射(SAXS)表征

通过小角X射线散射(Xeuss 3.0, 法国Xenocs)对有机凝胶进行了表征。X射线能量为8.04 keV，波长为0.154 nm，样品到探测器的距离为2205 mm。测试在298 K下进行，试样曝光时间为30 min。通过Fit2D软件对二维(2D)散射图像进行了分析，并对X射线波束波动、探测器空间畸变和背景散射进行了校正。

1.3.4 示差扫描量热(DSC)分析

通过示差扫描量热仪(DSC5+, 瑞士Mettler Toledo)对自润滑有机凝胶进行了热分析。先将样品以10 °C/min升温速率升温至120 °C后冷却至-10 °C，然后程序升温至120 °C，升温速率为5 °C/min。

1.3.5 硅油保持能力测试

将有机凝胶分别置于室温空气和固定流速的水流环境下，每隔24 h称重1次，根据重量变化计算有机凝胶的硅油保持率。

1.3.6 机械性能测试

采用电子万能拉伸试验机(WDW-5, 济南辰鑫)对有机凝胶的机械性能进行了测试。首先，将试样切割成哑铃状：受拉伸部分宽度为1.6 mm，长度为15 mm，厚度用测厚仪测得；然后，将试样两端分别夹持在与传感器相连的夹具上并呈自然拉紧状态。试样的预载荷拉伸速度为100 mm/min，

在室温(约25 °C)下测试至少3次。

从所得应力-应变曲线中读取有机凝胶的拉伸断裂应力 σ_r 和断裂应变 ε_r ；根据应变低于10%的曲线斜率计算有机凝胶的杨氏模量 E ；根据应力-应变曲线的面积计算拉伸功 W 。各计算公式如下：

$$E = k \times 100 \quad (2)$$

式中， E 为有机凝胶的杨氏模量，MPa； k 为有机凝胶拉伸应变小于10%的曲线斜率。

$$W = \int_0^{\varepsilon} \sigma_i d\varepsilon \quad (3)$$

式中， W 为有机凝胶的拉伸功，MJ/m³； σ_i 为拉伸测试时的断裂应力，MPa； ε 为拉伸测试时的断裂应变，%。

1.3.7 接触角与滑动角测试

通过光学接触角测量仪器(OCA15EC, 德国dataphysics)测试了有机凝胶的静态水接触角，并结合定制的自调节倾斜台(可倾斜角度为30°)的使用测试了有机凝胶表面的液体滑动角。以水、牛奶和墨汁作为测试液体测试了自润滑有机凝胶的表面斥液性能。

1.3.8 防污性能

抗蛋白质吸附测试：将相同尺寸的有机凝胶试样放入1.0 g/L牛血清白蛋白(BSA) PBS溶液(pH=7.4)中，在25 °C下孵育12 h。用紫外可见分光光度法测定取出有机凝胶后的BSA溶液的特征紫外吸收峰强度(OD₂₈₀)。根据试样在BSA溶液中浸泡前后的特征紫外吸收峰强度之差(Δ Abs)表征其表面的蛋白质吸附量^[5]。

抗细菌黏附测试：有机凝胶试样经紫外灭菌30 min后，浸没于经LB培养液(Luria-Bertani broth)稀释了150倍的大肠杆菌(*E. coli*)悬浮液中，在37 °C恒温摇床中培养168 h。试样取出后，用去离子水冲洗3次，然后用0.1 wt%结晶紫水溶液染色15 min。染色后的试样经去离子水冲洗2次后，置于33 wt%醋酸溶液中洗脱20 min。用紫外可见分光光度法测定所得结晶紫洗脱液在590 nm波长下的吸光度。

1.3.9 抗冰黏附性能

在由制冷台、冷室和力传感器运动台组成的自制装置上测试有机凝胶的冰黏附强度。首先，将冷室温度控制在-25 °C；然后，将有机凝胶固定在制冷台上，并将1 mL超纯水注入置于试样

表面的塑料柱(1.0 cm × 1.0 cm × 2.5 cm)中并保持4 h, 确保塑料柱中的水形成冰柱. 测试时, 传感器探头保持在试样表面上方1.0 mm水平处, 随运动台以600 μm/s的前进速度推动冰柱. 在每个试样表面的不同位置重复测试5次, 根据冰柱剥离时的剪切力峰值计算平均冰黏附强度.

2 结果与讨论

2.1 自润滑有机凝胶的设计

甲基丙烯酸叔丁酯(TBMA)聚合物具有较高的玻璃化转变温度($T_g=118\text{ }^\circ\text{C}$), 且其链段与羟基封端的聚二甲基硅氧烷(硅油)具有高度的相容性; 甲基丙烯酸月桂酯(LMA)聚合物链段的玻璃化转变温度为 $-3\text{ }^\circ\text{C}$, 与硅油的相容性较差. 本研究在高度亲硅油的高 T_g 聚甲基丙烯酸叔丁酯(PTBMA)网络中, 引入了与PTBMA网络具有截然不同特性的聚甲基丙烯酸月桂酯(PLMA)链段, 在极低的交联剂用量(相对于单体总量的0.05 mol%)下, 构建了P(TBMA-co-PLMA)自润滑有机凝胶(图2). PTBMA链段的高亲硅油能力赋予有机凝胶充足的“储油”能力, PLMA链段发挥其疏油特性形成了双连续的分相结构.

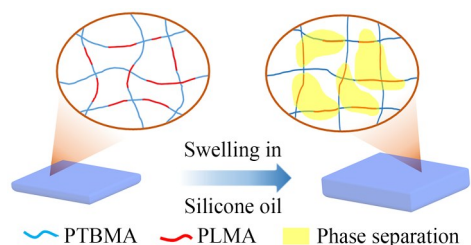


Fig. 2 Schematic diagram for the network structure of self-lubricating organogels.

根据溶胀过程计算有机凝胶达到溶胀平衡态时的硅油含量, 结果如图3(a)所示. 可以看到, 有机凝胶的硅油含量随着疏硅油链段比例的增加而下降. 同时, 随着疏硅油 PLMA 链段比例的增加, 所形成的有机凝胶宏观上转变为了不透明(乳白色)(图3(b)). 通过透明度测试可以看到, 有机凝胶的透光率也随着疏硅油 PLMA 链段比例的增加而发生了明显地降低, 并在 TBMA/LMA 摩尔比为 1/3 (PT₁L₃有机凝胶)降至约 10% (图3(c)). 对 PT₁L₃有机凝胶进行了小角 X 射线散射(SAXS)表征(图3(d)), 从其 2D 衍射图中观察到清晰的散射圆圈(图3(d)插图), 在 q 为 0.03~0.10 nm⁻¹ 处出

现了一个明显的散射峰, 表明有机凝胶网络中存在纳米尺寸的微区结构, 即微相分离的形成. 图3(e)的 DSC 显示, PT₁L₃有机凝胶分别在约 -10 和 $97\text{ }^\circ\text{C}$ 处出现吸热峰, 分别接近于 PLMA 链段富集相和 PTBMA 链段富集相的 T_g . 需要指出的是, 由于硅油对高分子网络具有较强的塑化能力, 导致 PLMA 和 PTBMA 链段的 T_g 降低(向低温偏移)^[25,26]. 这进一步印证了, 随着 PLMA 链段的增加, 有机凝胶形成了微相分离结构^[27].

此外, 将 PT₁L₃有机凝胶在室温空气和动态水流环境下放置 30 天, 其硅油保有率仍高达 93% 以上(图3(f)). 这说明有机凝胶具有良好润滑液体保持能力和稳定性, 其网络中的润滑液体硅油在渗透压作用下发生缓慢地“自内到外”的自迁移.

2.2 自润滑有机凝胶的机械性能

对不同 TBMA/LMA 摩尔比的自润滑有机凝胶进行了力学性能测试. 溶胀平衡后的 PTBMA 有机凝胶的硅油含量可高达 88.5%, 难以裁切成型, 故在其硅油含量为 61.5% 时进行了力学性能测试. 从图4(a)可以看到, PTBMA 有机凝胶断裂强度和杨氏模量分别仅有 0.020 和 0.002 MPa, 但随着 PLMA 链段的引入, 自润滑有机凝胶的力学性能发生了明显变化. 当 TBMA/LMA 摩尔比为 6/1 时, 自润滑有机凝胶的断裂应力 σ_f 为 0.018 MPa, 断裂应变 ε_f 为 274.66%, 杨氏模量 E 仅为 0.083 MPa. 当 TBMA/LMA 摩尔比达到 1/3 时, PT₁L₃有机凝胶的断裂应力 σ_f 为 0.350 MPa, 断裂应变 ε_f 为 797.50%, 杨氏模量 E 达到 0.320 MPa, 拉伸功 W 为 0.82 MJ/m³ (图4(b)), 分别是 PT₆L₁ 有机凝胶的 19.4、2.9、3.8、31.5 倍. 通过与文献报道的自润滑有机凝胶进行对比, 发现 PT₁L₃有机凝胶在保持了高韧性的同时, 强度和刚度也得到了明显提升(图5). 这说明引入适当比例的 PLMA 链段后得到的共聚物有机凝胶变得强而韧. 其原因在于, 柔性长链的疏硅油 PLMA 链段使得有机凝胶原本单一的网络结构变成了由疏溶剂域形成的相分离结构, 分散了网络中的应力集中现象. 同时, 无规共聚网络的固有不均匀性也将导致有机凝胶形成多尺度非均质结构, 从而大幅提升有机凝胶的强度(σ_f)和刚度(E)^[28,29]. 当 PLMA 链段比例增加到 3/1 时, 网络中硅油提供足够的自由体积以及低 T_g 的 PLMA 长链段增强了链段的运动能力和柔顺性, 使得 PT₁L₃有机凝胶具有非常高

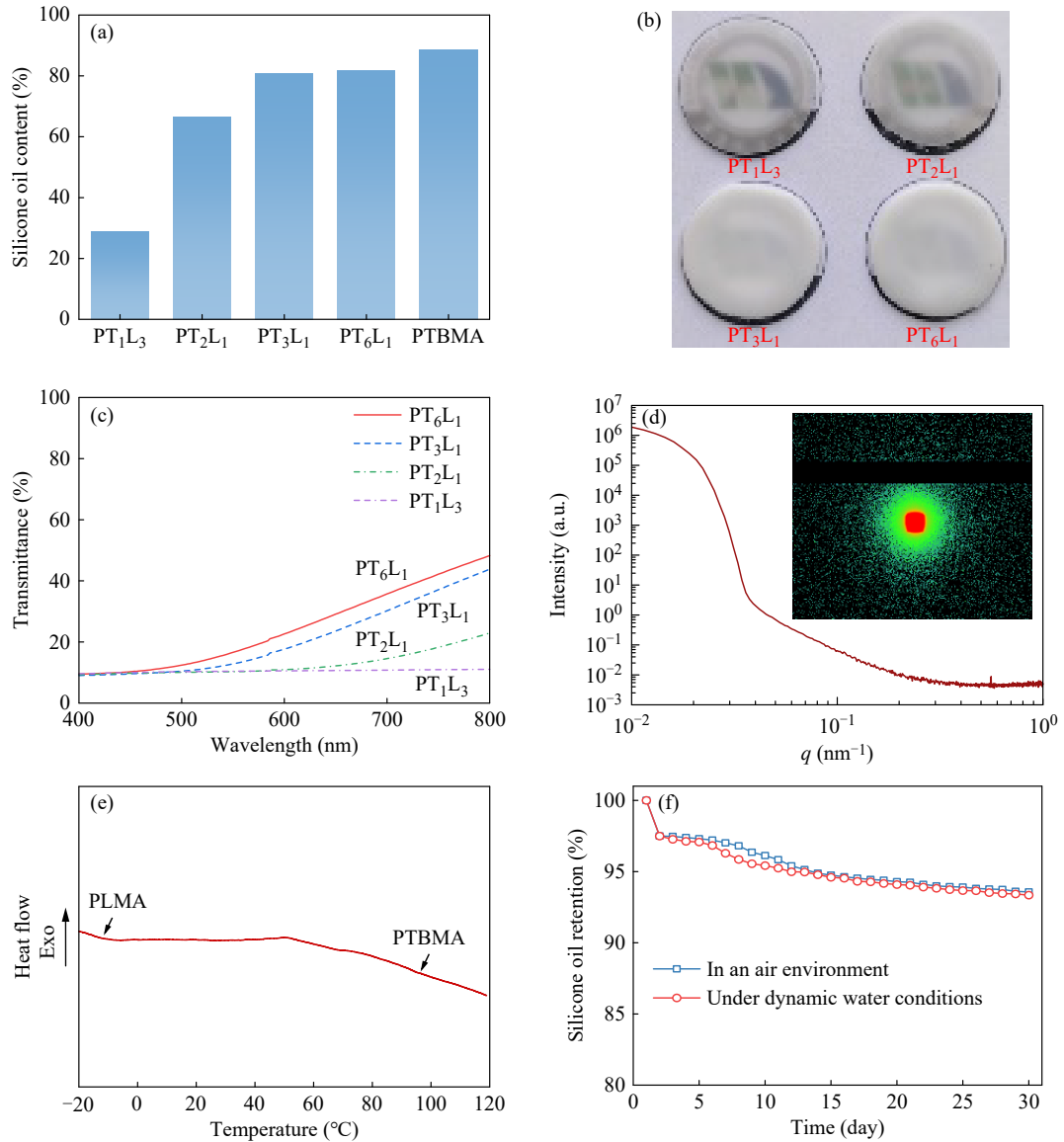


Fig. 3 (a) Silicone oil content and (b) the real picture of self-lubricating organogels at swelling equilibrium state. (c) Transmittance spectrum of organogels with various ratios; (d) 1D scattering intensity profiles of PT₁L₃ organogels. Inset: the corresponding 2D SAXS patterns; (e) DSC curve of PT₁L₃ organogels; (f) The silicone oil retention capacity of PT₁L₃ organogels placed at room temperature in an air and under dynamic water condition, respectively.

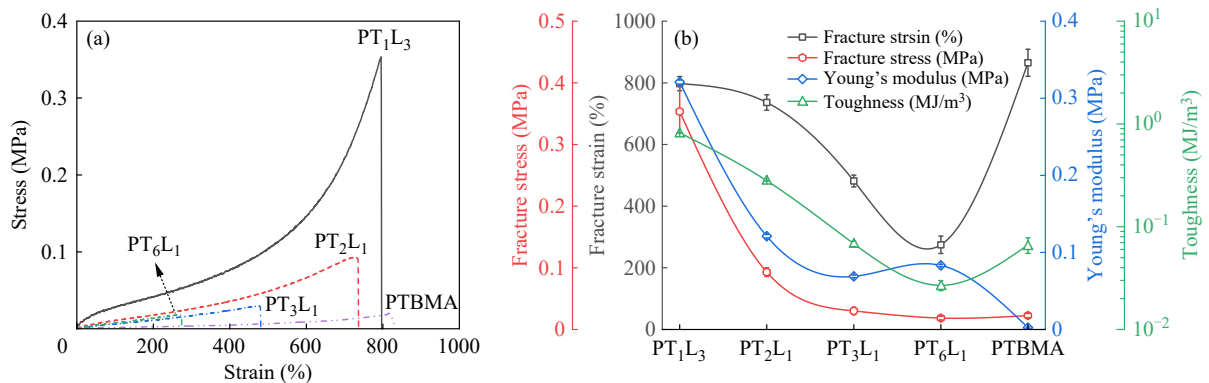


Fig. 4 (a) Stress-strain curves, and (b) the corresponding fracture stress, fracture strain, Young's modulus and toughness of self-lubricating organogels.

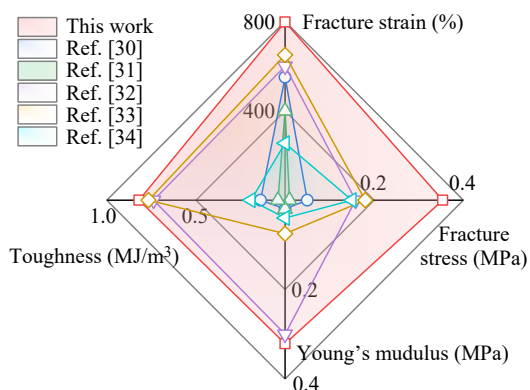


Fig. 5 A comparison of fracture stress, fracture strain, Young's modulus and toughness between the PT_1L_3 organogels in this work and those reported in the literature^[30–34].

的韧性(ε_f 和 W).

接下来,对 PT_1L_3 自润滑有机凝胶进行了疲劳性测试.首先,在室温下对有机凝胶进行了50%到300%应变下连续循环加载—卸载测试,结果如图6(a)所示.可以看到, PT_1L_3 自润滑有机凝胶在50%~300%应变范围内的连续加载—卸载中表现出较小的回滞:在50%~200%应变内,有机凝胶

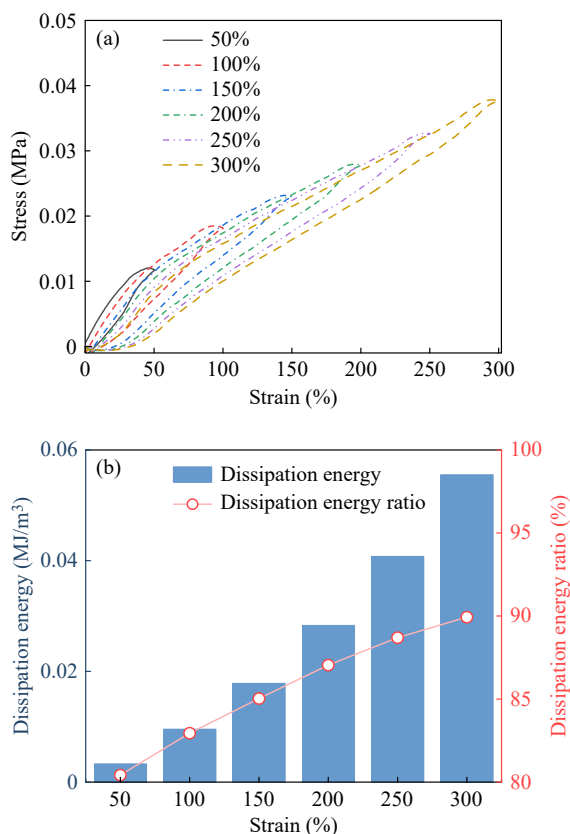


Fig. 6 (a) Cyclic loading-unloading curves at 50%–300% strain and (b) the corresponding energy dissipation and energy dissipation rate of PT_1L_3 self-lubricating organogels.

几乎没有回滞;随后,在应变为250%的拉伸中出现了约15%的回滞,继续加载至300%时的回滞增加至28%,其耗散能量从40.73升至55.49 kJ/m^3 ,能量耗散率从88.69%增加至89.93% (图6(b)).这表明自润滑有机凝胶能够承受较大的形变,并在小形变下能快速恢复到原始形态.进一步,对有机凝胶进行了100%应变时在不同静息时间下的循环加载—卸载测试.如图7(a)所示,在首次加载—卸载循环中,出现了较大的回滞环,说明自润滑有机凝胶以热量形式耗散了大量的能量,具有优异的强韧性.随着第2次无静息时间的连续加载—卸载循环,其回滞环明显变小;而后在静息3 min后,自润滑有机凝胶的加载—卸载循环曲线与首次加载—卸载循环曲线基本重合(最大应力保持不变).从图7(b)也可以看出,在首次加载—卸载循环后,其耗散能量和能量耗散率大幅降低,而后在静息1 min后,耗散能量和能量耗散率逐渐增加,并在静息1 min后基本保持不变.这表明该有机凝胶网络在受到外力加载后经

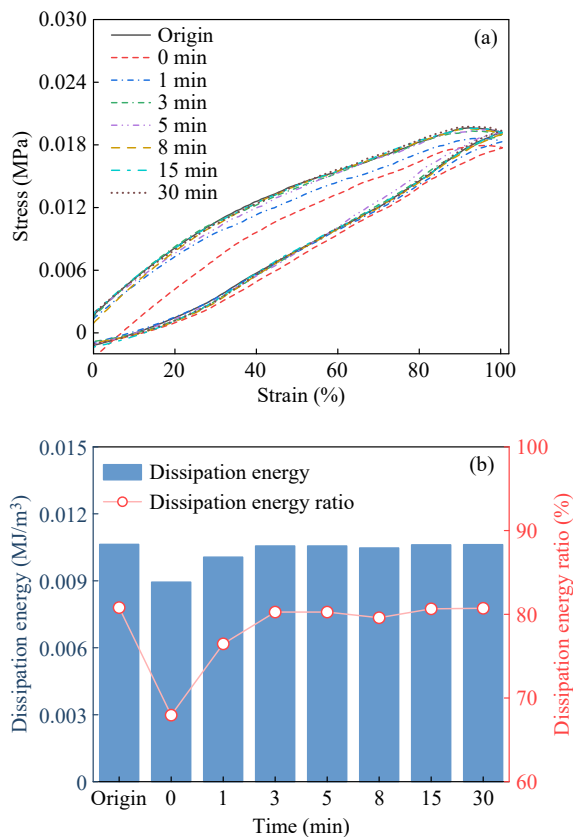


Fig. 7 (a) Cyclic loading-unloading curves after 0–30 min waiting time at 100% strain and (b) corresponding energy dissipation and energy dissipation rate of PT_1L_3 self-lubricating organogels.

历了显著的不可逆的重构，但在一定时间的静息下又可快速恢复。

在该有机凝胶中，在低 T_g 的疏硅油 PLMA 链段主导下形成了相分离结构，所导致的疏硅油微区作为有机凝胶应力集中点的分散体，在外力作用下能有效引发剪切带等能量耗散机制，从而同时提升强度和韧性。同时，具有双连续相分离结构的高分子网络在室温下处于高弹态，链段运动能力强。当外力去除后，被暂时拉直和取向的柔性链段能快速熵弹性回缩，而相分离结构与稳定的化学交联确保了网络整体的完整性，使得材料能在耗散大量能量(高韧性)的同时，实现快速、高回复率的形状恢复(低回滞)^[22,35-37]。这种“相分离+柔性基体”相协同的网络结构，是有机凝胶兼具强韧与低回滞的关键。

2.3 自润滑有机凝胶的表面斥液性

低表面能的润滑剂硅油渗透了凝胶网络，使得有机凝胶表面具有自润滑性和表面斥液性能。如图 8(a)所示，测试了不同黏度液体在有机凝胶表面的滑动行为。可以看到，不同液滴在 PT₁L₃ 有机凝胶上的滑动角 $\theta_s \leq 7^\circ$ ，具有优异的表面斥

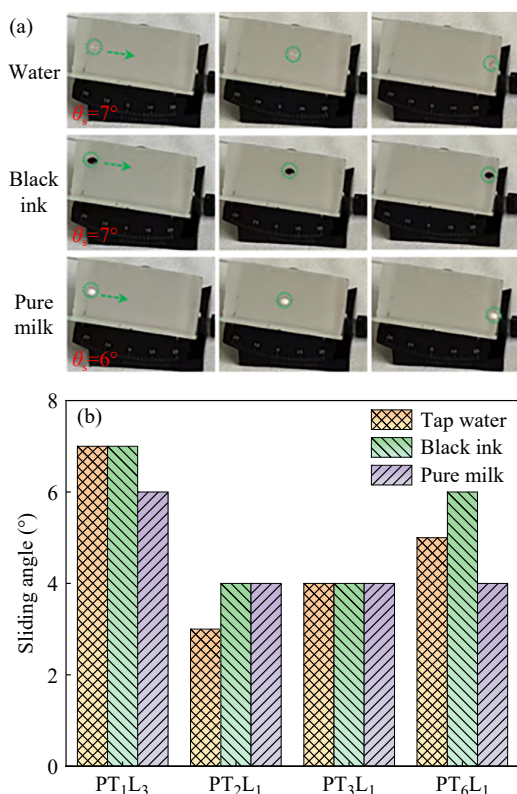


Fig. 8 (a) Surface lubrication performance and (b) sliding angles of different droplets on the surface of self-lubricating organogels.

液性能。这是由于硅油的溶胀使得有机凝胶形成自润滑表面，可以抵抗外界污渍黏附的自清洁能力。此外，对其它 TBMA/LMA 摩尔比例的有机凝胶进行了表面液滴滑动角测试。如图 8(b)所示，3 种不同黏度的液滴在有机凝胶表面的 $\theta_s < 10^\circ$ ，表明不同 TBMA/LMA 比例的有机凝胶都具有优异的抗液滴黏附能力。

2.4 自润滑有机凝胶的抗黏附性能

生物污损是一种典型的表面黏附，其一般始于多糖、糖蛋白、蛋白质分子等有机物质的吸附^[1,38]。本文对自润滑有机凝胶进行了蛋白质吸附测试，以评价材料的抗生物黏附性能。根据 BSA 溶液的标准曲线(图 9(a))和有机凝胶在 BSA 溶液中浸泡前后上清液的特征紫外吸收峰强度之差(ΔAbs)，得到了有机凝胶表面的蛋白吸附量(图 9(b))。可以看到，相比于无硅油溶胀的 PT₁L₃ 共聚物，自润滑有机凝胶的 ΔAbs 显著下降，且随着 TBMA 链段

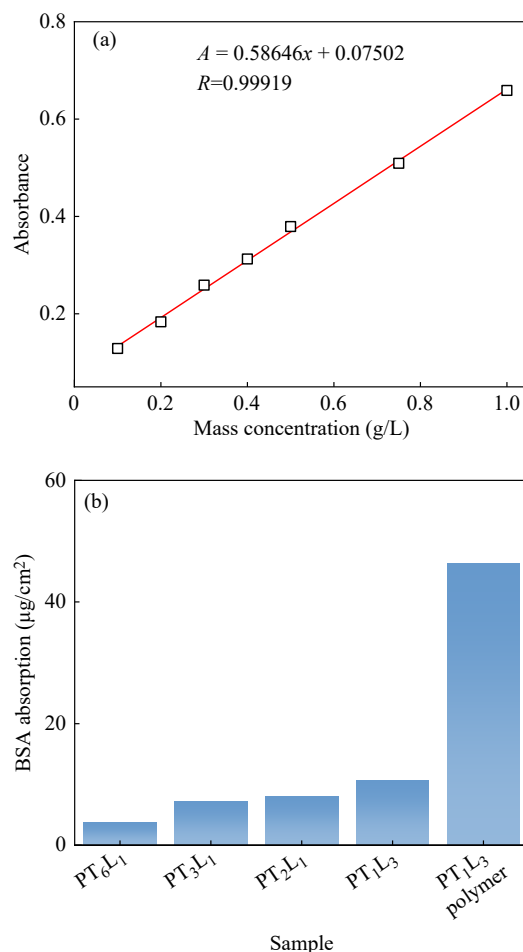


Fig. 9 (a) Standard curve of BSA solution; (b) Adsorption capacity of self-lubricating organogels after incubation in 1.0 g/L BSA solution at room temperature for 12 h.

比例的增加而显现了一定的降低趋势. 这与其表面润滑性(图8)具有相同的趋势, 表明有机凝胶优异的抗蛋白质吸附性能与其表面自润滑特性密切相关.

抗细菌黏附性也是评估材料防污性能的重要指标. 如图10, 测试了自润滑有机凝胶表面的大肠杆菌黏附情况. 从其OD值可以看到, 在自润滑有机凝胶表面的细菌细胞黏附量分别是玻璃和无硅油弹性体表面的0.10倍和0.16倍, 表明自润滑有机凝胶具有显著的抗大肠杆菌黏附性能. 研究表明, 形貌、粗糙度和液体表面等表面特性以及弹性模量等在抗生物黏附中起着关键作用^[9,39]. 低表面能硅油高度溶胀有机凝胶网络, 使得材料的弹性模量大幅降低的同时形成表面油膜层, 极大地降低了生物和表面之间的黏附力, 导致非特异性蛋白质和细菌难以在其表面黏附和定植^[8,40].

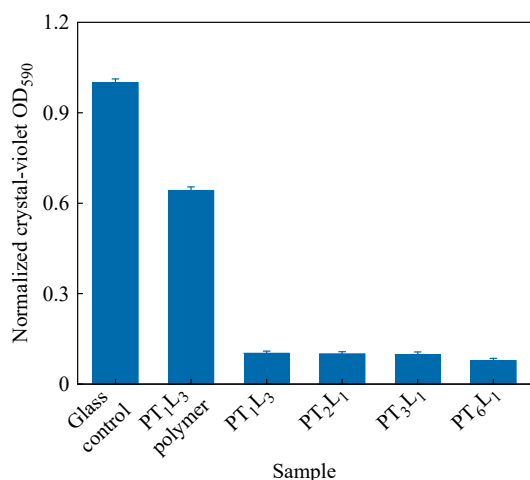


Fig. 10 Assessment of *E. coli* biofilms on various surfaces after incubation at 37 °C for 48 h. The result from the bare glass was normalized as 1 for better comparison.

如图11(a)所示, 自润滑有机凝胶还展现了出色的抗冰黏附能力. 相较于未经硅油溶胀的PT₁L₃表面(78.24 kPa), PT₁L₃、PT₂L₁、PT₃L₁和PT₆L₁有机凝胶的冰黏附强度分别下降至20.12、19.44、19.36和19.1 kPa. 这是由于低表面能硅油溶胀的高分子网络及其润滑作用, 导致了经长时间成核与结晶所形成的积冰与有机凝胶表面作用力较弱. 因此, 在较小的剪切力作用下即可将积冰从有机凝胶表面剥离. 通过与报道的SLIPS、超疏水表面、PDMS有机凝胶等几种典型的防冰材料相比(图11(b))^[41-45], 本工作制备的自润滑有机凝胶在抗冰黏附上也具有较明显的优势.

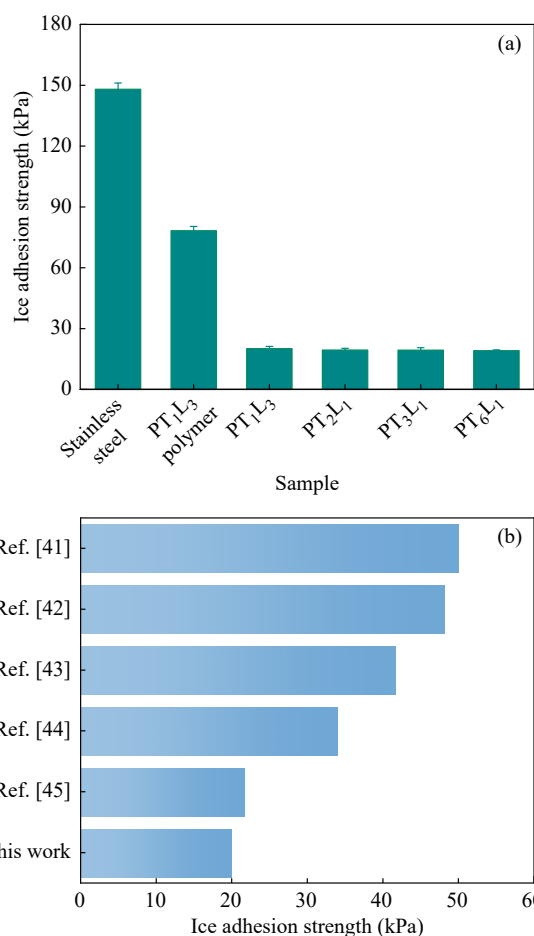


Fig. 11 (a) Adhesion strength between ice and various self-lubricating organogels surfaces -20 °C for 4 h; (b) A comparison of ice adhesion strength between the self-lubricating organogels in this work and the reported SLIPS, superhydrophobic surfaces and organogels^[41-45].

综合来看, 基于疏硅油链段和亲硅油链段的共聚, 有机凝胶网络形成了双连续的相分离结构, 为其可调的硅油溶胀能力、力学性能、表面润滑性能及抗黏附性能构建了桥梁. 一方面, 通过PLMA链段的疏硅油相互作用形成了相分离结构, 从而增强了有机凝胶网络的力学性能; 另一方面, 亲硅油PTBMA链段赋予网络的硅油溶胀能力, 使得有机凝胶具有高润滑剂含量和保持率, 从而导致表面自润滑油膜的形成和动态补充能力. 同时, 显著降低了有机凝胶的宏观模量, 使之与生物膜、冰等黏附物的模量更匹配, 减少了因形变不匹配导致的机械互锁, 实现了“以柔克刚”式的抗黏附.

3 结论

制备了一种由硅油和疏水性高分子网络组成

的高强韧自润滑有机凝胶。柔性长链的低 T_g 疏硅油 PLMA 链段使有机凝胶网络产生疏溶剂的相分离结构，有效地分散了网络在外力加载时的应力集中。同时，高弹态的网络赋予高分子链段高运动能力，导致有机凝胶在外力加载后能快速恢复形变，表现出优异自恢复和抗疲劳性能。润滑剂

硅油充分渗透在高分子网络中，赋予了有机凝胶自润滑表面特性，使其具有优异的表面自清洁、防污和抗冰黏附能力。本研究所采用的策略简便、高效且普适，可为高性能自润滑有机凝胶的开发及其在抗黏附涂层材料领域的应用提供重要参考。

REFERENCES

- 1 Han, X.; Wu, J. H.; Zhang, X. H.; Shi, J. Y.; Wei, J. X.; Yang, Y.; Wu, B.; Feng, Y. H. Special issue on advanced corrosion-resistance materials and emerging applications. The progress on antifouling organic coating: from biocide to biomimetic surface. *J. Mater. Sci. Technol.*, **2021**, 61, 46–62.
- 2 Tong, Z. M.; Guo, H. Y.; Di, Z. G.; Chen, S. F.; Song, L. N.; Hu, J. K.; Hou, Y.; Zhan, X. L.; Zhang, Q. H. P. pavoninus-inspired smart slips marine antifouling coating based on coumarin: antifouling durability and adaptive adjustability of lubrication. *Adv. Funct. Mater.*, **2024**, 34(8), 2310702.
- 3 Zeng, L. P.; Lin, X. X.; Li, P.; Liu, F. Q.; Guo, H.; Li, W. H. Recent advances of organogels: from fabrications and functions to applications. *Prog. Org. Coat.*, **2021**, 159, 106417.
- 4 Maan, A. M. C.; Hofman, A. H.; de Vos, W. M.; Kamperman, M. Recent developments and practical feasibility of polymer-based antifouling coatings. *Adv. Funct. Mater.*, **2020**, 30(32), 2000936.
- 5 陈再宏, 虞海超, 吴子良, 左敏, 宋义虎, 杜淼, 郑强. 高强度两性离子聚合物防污减阻水凝胶涂层的制备. *高分子学报*, **2024**, 55(1), 99–107.
- 6 Yang, L. H.; Li, S.; Zhang, R. Y. Copper threatens marine ecosystems. *Science*, **2025**, 389(6763), 884.
- 7 Wang, Y. L.; Yao, X.; Wu, S. W.; Li, Q. Y.; Lv, J. Y.; Wang, J. J.; Jiang, L. Bioinspired solid organogel materials with a regenerable sacrificial alkane surface layer. *Adv. Mater.*, **2017**, 29(26), 1700865.
- 8 Parker, M. C.; Shome, A.; Pinon, V. D.; Crutchfield, N.; Garren, M.; Brisbois, E. J.; Handa, H. Anti-biofouling organogel and substrate independent coatings with a continuous lubricating network. *Chem. Eng. J.*, **2025**, 519, 165456.
- 9 Amini, S.; Kolle, S.; Petrone, L.; Ahanotu, O.; Sunny, S.; Sutanto, C. N.; Hoon, S.; Cohen, L.; Weaver, J. C.; Aizenberg, J.; Vogel, N.; Miserez, A. Preventing mussel adhesion using lubricant-infused materials. *Science*, **2017**, 357(6352), 668–673.
- 10 Zeng, L. P.; Fu, Y. M.; Cui, H. Y.; Zhao, Y. L.; Liu, Y.; Lin, X. X.; Chao, T.; Guo, H. Strong, smart, and slippery organogels by network glassification. *Adv. Funct. Mater.*, **2024**, 34(44), 2407397.
- 11 Han, S. W.; Hu, Y. K.; Wei, J.; Li, S. W.; Yang, P. P.; Mi, H. Y.; Liu, C. T.; Shen, C. Y. A semi-interpenetrating poly(ionic liquid) network-driven low hysteresis and transparent hydrogel as a self-powered multifunctional sensor. *Adv. Funct. Mater.*, **2024**, 34(32), 2401607.
- 12 Gao, Y. Y.; Shi, L.; Lu, S. Y.; Zhu, T. X.; Da, X. Y.; Li, Y. H.; Bu, H. T.; Gao, G. X.; Ding, S. J. Highly stretchable organogel ionic conductors with extreme-temperature tolerance. *Chem. Mater.*, **2019**, 31(9), 3257–3264.
- 13 Zhang, H. X.; Niu, W. B.; Zhang, S. F. Extremely stretchable, stable, and durable strain sensors based on double-network organogels. *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **2018**, 10(38), 32640–32648.
- 14 Yu, W.; Wei, Y. N.; Gao, D.; Li, G. X.; Yuan, W. J.; Liu, T.; Xing, C. F.; Meng, C. Z.; Guo, S. J. Exceptional n-type ionic thermoelectric hydrogels by synergistic hydrophobic and coordination interactions. *Adv. Mater.*, **2025**, 37(44), e10199.
- 15 Zhu, J. M.; Ding, J. H.; Li, Y. K.; He, Z.; Ma, Z. Z.; Dong, W. Q.; Zhao, X. C.; Li, X. H. Locking organic solvents by crystallization-induced polymer network. *Constr. Build. Mater.*, **2024**, 451, 138844.
- 16 Sun, J. W.; Duan, J. Z.; Zhang, Y. M.; Zhai, X. F.; Zhu, Y. Q.; Yang, X.; Liu, X. D.; Zhang, R. Y.; Hou, B. R. Transparent hybrid coatings for marine antifouling: synergizing amphiphilicity, nanocellulose lubrication, and electrostatic repulsion. *Chem. Eng. J.*, **2025**, 521, 166869.
- 17 Zeng, Z.; Li, Z. Y.; Li, Q. L.; Song, G. J.; Huo, M. Strong and tough nanostructured hydrogels and organogels prepared by polymerization-induced self-assembly. *Small Meth.*, **2023**, 7(6), 2201592.
- 18 Zeng, L. P.; Cui, H. Y.; Peng, H. L.; Sun, X. H.; Liu, Y.; Huang, J. L.; Lin, X. X.; Guo, H.; Li, W. H. Oleophobic interaction mediated slippery organogels with ameliorated mechanical performance and satisfactory fouling-resistance. *J. Mater. Sci. Technol.*, **2022**, 121, 227–235.

- 19 Zeng, L. P.; Cui, H. Y.; Liu, Y.; Lin, X. X.; Wang, Z. A.; Guo, H.; Li, W. H. Tough antifouling organogels reinforced by the synergistic effect of oleophobic and dipole-dipole interactions. *J. Ind. Eng. Chem.*, **2022**, 114, 205–212.
- 20 Fu, Y. M.; Huang, Y.; Wang, X. R.; Ng, K.; Li, F. Y.; Zhang, X.; Wang, X. L.; Guo, H. Tough lubricant organogels with recyclable microstructured surfaces for versatile applications. *Adv. Compos. Hybrid Mater.*, **2025**, 8(6), 436.
- 21 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.
- 22 Li, X. X.; Wu, B. H.; Sun, S. T.; Wu, P. Y. Making sticky-slippery switchable fluorogels through self-adaptive bicontinuous phase separation. *Adv. Mater.*, **2024**, 36(48), 2411273.
- 23 Zhuo, Y. Z.; Xiao, S. B.; Amirfazli, A.; He, J. Y.; Zhang, Z. L. Polysiloxane as icephobic materials-The past, present and the future. *Chem. Eng. J.*, **2021**, 405, 127088.
- 24 Ma, X. T.; Zhou, X.; Ding, J. J.; Huang, B.; Wang, P. Y.; Zhao, Y.; Mu, Q. Y.; Zhang, S. H.; Ren, C. G.; Xu, W. L. Hydrogels for underwater adhesion: Adhesion mechanism, design strategies and applications. *J. Mater. Chem. A*, **2022**, 10(22), 11823–11853.
- 25 Wang, Y. J.; Zhang, X. N.; Song, Y. H.; Zhao, Y. P.; Chen, L.; Su, F. M.; Li, L. B.; Wu, Z. L.; Zheng, Q. Ultrastiff and tough supramolecular hydrogels with a dense and robust hydrogen bond network. *Chem. Mater.*, **2019**, 31(4), 1430–1440.
- 26 Liu, C.; He, C. W.; Dai, X. B.; Yan, L. T.; Xu, H. P. Achieving mechanical evolution in polymer materials through phase evolution induced by visible light. *Adv. Mater.*, **2025**, 37(47), e08549.
- 27 Yan, X. X.; Zhang, J. R.; Sheng, Y. F.; Chen, K.; Zhao, H. Y.; Zhang, Q.; Cheng, Y. L.; Ge, Z. S.; Ming, X. Q.; Zhang, Y. F. Decoupling the trade-off between mechanical properties and ionic conductivity in hydrogel polymer electrolytes by anomalous water-induced microphase separation. *ACS Nano*, **2025**, 19(47), 40579–40593.
- 28 Wang, M. X.; Zhang, P. Y.; Shamsi, M.; Thelen, J. L.; Qian, W.; Truong, V. K.; Ma, J.; Hu, J.; Dickey, M. D. Tough and stretchable ionogels by *in situ* phase separation. *Nat. Mater.*, **2022**, 21(3), 359–365.
- 29 Chen, Z. J.; Sun, Y. Q.; Zhao, Z. H.; Pan, L. J.; Li, C. H. Ultrarobust eutectogels with nanophase separation structure for self-damping pressure sensing. *Chem. Eng. J.*, **2025**, 522, 168139.
- 30 Zhu, Z. L.; Lu, D. D.; Zhu, M. N.; Zhang, P.; Xiang, X. D. Smart organogels with antismelling, strong adhesion, and freeze-tolerance for multi-environmental wearable bioelectronic devices. *Chem. Mater.*, **2024**, 36(9), 4456–4467.
- 31 Zhao, Y. Y.; Ohm, Y.; Liao, J. H.; Luo, Y. C.; Cheng, H. Y.; Won, P.; Roberts, P.; Carneiro, M. R.; Islam, M. F.; Ahn, J. H.; Walker, L. M.; Majidi, C. A self-healing electrically conductive organogel composite. *Nat. Electron.*, **2023**, 6(3), 206–215.
- 32 Wu, X. X.; Qi, Z. Q.; Zhang, W. B.; Cai, H. Z.; Han, X. S.; Yang, K. Y. Lignin-stabilized tough, sticky, and recyclable liquid metal/protein organogels for multifunctional epidermal smart materials. *Small*, **2024**, 20(46), 2405126.
- 33 Sheng, F. F.; Zhang, B.; Zhang, Y. H.; Li, Y. Y.; Cheng, R. W.; Wei, C. H.; Ning, C.; Dong, K.; Wang, Z. L. Ultrastretchable organogel/silicone fiber-helical sensors for self-powered implantable ligament strain monitoring. *ACS Nano*, **2022**, 16(7), 10958–10967.
- 34 Ge, S. J.; Liu, S. N.; Kong, Y.; Gu, Z. Z.; Xu, H. Sandwich-structured organogel with asymmetric-adhesion and adaptive optical regulation for simultaneous sensing of human motion and temperature without interference. *Adv. Funct. Mater.*, **2025**, 35(34), 2424314.
- 35 Xiong, J. F.; Wang, X. W.; Li, L. L.; Li, Q. N.; Zheng, S. J.; Liu, Z. Y.; Li, W. Z.; Yan, F. Low-hysteresis and high-toughness hydrogels regulated by porous cationic polymers: the effect of counteranions. *Angew. Chem. Int. Ed.*, **2024**, 63(1), e202316375.
- 36 Huang, G.; Guo, H. L.; Tang, Z. F.; Peng, S. W.; Liang, H. S.; Meng, G. Z.; Zhang, P. Tough hydrophobic hydrogels for monitoring human moderate motions in both air and underwater environments. *Chem. Mater.*, **2023**, 35(15), 5953–5962.
- 37 Chen, G. Q.; Zhang, Y. T.; Li, S. N.; Zheng, J. X.; Yang, H. L.; Ren, J. Y.; Zhu, C. J.; Zhou, Y. C.; Chen, Y. M.; Fu, J. Flexible artificial tactility with excellent robustness and temperature tolerance based on organohydrogel sensor array for robot motion detection and object shape recognition. *Adv. Mater.*, **2024**, 36(45), 2408193.
- 38 Callow, J. A.; Callow, M. E. Trends in the development of environmentally friendly fouling-resistant marine coatings. *Nat. Commun.*, **2011**, 2, 244.
- 39 Deshpande, A. A.; Torris, A. T.; Pahari, S.; Menon, S. K.; Badiger, M. V.; Rajamohanam, P. R.; Wadgaonkar, P. P.; Roy, S.; Tonelli, C. Mechanism of the formation of microphase separated water clusters in a water-mediated physical network of perfluoropolyether tetraol. *Soft Matter*, **2018**, 14(12), 2339–2345.
- 40 Chaudhury, M. K.; Finlay, J. A.; Chung, J. Y.; Callow, M. E.; Callow, J. A. The influence of elastic modulus and thickness on the release of the soft-fouling green alga *Ulva linza* (syn. *Enteromorpha linza*) from poly(dimethylsiloxane) (PDMS) model networks. *Biofouling*, **2005**, 21(1), 41–48.

- 41 Coady, M. J.; Getangama, N. N. K.; Khalili, A.; Wood, M.; Nielsen, K. E.; de Bruyn, J. R.; Hutter, J. L.; Klassen, R. J.; Kietzig, A. M.; Ragogna, P. J. Highly cross-linked UV-cured siloxane copolymer networks as icephobic coatings. *J. Polym. Sci.*, **2020**, 58(7), 1022–1029.
- 42 Liu, C.; Li, Y. L.; Lu, C. G.; Liu, Y.; Feng, S. L.; Liu, Y. H. Robust slippery liquid-infused porous network surfaces for enhanced anti-icing/deicing performance. *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **2020**, 12(22), 25471–25477.
- 43 Liu, J. C.; Lin, Y. X.; Zhang, H. B.; Liu, X. L.; He, H.; Li, X. Y.; Chen, L.; Tian, X. Y. Regulation of polyamide-66 lamellar crystal for superhydrophobicity and enhanced anti-icing performance. *Appl. Surf. Sci.*, **2025**, 685, 162000.
- 44 Chen, Y. M.; Feng, A. X. Anti-ice PMMA surface design and processing. *Processes*, **2024**, 12(7), 1322.
- 45 Talebi Chavan, R.; Pakzad, H.; Rezaee, B.; Moosavi, A. Liquid-infused surface on optimized anodic porous aluminum for anti-frost and anti-ice application. *Tribol. Int.*, **2025**, 201, 110237.

Research Article

Tough Self-lubricating Organogels with Phase Separation Structures and their Anti-adhesion Properties

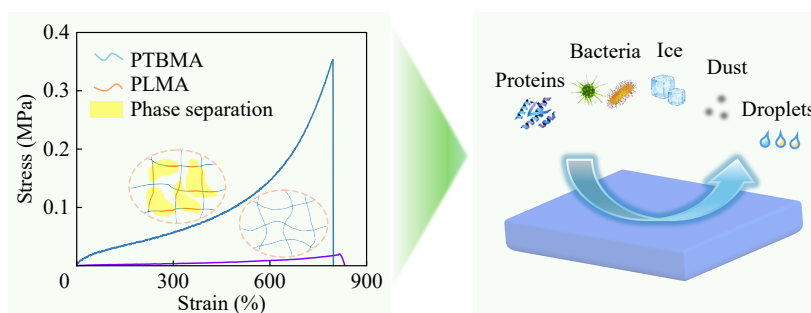
Yong-long Zhao¹, Wan-feng Li³, Jia-jie Zhang¹, Jia-li Zhang¹, Shao-ming Yang¹,

Yong-xin Liu¹, Liang-peng Zeng^{1,2*}

(¹School of Materials Science and Engineering, ²Nanchang Key Laboratory for Smart Biomaterials Regulation and Adaptation, East China Jiaotong University, Nanchang 330013)

(³Institute of Chemistry, Henan Academy of Sciences, Zhengzhou 450046)

Abstract Surface adhesion is a common phenomenon in both industrial production and daily life, often adversely affects the reliable operation of facilities and equipment. Organogels that utilize lubricants as solvents have demonstrated distinctive advantages in anti-adhesion, owing to their unique three-dimensional network structure and surface self-lubricating properties. In this work, a low-hysteresis and high-toughness self-lubricating organogel was prepared by copolymerizing the silicone-phobic poly(lauryl methacrylate) (PLMA) segments with low glass transition temperature (T_g) and silicone-philic poly(*tert*-butyl methacrylate) (PTBMA) with high T_g . The resulting continuous phase-separated structure, combined with the high flexibility of the network, synergistically endowed the self-lubricating organogels with excellent mechanical properties and self-recovery capability. Specifically, the PT₁L₃ self-lubricating organogels with the TBMA/LMA molar ratio of 1/3 exhibited fracture stress of 0.35 MPa, fracture strain of 798%, and Young's modulus of 0.32 MPa. After a 3-min waiting period, the organogels achieved a self-recovery rate of 94.6% in loading-unloading cycles. Furthermore, droplets slide off the surface at a sliding angle of $\leq 7^\circ$, while bovine serum albumin (BSA) and *Escherichia coli* (*E. coli*) adhesion were reduced by 76.6% and 90%, respectively. The ice adhesion strength was as low as 20 kPa. These results indicate that the organogels hold great potential for anti-adhesion and self-cleaning applications.



Keywords Organogels; Self-lubrication; Self-recovery capability; Anti-adhesion; Phase separation

* Corresponding author: Liang-peng Zeng, E-mail: zenglp@ecjtu.edu.cn