凝胶电解质抑制锌枝晶的界面多尺度调控机制研究进展

付帅[1]，曾燕飞[1]，刘启凡[1*]

1.广西先进结构材料与碳中和重点实验室，先进材料与智能制造广西高校工程研究中心，材料与环境学院，广西民族大学，南宁，531000

摘　要：水系锌离子电池凭借本征安全、成本低廉和环境友好的优势，在大规模储能与柔性可穿戴电子领域展现出广阔前景，但锌金属负极的枝晶生长、析氢腐蚀及界面钝化等问题严重制约其循环稳定性。凝胶电解质兼具较高的离子传导能力与结构调控优势，为改善锌负极界面稳定性提供了有效途径。本文综述了凝胶电解质抑制锌枝晶的界面调控研究进展，构建涵盖分子、微观、介观和宏观尺度的多尺度分析框架，分别从配位-水合结构重构、孔道结构与离子输运、界面离子通量及多物理场分布、力学性能与界面接触等方面，系统分析不同尺度对锌沉积行为的影响。在此基础上，评述天然多糖基、羧化双网络及聚丙烯酰胺/海藻酸钠配位网络等典型凝胶电解质体系的结构设计与性能特点，重点总结界面 Zn^{2+}通量均匀化、锌沉积由三维向二维转变、成核动力学优化及水活性调控等多尺度耦合机制。最后，分析了配位网络构效关系、力学性能与离子传输协同优化、实际工况适应性及规模化制备等方面面临的挑战，并展望凝胶电解质界面多尺度协同调控的发展方向，以期为高性能水系锌离子电池凝胶电解质的设计提供参考。

关键词：水系锌离子电池；凝胶电解质；锌枝晶；多尺度界面调控；配位跳跃传输；锌离子迁移数

Research Progress on Interfacial Multiscale Regulation Mechanisms of Gel Electrolytes for Zinc Dendrite Suppression

Shuai Fu[1], Yanfei Zeng[1], Qifan Liu[1,*]

1.Guangxi Key Laboratory of Advanced Structural Materials and Carbon Neutralization, Guangxi University Engineering Research Center of Advanced Materials and Intelligent Manufacturing, School of Materials and Environment, Guangxi Minzu University, Nanning 530006, China

Abstract: Aqueous zinc-ion batteries (AZIBs) have attracted considerable attention for large-scale energy storage and flexible electronics owing to their intrinsic safety, low cost, and environmental compatibility. However, dendrite growth, hydrogen evolution, and interfacial passivation at Zn metal anodes severely limit their cycling stability. Gel electrolytes offer an effective approach to improving interfacial stability by combining ionic transport capability with structural regulation. This review summarizes recent progress in interfacial regulation mechanisms of gel electrolytes for zinc dendrite suppression and establishes a multiscale analytical framework encompassing molecular, microscopic, mesoscopic, and macroscopic levels. The effects of coordination-hydration reconstruction, pore structures and ion transport, interfacial ion flux and multiphysics-field distribution, as well as mechanical properties and interfacial contact are systematically discussed. Representative natural polysaccharide-based, carboxylated double-network, and polyacrylamide/sodium alginate coordination-network gel electrolytes are further reviewed in terms of their structural designs and electrochemical characteristics. Particular attention is paid to the multiscale coupling mechanisms involving interfacial Zn^{2+} flux homogenization, the transition from three-dimensional to two-dimensional Zn deposition, optimized nucleation kinetics, and

water-activity regulation. Finally, current challenges concerning coordination-network structure-property relationships, the synergistic optimization of mechanical properties and ion transport, practical operating conditions, and scalable fabrication are discussed, followed by perspectives on future developments in multiscale interfacial regulation. This review provides insights into the design of advanced gel electrolytes for high-performance aqueous zinc-ion batteries.

Keywords: Aqueous zinc-ion batteries; Gel electrolytes; Zinc dendrites; Multi-scale interfacial regulation; Coordination-hopping transport; Zinc-ion transference number

1 引言

水系锌离子电池（AZIBs）凭借金属锌储量丰富、理论比容量高（820 mAh·g^{-1}）、氧化还原电位适中以及本征安全等优势，被视为大规模储能和柔性电子领域极具潜力的下一代电化学储能体系[7,13]。然而，锌金属负极在水系电解液中普遍面临枝晶生长、析氢反应（HER）、腐蚀与界面钝化等多重失稳问题，且这些耦合的界面不稳定性在高倍率、长循环工况下尤为突出，直接导致库仑效率下降和容量快速衰减[7,9]。究其本质，Zn^{2+}在电解液中的输运行为在很大程度上决定了界面离子通量分布、反应动力学与沉积形貌：离子供给不足或不均会在电极表面诱发局部浓度梯度，进而引起不均匀的金属生长[2]。因此，构建能够调控 Zn^{2+}迁移路径、实现快速离子输运并维持界面通量均一的电解质体系，成为发展高性能 AZIBs 的根本挑战[5,6]。

凝胶电解质（或水凝胶聚合物电解质）将液态电解质的高离子电导率与准固态体系的结构稳定性相结合，为调控锌负极界面化学提供了有效平台[5,6,8]。近年来，大量研究通过在聚合物网络中引入羧基、羟基、酰胺等亲锌官能团，增强 Zn^{2+}配位、重构局部溶剂化环境、抑制副反应并改善锌沉积行为[5,11]。然而，既有凝胶电解质设计大多集中于配位官能团的化学种类与数量，而较少关注其在聚合物网络中的空间组织与连通性[2]。分散孤立的配位位点往往只能提供局部吸附，难以构建长程连续的输运通道，导致 Zn^{2+}迁移仍以扩散为主，在高倍率下依然诱发离子通量积累、浓差极化与非均匀沉积[2]。与此同时，传统高交联凝胶虽可通过机械刚度压制枝晶，但孔道迂曲、水合连续性被破坏，在大电流下界面离子耗尽加剧[1]。可见，单纯依靠机械强化、局部溶剂化工程或单一界面修饰，均难以从根本上解决高通量条件下离子输运与界面反应的失衡[1,5]。

事实上，凝胶电解质对锌负极的保护并非单一因素作用的结果，而是分子配位环境、微观孔道结构、介观离子通量与宏观力学界面共同调控的跨尺度耦合过程。为系统认识不同尺度界面调控对锌沉积行为的影响，本文围绕凝胶电解质抑制锌枝晶这一主题，对近年来相关研究进展进行综述与评述，构建涵盖分子、微观、介观和宏观尺度的分析框架，重点从配位-水合结构重构、孔道结构与离子输运、界面离子通量及多物理场分布、力学性能与界面接触等方面，阐述不同尺度的作用机制及其内在联系。在此基础上，以海藻酸钠-卡拉胶（SA-Car）、明胶/海藻酸钠-乙酸（Gel/SA-acetate）以及聚丙烯酰胺/海藻酸钠配位跳跃凝胶（SHARK-Gel 及其连续配位架构 MCR-Gel）为典型代表，比较不同体系的结构设计、离子输运特征与电化学性能，归纳界面 Zn^{2+}通量均匀化、锌沉积模式转变、成核动力学优化及水活性调控等多尺度耦合机制，进一步分析当前研究面临的关键问题并展望未来发展方向，以期为高性能水系锌离子电池凝胶电解质的设计与界面调控提供参考[1,2,3,4]。

2 界面多尺度调控的理论框架

凝胶电解质对锌负极界面的调控跨越多个特征尺度，各尺度承担不同的物理化学功能，又相互耦合、缺一不可。本文将界面多尺度调控划分为分子、微观、介观与宏观四个层级：分子尺度决定Zn^{2+}的配位-水合环境与去溶剂化能垒；微观尺度决定离子扩散路径与输运阻力；介观尺度决定界面Zn^{2+}通量与电场、浓度场的时空分布；宏观尺度则决定凝胶的力学完整性及其与锌电极的界面接触与形变适应性[1,2,8]。四个层级层层递进，共同决定锌沉积的成核与生长模式。

2.1 分子尺度：配位环境与溶剂化重构

分子尺度关注 Zn^{2+}与高分子官能团及水分子的相互作用，包括溶剂化鞘重构、配位位点动态交换与氢键网络重排，是从本源决定离子选择性输运与去溶剂化能垒的关键层级[1,2]。凝胶网络中的羧基、羰基、羟基、酰胺等官能团可通过与 Zn^{2+}的配位作用重塑其局部化学环境，降低自由水活性并抑制界面副反应[5,11]。在高交联网络中，聚合物链高度缠结挤压水分子，水合连续性被打断，Zn^{2+}溶剂化鞘受损，离子输运阻力增大[1]；而在低交联体系中，连续富水输运域得以保留，羧基与羰基等官能团交替提供短驻留瞬态配位位点，Zn^{2+}可沿连续水合通道在相邻位点间发生可逆的“驻留-交换-跳跃”，实现选择性输运[1]。密度泛函理论（DFT）计算表明，Zn^{2+}与羧基的结合能显著强于其与水分子及酰胺羰基的结合，配位强度适中既避免了离子禁锢，又能定向改变输运模式[1,2]。此外，通过调控氢键网络可重构水的存在形态，抑制界面析氢与腐蚀副反应[2]。

2.2 微观尺度：孔道结构与离子输运

微观尺度对应凝胶的孔隙结构与聚合物链段构象，直接决定离子扩散路径与输运阻力[8]。多孔、高度连通的凝胶网络可缩短离子扩散路径、降低局部输运阻力，从而提升离子电导率与倍率性能[3,11]。反之，致密迂曲的孔道会阻断离子迁移路径，加剧浓度极化[1]。冷冻干燥后的低交联凝胶多呈现蜂窝状或多级连通的孔道结构，为 Zn^{2+}的高效输运提供了微观基础[1,3]。微观尺度还与分子尺度的配位设计协同：只有孔道连通、水合环境完整，分子层面的配位位点才能被长程利用[1,2]。

2.3 介观尺度：离子通量与多物理场分布

介观尺度关注 Zn^{2+}浓度场、电场在电极/电解质界面的时空演化，是连接微观离子输运与宏观沉积形貌的桥梁[1,2]。高 Zn^{2+}迁移数可抑制阴离子反向迁移、缓解浓差极化[1,10]；连续配位通道可均化界面 Zn^{2+}通量与电场分布，削弱尖端效应[2]。COMSOL 多物理场仿真直观显示：在高度交联凝胶中，电极表面微凸起尖端电场显著增强，短时间内即形成陡峭的 Zn^{2+}耗尽层；而在具备连续输运通道的凝胶体系中，界面浓度梯度平缓、电场热点被抹平，从而延缓了离子耗尽并削弱了枝晶生长的正反馈[1,2]。介观尺度的通量与场分布均一化，是诱导二维致密沉积、抑制三维枝晶生长的直接原因[1,2]

2.4 宏观尺度：力学性能与界面接触

宏观尺度关注凝胶整体力学性能及其与锌电极的界面接触和形变适应性[8,12]。凝胶电解质不仅是离子传导介质，还需在循环过程中缓冲锌沉积的体积变化、维持紧密的电极-电解质界面接触。过度追求高模量往往带来脆性增大、易开裂与界面剥离等问题，而界面空隙会成为新的电场畸变位点，诱发局部枝晶[1,2]。通过可逆氢键、弱离子相互作用与链段滑移耗散应力，可实现刚度与韧性的平衡，在循环形变下持续保持界面接触[1,12]。需要强调的是，宏观力学属于辅助保障因素：若分子与介观层面的离子输运存在缺陷，即使模量极高，在高电流密度下仍会发生界面离子耗尽，枝晶依然难以避免[1,2]。

3 三类典型凝胶电解质体系

3.1 SA-Car 凝胶电解质（海藻酸钠-卡拉胶）

SA 与 iota-卡拉胶（iota-Car）是储量丰富、可再生的天然生物大分子。Ge 等利用 SA 与 iota-卡拉胶通过 Zn^{2+}离子交联制备复合凝胶电解质（SA-Car），SA 富含羧基与羟基、卡拉胶富含磺酸基，二者与 Zn^{2+}之间可形成离子缔合与交联，并重构氢键网络锚定自由水分子，其丰富的官能团可有效抑制水活性并促进均匀锌沉积[3]。该 SA-Car 凝胶电解质离子电导率达 5.89×10^{-2} $S\cdot cm^{-1}$、锌离子迁移数 0.58，Zn||Zn 对称电池在循环中稳定运行超过 500 h，同时展现出良好的机械柔韧性与可持续性[3]。该体系验证了天然生物大分子通过离子交联与水活性调控实现锌枝晶抑制与稳定循环的可行性，其离子电导率较高、兼具环境友好性，但锌离子迁移数与循环寿命相对有限。

3.2 Gel/SA-acetate 凝胶电解质（明胶/海藻酸钠-乙酸）

针对锌金属负极枝晶生长、析氢与钝化等失稳问题，Tian 等构建了带负电的羧化双网络水凝胶电解质（明胶/海藻酸钠-乙酸，Gel/SA-acetate）以稳定界面电化学[4]。该体系中，亲锌官能团与水分子重构氢键网络，借助“链-液协同效应”优化 Zn^{2+}溶剂化鞘，诱导水合 Zn^{2+}的定向迁移；水凝胶层与锌片的牢固化学键合兼具抗催化作用，显著降低水活性并消除副反应[4]。基于 Gel/SA-acetate 的对称电池实现 1580 h 的可逆沉积/剥离，非对称电池运行 5600 h 且平均库仑效率高达 99.9%；组装锌离子混合电容器循环 15000 次后容量保持率达 98.5%、能量密度达 236.8 $Wh\cdot kg^{-1}$，并表现出优异的机械适应性[4]。该体系侧重界面离子迁移与沉积可逆性的分子尺度调控，体现了宏观力学适应性与界面稳定的协同价值。

3.3 SHARK-Gel 及其连续配位架构（PAM/SA 配位跳跃凝胶）

Zeng 等借鉴凝胶电解质在传统镍铁电池中的应用经验，通过分子设计创新，开发了低交联聚丙烯酰胺/海藻酸钠（PAM/SA）凝胶电解质 SHARK-Gel，并提出可逆配位-跳跃水合带（RCHB）机制[1]。该凝胶在低交联度下保留连续富水输运域，SA 提供的羧基（$-COO^-$）与 PAM 提供的羰基（C=O）交替排列，作为短驻留瞬态配位位点，Zn^{2+}沿连续水合通道在相邻位点间“暂住-跳跃”完成迁移，实现了离子输运从“被动阻挡”到“主动导引”的跨越[1]。SHARK-Gel 离子电导率为 6.49 $mS\cdot cm^{-1}$、锌离子迁移数高达 0.88，同时具有优异的力学性能（杨氏模量 12.58 MPa、断裂伸长率大于 500%）[1]。在 Zn||Zn 对称电池中，SHARK-Gel 在 1 $mA\cdot cm^{-2}$下稳定循环 1800 h，在 0.1 $mA\cdot cm^{-2}$下稳定超过 3000 h；组装 Zn||NVO 全电池在 10 $A\cdot g^{-1}$下循环 10000 次容量保持率 66.48%，即使在 25 $A\cdot g^{-1}$极端倍率下循环 5500 次容量保持率仍达 64.41%[1]。柔性软包电池在不同弯折角度下均可稳定驱动 LED，展现了柔性应用的潜力[1]。

在此基础上，团队进一步通过亚氨基二乙酸（IDA）改性海藻酸钠（IDA-g-SA）并与 PAM 构建连续配位架构凝胶（MCR-Gel），将配位位点进行空间有序组织，形成动态可访问的多位点配位环境[2]。这一设计理念揭示：配位官能团的空间排布与连通性比单纯增加官能团数量更为关键[2]。DFT 计算与静电势（ESP）分析表明，MCR-Gel 中富电子区域沿 IDA-g-SA 羧酸盐节点与 PAM 酰胺羰基相互连通，形成连续负电势通道；分子动力学（MD）模拟捕捉到 Zn^{2+}可在不同配位位点间快速进行配位交换，实现接力式迁移[2]。MCR-Gel 离子电导率提升至 11.21 $mS\cdot cm^{-1}$、锌离子迁移数 0.81，对称电池在 0.1 $mA\cdot cm^{-2}$下稳定循环超过 8200 h（约 342 天）、在 1 $mA\cdot cm^{-2}$下稳定超过 3250 h；组装 Zn||NVO 全电池在 30 $A\cdot g^{-1}$超高倍率下循环 46000 次，并保持优异可逆容量[2]。

SHARK-Gel 与 MCR-Gel 代表了凝胶电解质从“瞬态配位”向“连续配位架构”的机制演进，为高功率、长寿命水系锌离子电池提供了重要设计范式[1,2]。

4 锌枝晶抑制的多尺度耦合机制

4.1 界面 Zn^{2+}通量均匀化

锌枝晶生长的本质源于界面 Zn^{2+}通量与电场的空间不均匀。在传统高交联凝胶中，孔道迂曲、水合中断导致离子扩散受阻，大电流下锌表面迅速形成离子耗尽层，凸起位置电场集中，Zn^{2+}通量局部放大，触发“尖端加速生长”的正反馈[1,2]。凝胶电解质通过多尺度协同实现界面通量均匀化：在分子尺度，连续配位或配位跳跃通道为 Zn^{2+}提供低能垒的长程输运路径；在微观尺度，高连通多孔网络缩短离子扩散路径；在介观尺度，高锌离子迁移数抑制阴离子反向迁移、缓解浓差极化[1,2]。COMSOL 仿真显示，SHARK-Gel 与 MCR-Gel 可有效抹平界面电场热点、维持平缓的浓度梯度，而 RIGID-Gel 则出现明显的电场集中与浓度不均[1,2]。界面通量的均一化直接抑制了枝晶成核的驱动力，是三类凝胶体系共同的核心抑制机制[1,2,3]。

4.2 三维向二维沉积模式转变与晶面取向调控

界面通量均匀化直接改变锌的成核-生长模式。计时电流（CA）测试表明，具备连续输运通道的凝胶体系电流快速衰减并趋于稳定，属于二维（2D）侧向生长特征；而高度交联凝胶电流持续上升，对应三维（3D）扩散控制的枝晶倾向生长[1,2]。循环后电极形貌表征进一步证实：SHARK-Gel 与 MCR-Gel 体系锌表面平整致密，仅见片层间交错与少量颗粒沉积，表面高度起伏小（AFM 显示 SHARK 约 400 nm、MCR 循环 5/15 圈由约 350 nm 增至约 500 nm）；而高度交联体系则形成柱状、片层堆叠的粗糙沉积物，表面起伏显著增大[1,2]。XRD 分析表明，MCR-Gel 可诱导 Zn(002)晶面择优沉积，对应平坦致密的沉积形貌，而 RIGID-Gel 的(101)取向更强，更易形成粗糙凸起[2]。这种 3D 向 2D 沉积模式的转变，是从形貌学上抑制枝晶生长的直接体现[1,2]。

4.3 成核过电位与界面反应动力学

均匀的界面环境有利于降低 Zn^{2+}去溶剂化与成核的能垒，改善锌沉积的可逆性。成核过电位测试显示，SHARK-Gel 的锌成核过电位仅 19.2 mV，远低于 HC-PAM 的 57.7 mV[1]；MCR-Gel 的成核过电位为 23.2 mV，也明显低于 RIGID-Gel 的 51.5 mV[2]。交换电流密度（j_0）从 RIGID-Gel 的 0.16 $mA·cm^{-2}$提升至 RHB-Gel 的 0.25 $mA·cm^{-2}$、MCR-Gel 的 0.39 $mA·cm^{-2}$，表明连续配位架构可显著加快 Zn^{2+}/Zn 界面电荷转移动力学[2]。较低的成核过电位意味着更小的形核势垒与更有利的沉积动力学，有利于形成细密均匀的锌晶核[1,2]。同时，Zn||Cu 不对称电池测试表明，SHARK-Gel 在 250 次循环内保持 99.71%的库仑效率，MCR-Gel 在 200 次循环内保持约 99.53%的库仑效率，均显著优于高交联对照体系[1,2]。

4.4 水活性调控与副反应抑制

水分子活性直接决定析氢、腐蚀等副反应的程度。凝胶电解质通过分子尺度的氢键网络重构与配位环境调控，可降低自由水占比、限制水的反应活性[2,5]。Raman 与 XPS 表征显示，SA/IDA-SA 基凝胶体系中高波数 O-H 组分占比提升，氢键约束弱化，形成动态可重构的水合环境，同时游离水/羟基组分显著降低[1,2]。HER 相关 LSV 测试表明，SHARK-Gel 的析氢起始电位（-0.1701 V）较 HC-PAM（-0.1198 V）更负，Tafel 分析显示 SHARK-Gel 腐蚀电流密度更低，表明界面副反应得到有效抑制[1]。副反应的抑制一方面减少了绝缘副产物的生成，为均匀锌沉积提供洁净界面；另一方

面，凝胶的自放电性能也明显改善，SHARK-Gel 静置 24 h 后库仑效率仍高达 93.14%，而传统凝胶仅约 1.6%[1]。水活性的有效调控是凝胶电解质实现高可逆锌沉积的重要前提[1,2]。

5 三类凝胶电解质关键性能对比

表 1 为 SA-Car、Gel/SA-acetate 与 SHARK-Gel（含 MCR-Gel）三类凝胶电解质的构成、离子输运参数与电化学性能，直观呈现三类体系在多尺度调控策略与性能表现上的差异。

表 1 三类凝胶电解质关键性能对比

Table 1. Comparison of key performance metrics of three gel electrolytes

对比项	SA-Car	Gel/SA-acetate	SHARK-Gel（含 MCR-Gel）
体系构成	海藻酸钠-卡拉胶，Zn^{2+}离子交联+氢键网络	明胶/海藻酸钠-乙酸，羧化双网络+链-液协同	低交联 PAM/SA（RCHB）；IDA-g-SA/PAM 连续配位架构
分子尺度机制	羧基/磺酸基与 Zn^{2+}离子缔合交联，锚定自由水	亲锌官能团重构氢键，链-液协同优化溶剂化鞘	瞬态配位-跳跃（RCHB）；配位位点空间组织，连续配位跳跃
离子电导率 /(mS·cm^{-1})	58.9（5.89×10^{-2} S·cm^{-1}）	—	SHARK 6.49；MCR 11.21
Zn^{2+}迁移数	0.58	—	SHARK 0.88；MCR 0.81
机械性能	离子交联柔韧，可持续	羧化双网络，机械适应性优异	SHARK 模量 12.58 MPa、伸长>500%；MCR 模量 9.85 MPa、韧性可回复
对称电池循环	Zn‖Zn 对称>500 h	对称 1580 h；非对称 5600 h	SHARK：1 mA·cm^{-2}下 1800 h、0.1 mA·cm^{-2}下 3000 h；MCR：0.1 mA·cm^{-2}下 8200 h、1 mA·cm^{-2}下 3250 h
全电池性能	—	锌离子混合电容 15000 圈保持 98.5%、236.8 Wh·kg^{-1}	SHARK：Zn‖NVO 25 A·g^{-1}下 5500 圈保持 64.41%；MCR：30 A·g^{-1}下 46000 圈
界面调控特征	氢键锚定水、抑制水活性，均匀锌沉积	链-液协同优化界面离子迁移与沉积可逆性，抗催化抑副反应	界面通量/电场均一化，诱导 Zn(002)二维致密沉积

注：“—”表示原文未提供该数据。

6 挑战与展望

6.1 当前面临的挑战

尽管多糖基凝胶电解质在锌枝晶抑制方面展现出良好效果，但该体系仍存在诸多待解决的难题。凝胶内部配位位点间距、交联程度与水合度之间的定量构效关系尚不明确，缺少原位表征与多物理场仿真支撑，难以实现定向精准设计。同时材料性能存在固有权衡关系，低交联度往往伴随机械强度不足，官能团的引入又容易加剧凝胶溶胀。目前多数测试条件较为理想，在高活性物质负载、薄锌负极以及贫电解液这类贴近实际应用的工况下，稳定性能还有待验证。此外，功能高分子改性工艺复杂，凝胶膜规模化制备成本较高，距离工业化应用还有较长距离。

6.2 未来发展方向

展望未来，界面多尺度调控策略仍面临若干挑战：一是配位位点间距、交联度与水合度之间的定量构效关系尚不清晰，需发展原位多表征技术（如原位 Raman、原位 AFM、同步辐射谱学）结合多物理场仿真，建立“分子结构-介观网络-宏观性能”的定量模型[1,2]；二是降低交联度与维持机械强度、提高官能团含量与抑制溶胀之间存在权衡，需通过梯度结构与复合化策略加以调和[8,10]；三是现有研究多采用厚锌箔与过量电解液，需在高正极负载、薄锌负极、贫电解液的实用条件下验证多尺度调控的真实效果[5,6]；四是功能化高分子合成与凝胶膜的规模化制备仍需工艺优化[3,4]。将分

子配位工程与梯度、复合结构设计相结合，有望开发出面向高功率、长寿命、实用化水系锌离子电池的新一代凝胶电解质[1,2,10]。

7 结论

（1）从分子层面来看，凝胶高分子链构筑的动态可逆配位位点可与水合锌离子产生相互作用，在维持体系水合连续性的基础上形成接力式离子传输通路，使 Zn^{2+}由无规则的布朗扩散转变为配位 - 脱配位交替的跳跃传输模式，有效降低锌离子去溶剂化能垒并提升锌离子迁移数。相比于单纯增加羟基、氨基等官能团的数量，配位位点的空间排布以及连通性才是调控离子输运行为的关键，分散孤立的官能团难以持续引导锌离子有序迁移。

（2）在微观与介观尺度，凝胶内部高连通的多孔网络结构与较高的锌离子迁移数协同作用，均匀分散锌负极界面的锌离子通量与局域电场，削弱尖端位置的电场富集效应，缓解界面浓差极化。在均一的界面环境中，锌原子不再优先在表面凸起处无序三维生长，转而实现二维平面均匀沉积，同时诱导锌沿 Zn (002) 晶面择优沉积，从源头抑制锌枝晶的成核与生长。

（3）宏观尺度上，凝胶依靠刚度与韧性的平衡适配电池循环过程中的电极体积变化以及柔性工况，持续保持与锌负极的紧密贴合，避免电极 - 电解质界面产生空隙而引发新的电场畸变，是界面调控效果稳定发挥的重要保障。

上述不同尺度的调控效应相互耦合、协同作用，高分子链还可重构内部氢键网络，束缚体系内自由水、降低水活性，抑制析氢、金属腐蚀等副反应，减少界面惰性副产物堆积，维持洁净稳定的电极界面，最终实现长周期循环过程中锌的均匀无枝晶沉积。

参考文献

[1] Sun Z, Qu W, Zeng Y, et al. Coupling hydration continuity with coordination-hopping transport regulates interfacial Zn^{2+} flux in gel electrolytes[J]. Journal of Colloid and Interface Science, 2026, 723: 140932.

[2] Sun Z, Zeng Y, Liu Y, et al. Engineering continuous coordination architectures for relay Zn^{2+} transport in gel electrolytes toward high-rate and long-life aqueous zinc-ion batteries[J]. Journal of Colloid and Interface Science, 2027, 728: 141746.

[3] Ge H, Qin L, Zhang B, et al. An ionically cross-linked composite hydrogel electrolyte based on natural biomacromolecules for sustainable zinc-ion batteries[J]. Nanoscale Horizons, 2024, 9: 1514-1521.

[4] Tian C, Wang J, Sun R, et al. Improved interfacial ion migration and deposition through the chain-liquid synergistic effect by a carboxylated hydrogel electrolyte for stable zinc metal anodes[J]. Angewandte Chemie International Edition, 2023, 62(42): e202310970.

[5] Peng H, Wang D, Zhang F, et al. Improvements and challenges of hydrogel polymer electrolytes for advanced zinc anodes in aqueous zinc-ion batteries[J]. ACS Nano, 2024, 18 (33): 21779–21803.

[6] Zhu Z, Xiong S, Li J, et al. Hydrogel polymer electrolytes for aqueous zinc-ion batteries: recent progress and remaining challenges[J]. Batteries, 2026, 11(10): 380.

[7] Liu Y, Wang H, Li Q, et al. Key issues and strategies of aqueous zinc-ion batteries[J]. Energies, 2023, 16(21): 7443.

[8] Weng G, Yang X, Wang Z, et al. Hydrogel electrolyte enabled high-performance flexible aqueous zinc ion energy storage systems toward wearable electronics[J]. Small, 2023, 19(28): 2303949.

[9] Li A, Li J, He Y, et al. Toward stable and highly reversible zinc anodes for aqueous batteries via electrolyte engineering[J]. Journal of Energy Chemistry, 2023, 83: 209-228.

[10] Wang Q, Huang J, Qi L, et al. A bioinspired gradient hydrogel electrolyte network with optimized interfacial chemistry toward robust aqueous zinc-ion batteries[J]. ACS Nano, 2025, 19 (29): 26770–26781.

[11] Zheng Z, Cao H, Shi W, et al. Low-cost zinc-alginate-based hydrogel-polymer electrolytes for dendrite-free zinc-ion batteries with high performances and prolonged lifetimes[J]. Polymers, 2023, 15(1): 212.

[12] Yang Y, Shi L, Wu Y, et al. High voltage, toughness and improved interfacial ion deposition through a dual-crosslinked and self-healable hydrogel electrolyte for green zinc-ion batteries[J]. Chemical Engineering Journal, 2024, 484: 149780.
[13] Liu Y, Lu X, Lai F, et al. Rechargeable aqueous Zn-based energy storage devices[J]. Joule, 2021, 5(11): 2845-2903.

基金项目: 基于界面多尺度调控的凝胶电解质锌枝晶抑制机制研究（X2026106080291）。

[1] **第 1 作者简介：**付帅（2006—），男，汉族，陕西省榆林市人，本科在读，研究方向：电化学储能材料。E-mail: 18146847852@163.com

[*] **通讯作者简介：**刘启凡（1991—），男，汉族，湖北仙桃人，博士，讲师，研究方向：新能源材料及器件。E-mail: liuqifan0108@163.com