

• 研究论文 •

基于单宁酸与 MXene 协同增强的复合水凝胶 用于高性能柔性传感与生理信号监测

何 成 王孟朝 岳兵兵*

(上海理工大学材料与化学学院 上海 200093)

摘要: 水凝胶凭借优异生物相容性与可调控理化性质, 在可穿戴生物传感领域极具应用潜力。然而, 开发兼具优良力学性能、高传感灵敏度、稳定界面黏附性与良好导电性的水凝胶传感材料仍为关键挑战。针对上述问题, 本研究设计制备了聚丙烯酰胺/单宁酸/MXene(PAM/TA/MXene, PTM) 复合水凝胶柔性传感器。该体系借助 TA 酚羟基、MXene 表面羟基/氧终端与 PAM 酰胺基团形成的多重动态氢键构建增强交联网络, 协同优化了材料力学性能、黏附性与导电性。PTM 水凝胶展现出优异拉伸性(应变>1200%)、高灵敏度(GF 最高 0.61)及毫秒级响应/恢复能力; TA 赋予其强皮肤/多基底黏附性。该传感器集高保真人体运动与微表情监测、高质量心电图(ECG)与肌电(EMG)信号采集于一体, 且在动态环境下的信噪比(SNR)优于商用水凝胶电极。本研究为医疗监护与人机交互用高性能可穿戴传感系统提供了可行的材料方案。

关键词: 复合水凝胶; 柔性传感器; 生理电信号; MXene; 单宁酸

Composite Hydrogel Synergistically Enhanced by Tannic Acid and MXene for High-performance Flexible Sensing and Physiological Signal Monitoring

HE Cheng, WANG Meng-chao, YUE Bing-bing*

(School of Materials and Chemistry, University of Shanghai for Science and Technology, Shanghai 200093)

Abstract: Hydrogels exhibit great application potential in wearable biosensing owing to their excellent biocompatibility and tunable physicochemical properties. However, developing hydrogel sensing materials with integrated excellent mechanical properties, high sensing sensitivity, stable interfacial adhesion and favorable electrical conductivity remains a critical challenge. To address these issues, a flexible sensor based on polyacrylamide/tannic acid/MXene (PAM/TA/MXene, PTM) composite hydrogel is designed and fabricated in this work. In this system, multiple dynamic hydrogen bonds are formed among the phenolic hydroxyl groups of TA, the hydroxyl/oxygen terminals on the MXene surface, and the amide groups of PAM, constructing a reinforced cross-linked network that synergistically optimizes the mechanical properties, adhesion, and electrical conductivity of the material. The PTM hydrogel demonstrates outstanding stretchability (strain > 1200%), high sensitivity (maximum gauge factor (GF) of 0.61), and millisecond-level response/recovery capability; TA endows it with robust adhesion to the skin and various substrates. This sensor integrates high-fidelity monitoring of human body movements and micro-expressions with high-quality acquisition of electrocardiogram (ECG) and electromyogram (EMG) signals, and its signal-to-noise ratio (SNR) in dynamic environments outperforms that of commercial hydrogel

2026-02-04 收稿, 2026-03-20 录用, 2026-04-28 网络出版

* 通信联系人: 岳兵兵, E-mail: yuebingbing@usst.edu.cn

doi: 10.14028/j.cnki.1003-3726.2026.26.058

electrodes. This study provides a feasible material solution for high-performance wearable sensing systems applied in medical monitoring and human-machine interaction.

Keywords: Composite hydrogel; Flexible sensor; Bioelectrical signals; MXene; Tannic acid

引用: 何成, 王孟朝, 岳兵兵. 基于单宁酸与MXene 协同增强的复合水凝胶用于高性能柔性传感与生理信号监测. 高分子通报, 2026, 39(6), 938–952.

Citation: He, C.; Wang, M. C.; Yue, B. B. Composite hydrogel synergistically enhanced by tannic acid and MXene for high-performance flexible sensing and physiological signal monitoring. *Polym. Bull.* (in Chinese), 2026, 39(6), 938–952.

随着全球老龄化进程加剧与慢性病防控需求提升, 实时、精准的人体健康监测已成为生物医药与电子工程领域的研究热点^[1,2]。传统刚性传感器(如金属电极、硅基传感器)因柔韧性差、与皮肤界面相容性不足, 难以适配动态人体体表监测场景, 限制了其在个性化医疗中的应用^[3]。在此背景下, 柔性电子技术迅猛发展, 其中柔性可穿戴传感器凭借其良好的生物相容性、便携性及实时响应能力, 能够实现对人体运动状态与生理信号的无创、连续监测, 近年来受到学术界与工业界的广泛关注^[4~6]。

在各类柔性传感器材料中, 水凝胶因独特的三维网络结构, 兼具与人体皮肤匹配的柔韧性、高含水量及优异的界面亲和性, 可实现与皮肤的共形接触, 减少界面噪声与刺激, 成为替代传统刚性传感器用于体表生理信号与运动行为监测的理想材料^[7~9]。在众多生理信号监测场景中, 如人体关节运动(手指、膝盖弯曲)、面部微表情识别以及心电(ECG)、肌电(EMG)等核心生命体征检测, 均对传感器提出了严苛要求: 不仅需要具备稳定的导电性能与灵敏的力学响应特性, 还需拥有可靠的皮肤黏附能力, 以避免在动态监测过程中因界面滑移导致的信号失真^[10~16]。丙烯酰胺(AM)作为一种常见的水凝胶单体, 其聚合形成的聚丙烯酰胺水凝胶具有良好的亲水性、机械柔韧性及生物安全性, 被广泛应用于柔性传感器的基底材料制备^[17~22]。例如, Liu等利用PAM与羧甲基壳聚糖(CMC)构建了多酚–金属离子自催化双网络传感水凝胶, 该水凝胶不仅机械性能优异(断裂强度275 kPa、断裂伸长率1080%), 还借助系统内动态金属配位网络与氢键网络具备自愈合特性。基于该水凝胶构建的传感器拥有稳健耐久的传感性能, 所制备的柔性摩擦电纳米发电机(H-TENG)亦展现出优异的自供电行为与可靠的信号输出能

力^[23]。然而, 现阶段面向体表监测的水凝胶柔性传感器, 仍存在多项难以突破的核心缺陷, 相关研究仍未实现导电性能、力学稳定性、界面黏附性的协同优化。首先, 纯PAM水凝胶本征导电性能极差, 仅依赖内部游离离子传输电荷, 难以实现微弱生理信号、精细应变信号的精准捕捉, 即便引入导电填料, 也易出现填料分散不均、导电网络断裂的问题, 导致传感稳定性大幅衰减; 其次, 常规水凝胶力学性能与溶胀行为失衡, 高溶胀率易引发凝胶结构坍塌、界面滑移, 低溶胀率又会丧失柔性贴合优势, 且多数水凝胶缺乏长效界面黏附力, 动态运动过程中易发生脱落、信号失真, 无法适配人体关节弯曲、肢体活动等大形变监测场景; 其三, 现有改性策略多聚焦单一性能提升, 如单纯优化导电性能或力学性能, 忽略了体表传感对多性能协同的需求, 部分黏附改性材料还存在生物相容性差、小分子残留等隐患, 难以满足可穿戴器件的生物安全要求^[24~27]。针对上述行业内普遍存在的精准缺陷, 本研究开展的针对性改性工作, 具备极强的研究必要性与实际应用意义。相较于现有单一改性、性能失衡的水凝胶体系, 提出“MXene导电增强+单宁酸(TA)黏附优化”的协同设计思路, 以聚丙烯酰胺(PAM)为基材, 构建PAM/TA/MXene(PTM)复合水凝胶传感器。一方面, 借助二维MXene纳米片构筑连续导电网络, 突破纯PAM水凝胶本征导电短板, 提升传感灵敏度与信号稳定性^[28~32]; 另一方面, 借助天然多酚TA的多重界面相互作用, 无需共价交联即可同步优化水凝胶皮肤黏附性与结构稳定性, 同时精准调控凝胶溶胀行为, 规避过度溶胀导致的力学衰减、界面滑移等问题^[33~35]。相关研究证实, MXene可借助表面羟基、氟基与高分子链形成氢键, 实现均匀分散并搭建稳定导电通路, 有效降低电荷传输阻力, 保障宽应变范围内的传感稳定性,

为本文复合水凝胶的性能优化提供了坚实理论支撑。例如, Zhang 等将 MXene 引入水凝胶体系, 利用 MXene 表面丰富羟基($-OH$)、氟基($-F$)与壳聚糖(CS)、PAM 分子链的氢键作用实现均匀分散, 进而构建贯穿性连续导电网络, 降低电荷传输阻力, 有效改善传统水凝胶的导电缺陷, 使制备的水凝胶电导率较纯体系提升近 1 倍; 同时, 该导电网络具备优异的应变响应稳定性, 在 100%~500% 宽应变范围内电阻变化率稳定, 经 100% 应变、不同频率(0.05~0.25 Hz)循环及 500 次 100% 应变循环后, 导电性能无明显衰减, 为传感器长期稳定工作提供了保障^[36]。

如图 1(a) 所示, 以 PAM 为单体、 N,N' -亚甲基双丙烯酰胺(MBAA)为交联剂、MXene 为导电介质, 引入 TA 作为黏附增强剂, 通过 PAM 的羰基、MXene 表面的羟基与羰基及 TA 的酚羟基形成多重氢键, 构建了 PAM/TA/MXene(PTM) 复合水凝胶传感器^[37]。如图 1(b) 所示, 采用 HCl/LiF 混合体系选择性刻蚀 MAX 相, 制备的二维层状 MXene 纳米片分散性优异, 可在水凝胶基质中均匀分布, 为构筑连续导电网络及协同提升力学性能提供结构支撑。如图 1(c) 所示, 制备的 PTM 水凝胶断裂应变达 1200%, 大形变后具备良好弹性回复能力。该体系借助 TA 的多重相互作用^[38,39],

协同优化水凝胶的导电性、力学性能与皮肤黏附性, 可紧密贴合皮肤, 精准监测人体运动(手指、膝盖弯曲及面部微表情), 并实现心电(ECG)、肌电(EMG)等生理信号的稳定采集^[40~44]。本研究为高性能可穿戴人体监测传感器提供了新的材料设计思路, 对推动柔性电子器件在个性化医疗健康监测领域的应用具有重要意义。

1 实验部分

1.1 主要试剂

丙烯酰胺(AM)、单宁酸(TA)、碳钛化铝(Ti_3AlC_2)、氟化锂(LiF)、盐酸(HCl), 过硫酸铵(APS)、 N,N' -亚甲基双丙烯酰胺(MBAA)、 N,N,N',N' -四甲基乙二胺(TEMED), 均购自上海泰坦科技股份有限公司; 去离子水取自 FDEER 净水系统。所有试剂均为分析纯, 无需进一步纯化可直接使用。

1.2 MXene 纳米片的制备

首先, 称取氟化锂(LiF) 3.2 g, 溶于 40 mL 9 mol/L 盐酸(HCl)中, 45 °C 下搅拌 30 min, 制备刻蚀剂, 然后称取碳钛化铝(Ti_3AlC_2) 2 g, 分多次少量加入, 45 °C 下搅拌 72 h, 得到 MXene 粗产物。将 MXene 粗产物在 3700 r/min 下离心 5 min, 收集沉淀, 用稀盐酸洗涤沉淀 2~3 次, 然后加入去离子

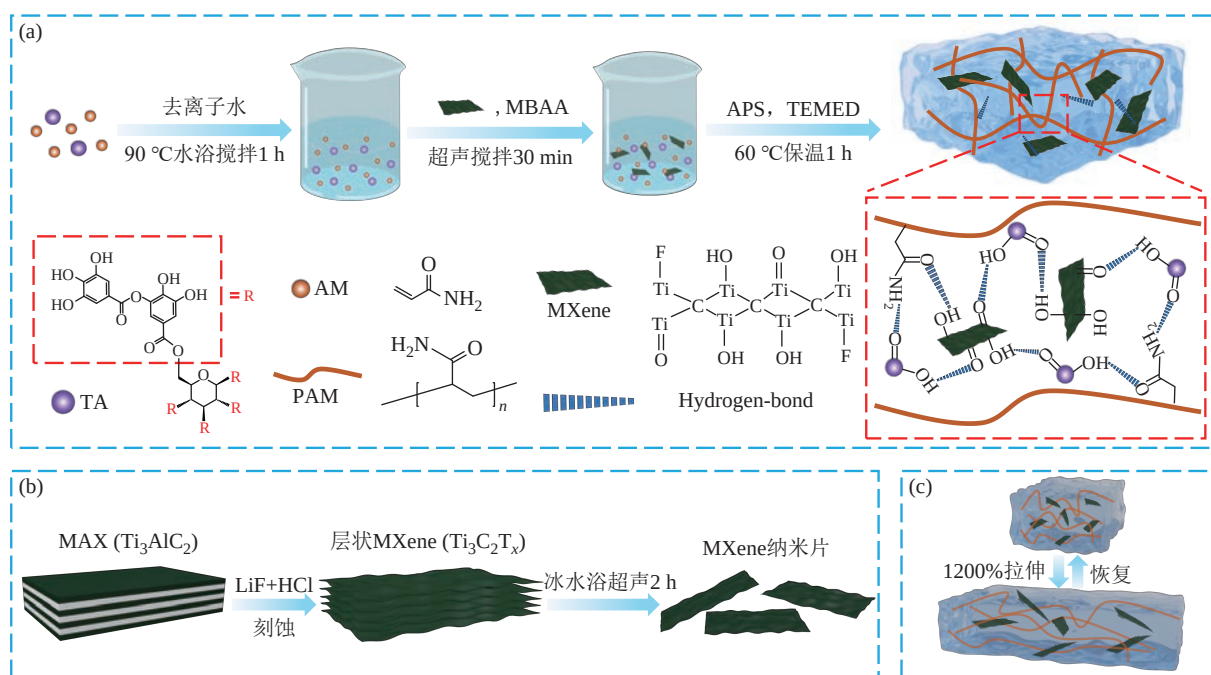


图 1 (a) PTM 水凝胶的制备流程示意图; (b) MXene 纳米片制备流程示意图; (c) PTM 水凝胶的拉伸恢复性

Figure 1 (a) Schematic diagram of the preparation process of the PTM hydrogel; (b) Schematic diagram of the preparation process of MXene nanosheets; (c) Stretch-recovery property of the PTM hydrogel

水离心多次, 每次 1 min, 直至上清液 pH>6, 最后在冰水浴下超声 2 h, 促使 MXene 分层, 然后再次以 3700 r/min 转速离心 5 min, 收集上清液, 得到含有单层或少层的 MXene 分散液, 取 1 mL MXene 分散液真空冷冻干燥, 测定 MXene 分散液的浓度。

1.3 PAM/TA/MXene 水凝胶的制备

取 1.075 g 丙烯酰胺 (AM) 和 3.225 mg 单宁酸 (TA), 加入 4 mL 去离子水, 在 90 °C 下搅拌 1 h 使其充分溶解, 然后缓慢冷却至室温。其次加入 MXene 分散液和 N,N' -亚甲基双丙烯酰胺 (MBAA), 超声并充分搅拌。最后加入过硫酸铵 (APS) 和四甲基乙二胺 (TEMED), 将水凝胶预聚液倒入模具中置于 60 °C 环境下保温 1 h, 得到 PAM/TA/MXene (PTM) 水凝胶。最后将聚合后的 PTM 水凝胶置于大量去离子水中, 室温浸泡 48 h, 其间每 12 h 更换 1 次去离子水, 去除未反应的 AM 单体及小分子交联剂。

1.4 水凝胶溶胀率测试方法

将制备的 PAM、PAM/TA (PT)、PAM/MXene (PM) 和 PAM/TA/MXene (PTM) 水凝胶切割成尺寸为 10 mm × 10 mm × 2 mm 的方形样品, 置于真空干燥箱中 60 °C 干燥至恒重, 冷却至室温后用电子天平 (精度 0.1 mg) 称取干重, 记为 m_d 。将干燥后的水凝胶样品完全浸入 25 °C 去离子水中, 于密封容器中静置溶胀, 按设定时间点取出样品, 用滤纸轻柔吸干表面游离水分, 迅速称取湿重, 记为 m_t ; 称量后将样品立即放回原溶剂中继续溶胀, 直至连续两个时间点的湿重变化率 ≤ 1%, 视为达到平衡溶胀状态, 记录平衡湿重为 m_s 。

水凝胶的实时溶胀比 (SR_t) 与平衡溶胀比 (SR_{eq}) 分别按公式 (1) 和 (2) 计算:

$$SR_t = \frac{m_t - m_d}{m_d} \times 100\% \quad (1)$$

$$SR_{eq} = \frac{m_s - m_d}{m_d} \times 100\% \quad (2)$$

式中, SR_t 为 t 时刻的实时溶胀比, SR_{eq} 为平衡溶胀比, m_t 为 t 时刻水凝胶的湿重, m_s 为水凝胶平衡溶胀后的湿重, m_d 为水凝胶干燥至恒重后的质量。

1.5 PAM/TA/MXene 水凝胶传感器的制备与测试

采用 2 块 3M VHB 胶带、2 根铜导线及一块尺寸为 40 mm × 15 mm × 2 mm 的水凝胶, 组装形成应变传感器。为评估其传感性能, 利用吉时利静

电计 6514 同步记录拉伸过程中的相对电阻变化, 其中相对电阻按公式 (3) 计算:

$$\frac{\Delta R}{R_0} = \frac{R - R_0}{R_0} \times 100\% \quad (3)$$

式中, R_0 和 R 分别是水凝胶在初始状态和拉伸状态的电阻。

应变传感性能的核心评价指标灵敏因子 (GF) 按公式 (4) 计算:

$$GF = \frac{\Delta R / R_0}{\varepsilon} \quad (4)$$

式中, $\Delta R / R_0$ 是相对电阻, ε 为施加于水凝胶的应变值。

2 结果与讨论

2.1 PAM/TA/MXene 水凝胶的结构表征

聚丙烯酰胺 (PAM) 水凝胶因其优异的拉伸形变能力, 常作为柔性传感器的基底材料^[45~49]。单宁酸 (TA) 的引入可显著提升水凝胶的皮肤黏附性能, 其分子中的大量酚羟基可通过多重相互作用 (如氢键) 优化界面结合。MXene ($Ti_3C_2T_x$) 表面富含羟基 (OH) 等官能团, 不仅能与 PAM 链段及 TA 分子形成多重氢键交联, 从而强化水凝胶的机械性能, 其自身构建的连续电子导电路径还可赋予材料优异的导电特性。为验证 PAM/TA/MXene (以下简称 PTM) 复合水凝胶的成功制备、组分相容性及内部相互作用, 本研究进行了系统的结构表征, 结果如图 2 所示。

图 2(a) 显示了 PAM-TA (PT) 前驱体水溶液与 PTM 前驱体水溶液的外观对比。PT 溶液呈均一透明态, 表明 TA 已完全溶解并与 PAM 前驱体形成稳定混合体系; 而引入 MXene 后, PTM 溶液呈现典型的深黑色, 这源于 MXene 二维纳米片独特的强光吸收特性, 直观证实 MXene 已成功混入体系。通过扫描电子显微镜 (SEM, 样品经冷冻干燥并喷金处理) 观察了 PTM 水凝胶的微观形貌。图 2(b) 显示, 未拉伸状态下水凝胶内部形成了均匀多孔的三维网络结构, 这为其拉伸形变提供了充足空间。图 2(c) 展示了在 500% 拉伸应变下的微观形貌, 可见孔径呈现明显的取向分布, 且网络结构完整无裂纹, 直观证实了 PTM 水凝胶具备优异的延展性与结构稳定性, 可适配人体大形变运动监测场景。为评估各组分在水凝胶内部的分散均匀性, 进行了能量色散 X 射线光谱 (EDS) 面扫

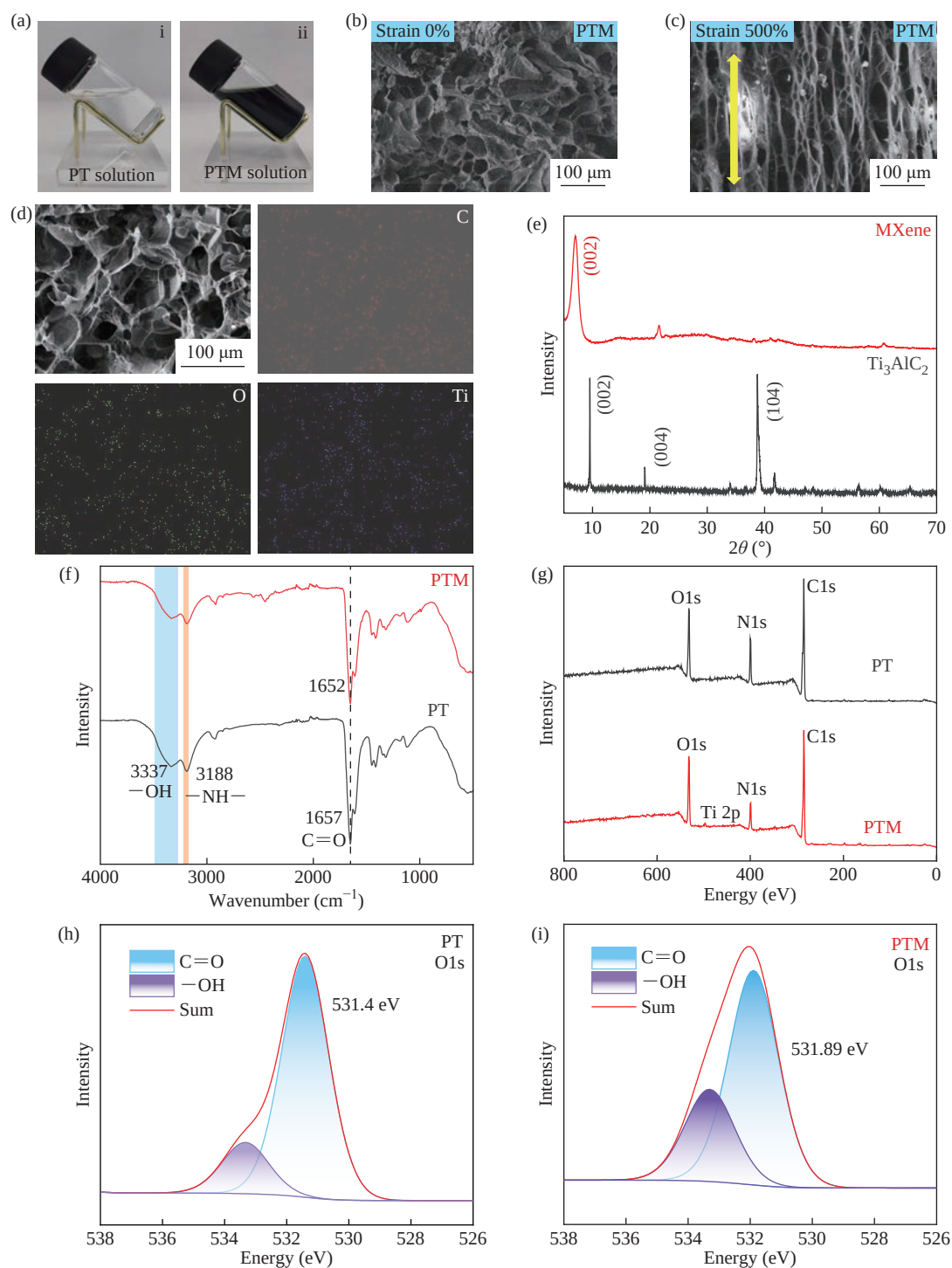


图 2 PTM水凝胶的结构与组分表征:(a) PT与PTM前驱体溶液照片;PTM水凝胶在(b)未拉伸及(c)拉伸500%应变后,经冷冻干燥样品的扫描电子显微镜(SEM)图像;(d) PTM水凝胶的C、O、Ti元素面扫描能谱(EDS)图;(e)原料 Ti_3AlC_2 及剥离所得MXene的X射线衍射(XRD)图谱;(f) PT与PTM水凝胶的傅里叶变换红外光谱(FTIR);(g) PT与PTM水凝胶的X射线光电子能谱(XPS)全谱;(h) PT水凝胶与(i) PTM水凝胶的O1s高分辨XPS谱图

Figure 2 Structural and compositional characterization of PTM hydrogels: (a) Photographs of precursor solutions of PT and PTM; Scanning electron microscopy (SEM) images of freeze-dried PTM hydrogel samples (b) in the unstretched state and (c) after being stretched to 500% strain; (d) Energy dispersive spectroscopy (EDS) elemental mapping of C, O, and Ti for the PTM hydrogel; (e) X-ray diffraction (XRD) patterns of pristine Ti_3AlC_2 and the as-exfoliated MXene; (f) Fourier transform infrared (FTIR) spectra of PT and PTM hydrogels; (g) X-ray photoelectron spectroscopy (XPS) survey spectra of PT and PTM hydrogels; high-resolution O1s XPS spectra of (h) PT hydrogel and (i) PTM hydrogel

描分析。选取MXene的特征元素Ti, 以及PAM和TA中均含有的C、O元素进行表征。如图2(d)所示, 结果表明, Ti、C、O 3种元素在扫描区域内均呈均匀分布, 未出现明显团聚现象, 证实MXene与PT基体相容性良好, 这为形成连续的导电网络与均一的力学性能奠定了基础。图2(e)中的X射线衍射(XRD)图谱进一步证实了MXene的成功制备。原材料 Ti_3AlC_2 的(002)晶面特征衍射峰位于 9.7° , 而制备所得MXene的(002)晶面衍射峰偏移至 7° 。根据布拉格方程($2d\sin\theta = n\lambda$), 衍射峰位的左移表明MXene的层间距显著增大, 证实 Ti_3AlC_2 中的Al层已被成功刻蚀去除^[50~52]。图2(f)中的傅里叶变换红外光谱(FTIR)分析揭示了PTM水凝胶内部的化学相互作用。其中, 1657 cm^{-1} 处的吸收峰归属于PAM中酰胺羰基($-\text{C}=\text{O}$)的伸缩振动^[53,54]; 3337 cm^{-1} 处的宽强吸收峰对应羟基($-\text{OH}$)的伸缩振动, 该峰由MXene表面的Ti—OH、TA中的酚羟基($-\text{OH}$)以及结合水的O—H振动叠加而成^[55,56]; 3188 cm^{-1} 处的特征峰则归属于PAM中伯酰胺基团($-\text{CONH}_2$)的N—H伸缩振动^[57,58]。上述特征峰的出现与叠加, 证实PAM、TA与MXene已通过氢键作用成功复合, 形成了目标结构。此外, 图2(g)~2(i)的X射线光电子能谱(XPS)分析提供了更深层次的证据。XPS全谱图中清晰地出现了MXene特征的Ti2p峰(Ti2p_{3/2}与Ti2p_{1/2}分裂峰), 进一步证实MXene成功引入复合体系^[59~60]。高分辨O1s谱图分析显示, PTM水凝胶中C=O键的结合能(531.89 eV)相较于PT水凝胶(531.4 eV)发生了正向偏移。结合能的升高源于C=O中的O原子与MXene/TA中的O—H形成氢键后, 电子云密度降低, 这一现象直接证实了PTM水凝胶内部存在多重氢键相互作用。

2.2 PAM/TA/MXene水凝胶的机械性能

柔性可穿戴传感器的服役稳定性与动态适配性高度依赖于基底材料的机械性能。为此, 系统优化了PTM复合水凝胶的网络结构参数。首先, 为确定最佳交联剂用量, 以 N,N' -亚甲基双丙烯酰胺(MBAA)为交联剂, 通过单一变量法, 对不同MBAA质量分数(0.1%、0.2%、0.3%、0.4%和0.5%)的PAM-TA(PT)水凝胶进行拉伸性能测试, 结果如图3(a)所示。随着MBAA质量分数从0.1%增至0.5%, PT水凝胶的最大拉伸应变呈单调递减趋

势, 而最大拉伸应力则呈现先升后降的规律。当MBAA质量分数为0.1%时, 水凝胶内部交联网络以TA与PAM链段间的动态氢键为主, 共价交联点密度不足, 虽赋予其高达1476.4%的拉伸应变, 但松散的网络导致承载能力较弱(最大应力仅为 94.3 kPa)。当MBAA质量分数为0.5%时, 过密的共价交联网络显著限制了分子链运动, 导致材料脆性增加。当MBAA质量分数为0.2%时, 体系实现了动态氢键与共价交联的协同平衡, 水凝胶同时具备良好的强度与延展性(最大拉伸应力 135.5 kPa , 应变650.5%)。因此, 后续实验均采用MBAA质量分数为0.2%的PT水凝胶作为基底。MXene作为兼具高比强度与丰富表面官能团的二维纳米材料, 不仅能提升导电性, 其表面的 $-\text{OH}$ 与 $-\text{C}=\text{O}$ 等官能团还可通过氢键等作用与PT基质紧密结合, 进而调控复合体系的机械性能。图3(b)展示了不同MXene含量对PTM水凝胶拉伸性能的影响。结果表明, 适量MXene的引入显著改善了力学性能。当MXene质量分数为0.7%时, PTM水凝胶的拉伸性能达到最优, 最大拉伸应力与应变分别提升至 215.4 kPa 和1202.1%, 证实MXene可通过“纳米增强效应”与界面相互作用有效强化交联网络。因此, 后续所有性能测试均采用MBAA质量分数0.2%、MXene质量分数0.7%的PTM水凝胶。

为评估水凝胶在静态接触场景(如人体按压)中的适用性, 对其进行了压缩性能测试。如图3(c)所示, PTM水凝胶的最大压缩应力为 73.7 kPa , 最大压缩应变为85%, 表明其具备良好的抗压能力与形变恢复潜力, 可适配皮肤—器件间的接触压力需求。考虑到人体运动监测中传感器需承受反复形变, 系统表征了PTM水凝胶的动态力学稳定性与能量耗散特性。图3(d)显示, 水凝胶在500%拉伸应变下循环加载—卸载时, 应力—应变曲线重叠度高, 未出现明显应力衰减, 表明其具有优异的拉伸循环稳定性。图3(e)~3(f)的阶梯式拉伸循环曲线及对应的耗散能、耗散率分析显示, 水凝胶在不同应变阶段均能保持稳定的能量耗散能力, 这源于动态氢键网络的可逆断裂与重组。图3(g)的压缩循环测试同样证明其具有良好的压缩循环稳定性。图3(h)~3(i)的阶梯式压缩循环分析表明, 随着压缩应变增大, 耗散能与耗散率同步递增, 这是因为压缩过程中网络内部

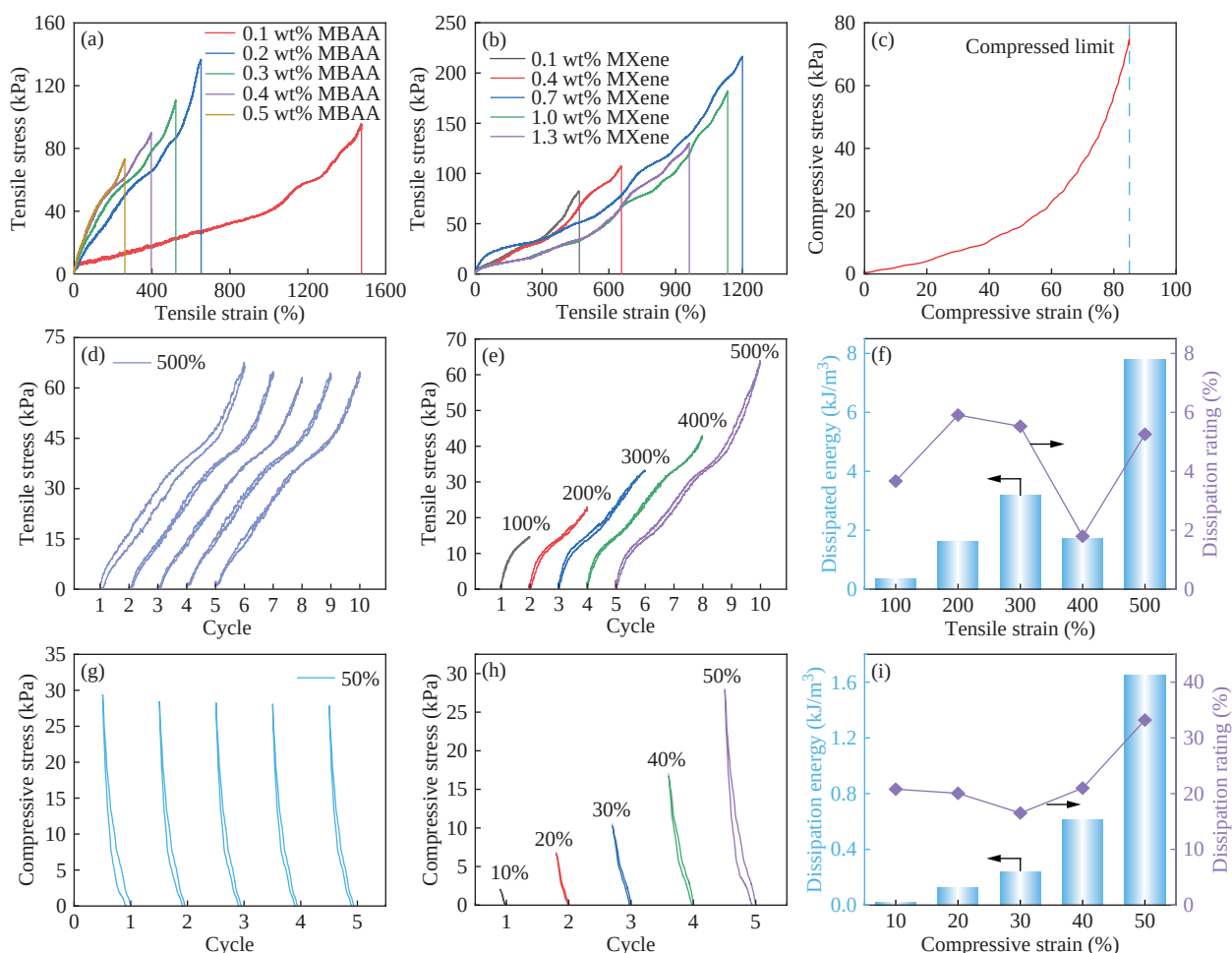


图3 (a)不同MBAA含量的PT水凝胶的应力-应变曲线;(b)不同MXene含量的PTM水凝胶的应力-应变曲线;(c) PTM水凝胶的压缩极限;(d) PTM水凝胶在500%拉伸应变下的应力-应变循环曲线;(e) PTM水凝胶分别在100%、200%、300%、400%、500%五种拉伸应变下的应力-应变曲线以及(f) 5种拉伸应变下水凝胶的耗散能和耗散率;(g) PTM水凝胶在50%压缩应变下的应力-应变曲线;(h) PTM水凝胶分别在10%、20%、30%、40%、50% 5种压缩应变下的应力-应变曲线以及(i) 5种压缩应变下水凝胶的耗散能和耗散率

Figure 3 (a) Stress-strain curves of PT hydrogels with different MBAA contents; (b) Stress-strain curves of PTM hydrogels with different MXene contents; (c) Compressive limit of PTM hydrogels; (d) Cyclic stress-strain curves of PTM hydrogels at 500% tensile strain; (e) Stress-strain curves of PTM hydrogels under five tensile strains (100%, 200%, 300%, 400%, and 500%), and (f) the dissipated energy and energy dissipation ratio of the hydrogels under the five tensile strains; (g) Stress-strain curves of PTM hydrogels at 50% compressive strain; (h) Stress-strain curves of PTM hydrogels under five compressive strains (10%, 20%, 30%, 40%, and 50%), and (i) the dissipated energy and energy dissipation ratio of the hydrogels under the five compressive strains

氢键解离数量增加,更多外力功以热能形式耗散。这一特性有助于缓冲人体运动对传感器的冲击,保障监测过程的稳定性。

2.3 水凝胶的电导率与溶胀率对比

为探究不同组分对水凝胶导电性能与溶胀行为的调控规律,对PAM、PAM/TA(PT)、PAM/MXene(PM)及PAM/TA/MXene(PTM)水凝胶的电导率与溶胀特性进行了系统测试,结果如图4所示。

水凝胶的室温电导率采用手持式交流四探针测试仪测定,为保证测试结果的可靠性与重复

性,对每组水凝胶样品进行10次平行测试并取平均值作为最终结果。结果显示PAM水凝胶的电导率约为 $0.09 \text{ S} \cdot \text{m}^{-1}$,其本征导电能力较弱,仅依靠凝胶网络内少量游离离子实现电荷传输。TA的加入使得PT水凝胶电导率略有下降,约为 $0.085 \text{ S} \cdot \text{m}^{-1}$,这是由于TA分子与PAM链间形成的多重氢键会轻微束缚凝胶网络内的离子迁移,导致电荷传输阻力小幅增加。而当引入高导电二维MXene纳米片后,PM与PTM水凝胶的电导率显著提升,分别达到 0.118 和 $0.117 \text{ S} \cdot \text{m}^{-1}$,这归因

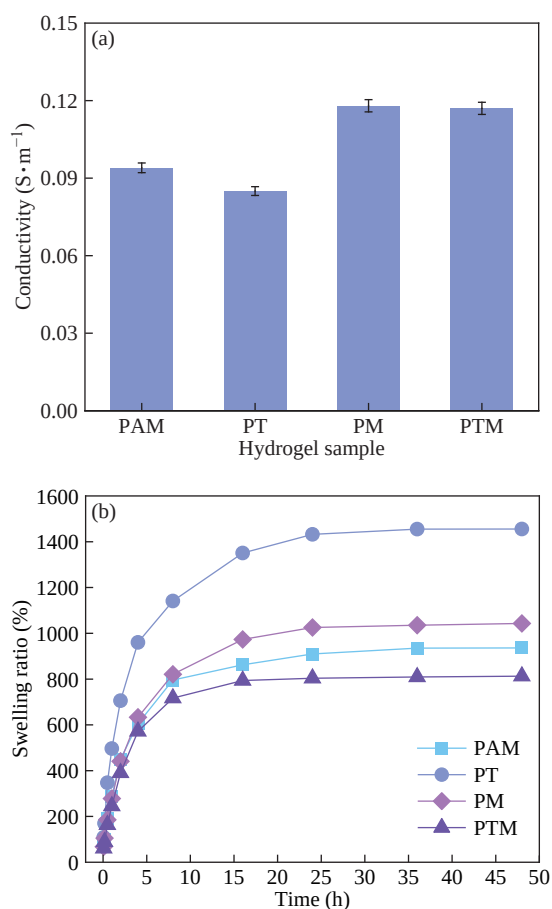


图4 (a) PAM、PT、PM与PTM水凝胶的电导率;(b) PAM、PT、PM与PTM水凝胶在25 °C去离子水中的溶胀比曲线

Figure 4 (a) Electrical conductivity of PAM, PT, PM and PTM hydrogels; (b) Swelling ratio curves of PAM, PT, PM and PTM hydrogels in deionized water at 25 °C

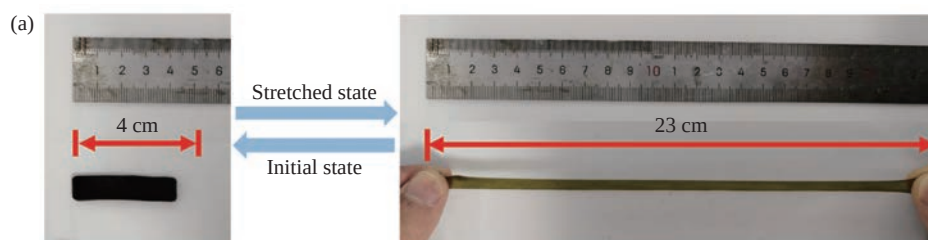
于MXene纳米片在凝胶基质中均匀分散并构筑起连续的导电通路,大幅拓宽了电荷传输路径,有效提升了凝胶体系的导电性能,不同组分水凝胶的电导率对比结果如图4(a)所示。为探究组分调控对水凝胶网络溶胀行为的影响,本研究对PAM、PT、PM及PTM水凝胶开展了溶胀动力学测试:将四种水凝胶置于25 °C去离子水中,分别在浸泡5 min、10 min、30 min、1 h、2 h、4 h、8 h、16 h、24 h、36 h、48 h时取样称重,计算实时溶胀比并绘

制溶胀动力学曲线,如图4(b)所示。测试结果表明,4种水凝胶均能在48 h内达到溶胀平衡,其中纯PAM水凝胶的平衡溶胀比为936.2%;引入TA后,PT水凝胶的平衡溶胀比显著提升至1455.5%,这是由于TA分子富含大量酚羟基等亲水基团,其与PAM分子链通过氢键结合后,大幅增加了凝胶网络的亲水位点,同时氢键作用适度松弛了PAM的交联网络结构,提升了网络的溶胀能力与水分子吸附效率;仅引入MXene的PM水凝胶平衡溶胀比为1043.3%,略高于纯PAM水凝胶,归因于MXene纳米片的层状结构为水分子扩散提供了少量通道,且其表面羟基与水分子的相互作用小幅提升了凝胶亲水性;而PTM复合水凝胶的平衡溶胀比为812.7%,相较于PT、PM及纯PAM水凝胶均有所下降,这是因为TA与MXene、PAM之间形成了多重氢键与非共价相互作用,构建了更致密的三维交联网络,显著降低了凝胶网络的孔隙率与水分子渗透速率,同时MXene的疏水片层与TA的疏水段协同抑制了过度溶胀。PTM水凝胶的溶胀特性具备显著的实际应用优势,其适度降低的平衡溶胀比有效避免了水凝胶在体表贴附过程中因过度溶胀导致的结构坍塌、黏附性下降与力学性能劣化问题,同时致密的网络结构可保证水凝胶在动态人体监测过程中溶胀形态稳定,不会因水分的过度吸附和流失影响传感性能与界面贴合性,更适配可穿戴皮肤传感器的实际应用需求。

2.4 PAM/TA/MXene水凝胶的传感性能

柔性可穿戴传感器的核心性能取决于其对应变-电阻信号的转换能力。PTM水凝胶传感器通过内部MXene导电网络的形变诱导电阻变化实现信号转换。本研究系统表征了其传感灵敏度、循环稳定性及响应速度等关键性能,以电阻变化率 $\Delta R/R_0$ (R_0 为初始电阻, ΔR 为电阻变化量)为核心评价指标。

首先进行了多应变等级的拉伸传感测试。如图5(a)所示,PTM水凝胶具有良好的拉伸性,可



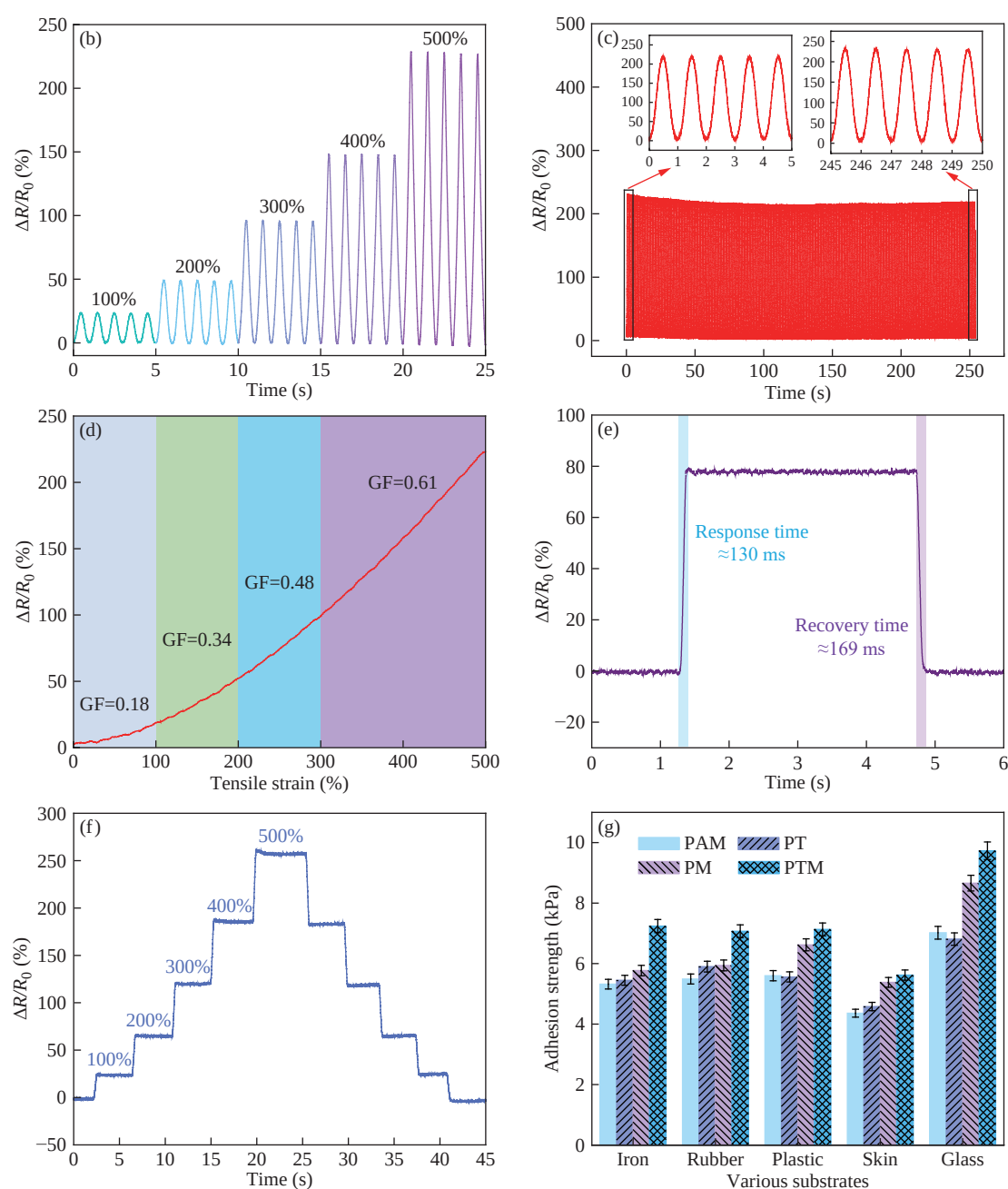


图5 (a) PTM水凝胶初始状态与拉伸状态的影像图; (b) PTM水凝胶分别在100%、200%、300%、400%、500%拉伸应变下的电阻变化率; (c) PTM水凝胶在500%拉伸应变下循环250次的电阻变化率; (d) PTM水凝胶在不同拉伸应变下的灵敏因子; (e) PTM水凝胶在10 Hz拉伸频率下的响应时间以及恢复时间; (f) PTM水凝胶的阶梯拉伸应变与电阻变化率曲线; (g) PAM、PT、PM和PTM水凝胶与不同材料之间的黏附强度

Figure 5 (a) Optical images of the PTM hydrogel in the original state and stretched state; (b) Relative resistance change curves of the PTM hydrogel under tensile strains of 100%, 200%, 300%, 400%, and 500%, respectively; (c) Relative resistance change curve of the PTM hydrogel during 250 stretching cycles at 500% tensile strain; (d) Gauge factor of the PTM hydrogel under different tensile strains; (e) Response time and recovery time of the PTM hydrogel at a stretching frequency of 10 Hz; (f) Stepwise tensile strain and relative resistance change curves of the PTM hydrogel; (g) Adhesion strength between the PTM hydrogel and different materials

轻松拉伸至其初始长度的5倍以上。在100%至500%应变范围内,以100%为间隔进行5次循环

拉伸测试,结果如图5(b)所示。水凝胶在各应变阶段均展现出稳定且可重复的电阻响应,无明显

信号漂移,表明其对不同幅度形变具有良好的适配性。为评估长期服役可靠性,在500%应变下进行了连续250次循环拉伸测试。如图5(c)所示,即使经过多次循环,电阻变化率仍与初始状态基本一致,未出现因网络结构破坏导致的电阻激增现象,证实其具备优异的动态传感稳定性。

PTM水凝胶在不同应变区间的GF分布如图5(d)所示。在100%应变内,GF为0.18;随着应变增至500%,GF逐步提升至0.61。这一变化规律源于高应变下MXene导电网络的“渐进式重构”——低应变时主要为网络弹性拉伸与滑移,高应变时部分导电通路发生断裂与重组,导致电阻变化率随应变非线性递增,使传感器在高拉伸场景下仍能保持良好的分辨能力。响应速度与恢复速度是传感器适配人体快速运动监测的关键。如图5(e)所示,通过施加10 Hz频率的阶跃应变激励进行测试,测得水凝胶的响应时间(电阻达到稳态变化90%所需时间)为130 ms,恢复时间(卸载后电阻恢复至初始值10%所需时间)为169 ms,均处于毫秒级,远快于人体常见运动(如手指弯曲)的周期,证实其具备优异的实时响应能力。图5(f)的阶梯应变传感测试进一步验证,水凝胶在不同应变等级的阶跃加载-卸载过程中,电阻信号均能快速、稳定地跟随应变变化,无明显滞后。

对可穿戴皮肤传感器而言,界面黏附强度是保障动态监测可靠性的核心前提。TA分子结构中富含的酚羟基,可通过氢键、疏水作用及 π - π 堆积等多重相互作用强化水凝胶与基底的界面结合,进而提升黏附性能。为明确单宁酸(TA)对水凝胶黏附性能的改性作用,本研究设计对照实验,对比了未添加TA的PAM和PM水凝胶与添加TA的PT和PTM水凝胶分别对铁、橡胶、塑料、皮肤和玻璃这5种常见材料的黏附强度差异。采用180°剥离试验(剥离速率10 mm/min)对直径1.5 cm的圆形PTM水凝胶样品进行定量表征,如图5(g)所示。黏附性能测试结果显示,在不含MXene的水凝胶体系中,TA的单独加入对PAM水凝胶的界面黏附强度无明显提升效果,这是由于纯PAM与TA仅通过单一氢键结合,未形成稳定的界面作用位点,且无其他协同作用强化界面结合;而在引入MXene的水凝胶体系中,TA的引入可大幅提升水凝胶与5种测试基材的黏附强度,实现了黏附

性能的协同增强。这一现象归因于MXene纳米片表面的羟基、氟基与TA分子的酚羟基之间形成了多重氢键与配位作用,同时TA分子的酚羟基可与铁、玻璃等无机基材形成配位键,与橡胶、塑料等有机基材产生疏水作用和 π - π 堆积,与人体皮肤表面的氨基、羟基形成氢键结合,通过多元界面相互作用构建了稳定的黏附界面,显著提升了水凝胶与不同性质基材的结合能力。不同基材的黏附强度测试结果表明,PTM复合水凝胶对各类基材均展现出良好的界面黏附效果,其中对玻璃基材的黏附强度最为优异,数值高达9.73 kPa,同时对人体模拟皮肤也具备适配的黏附强度,能够满足可穿戴传感器与人体体表的紧密贴附需求,为该水凝胶在体表动态监测场景下的稳定可靠应用提供了坚实的界面性能保障。为进一步验证其实际应用耐久性,本研究针对PTM水凝胶开展了黏附强度循环重复性测试,测试数据显示,水凝胶经10次反复“贴合一剥离”循环后,黏附强度仅衰减5%左右,界面黏附稳定性极佳,可适配多次重复使用的应用场景。此外,单宁酸作为天然多酚类物质,本身无生物毒性,生物相容性优异,即便水凝胶在反复剥离后有微量TA残留于皮肤表面,也不会对人体造成任何损伤,进一步保障了该柔性传感器在体表贴附应用中的生物安全性。基于上述优异的传感与黏附性能,开展了人体运动监测应用测试,如图6(a)~6(f)所示。结果表明,该传感器能稳定监测手臂、膝盖、手腕、手指等大幅度肢体弯曲运动,其信号幅值与运动幅度呈良好关联;同时,还能精准识别皱眉、张嘴等面部微表情产生的力学形变信号,为运动状态评估、情感识别及面部神经功能监测等应用提供了潜在技术方案。

2.5 PAM/TA/MXene水凝胶肌电与心电信号检测

为进一步拓展其在医疗健康监测领域的应用潜力,将PTM水凝胶传感器与外接信号采集系统集成,成功实现了对人体核心生命体征信号——肌电信号(EMG)与心电信号(ECG)的稳定采集,典型测试结果如图7所示。

基于PTM水凝胶电极(贴敷于腕部桡动脉处)采集的心电信号如图7(a)所示。所采集信号中的特征波形(P、Q、R、S和T波)形态清晰,与标准心电图特征吻合良好^[42]。图7(b)对比了商用电极与PTM水凝胶电极在静息状态下采集的ECG信号,二者表现出相近的检测精度与稳定性。为评估传

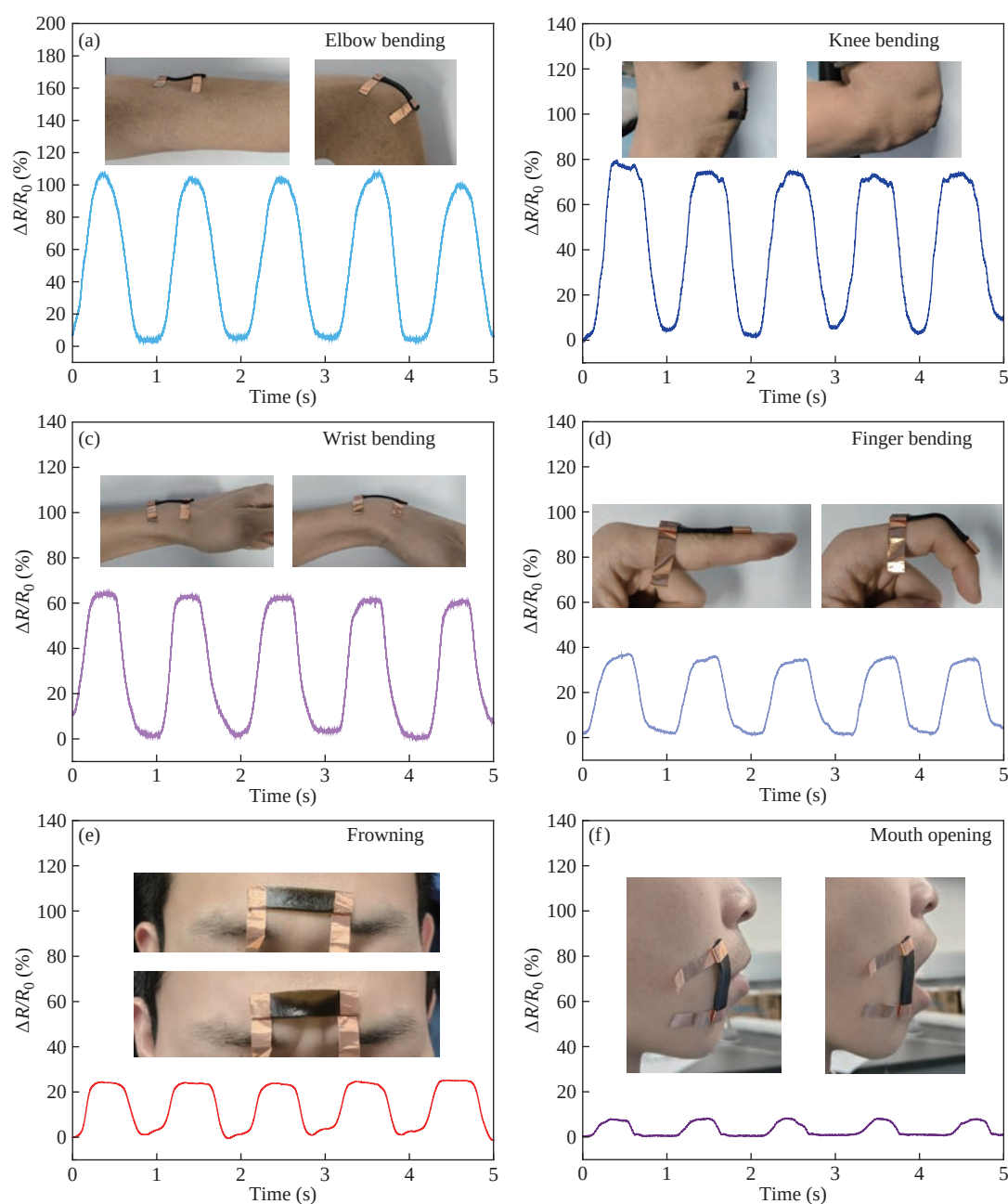


图6 PTM水凝胶的传感性能:(a)手臂弯曲、(b)膝盖弯曲、(c)手腕弯曲、(d)手指弯曲、(e)皱眉和(f)张嘴的电阻变化率

Figure 6 Sensing performance of PTM hydrogels: relative resistance change during (a) arm bending, (b) knee bending, (c) wrist bending, (d) finger bending, (e) frowning, (f) mouth opening

传感器在不同生理状态下的性能,图7(c)对比了静息、行走及跑步状态下的心电信号。结果显示,在不同运动负荷下,信号基线平稳,特征峰识别度高,有效反映了运动过程中心电活动的动态变化。图7(d)统计了2种电极在3种状态下的信噪比(SNR),结果表明PTM水凝胶电极在各项测试中的信噪比均优于商用电极。

此外,通过改变电极贴敷位置,对肌电信号进行了检测。图7(e)显示了在不同握力水平下采集

的EMG信号,其幅值随握力增加而显著增强,表明传感器具备良好的力学响应灵敏度。图7(f)对3种握力条件下的EMG信号进行了循环稳定性测试,结果显示信号重复性良好,符合临床级生理信号监测的基本要求。

综上所述,本研究证实PTM水凝胶传感器在动态环境下仍能实现高质量生理信号的采集,展现出在个性化医疗、长期健康监测及运动生理学等领域的广阔应用前景。

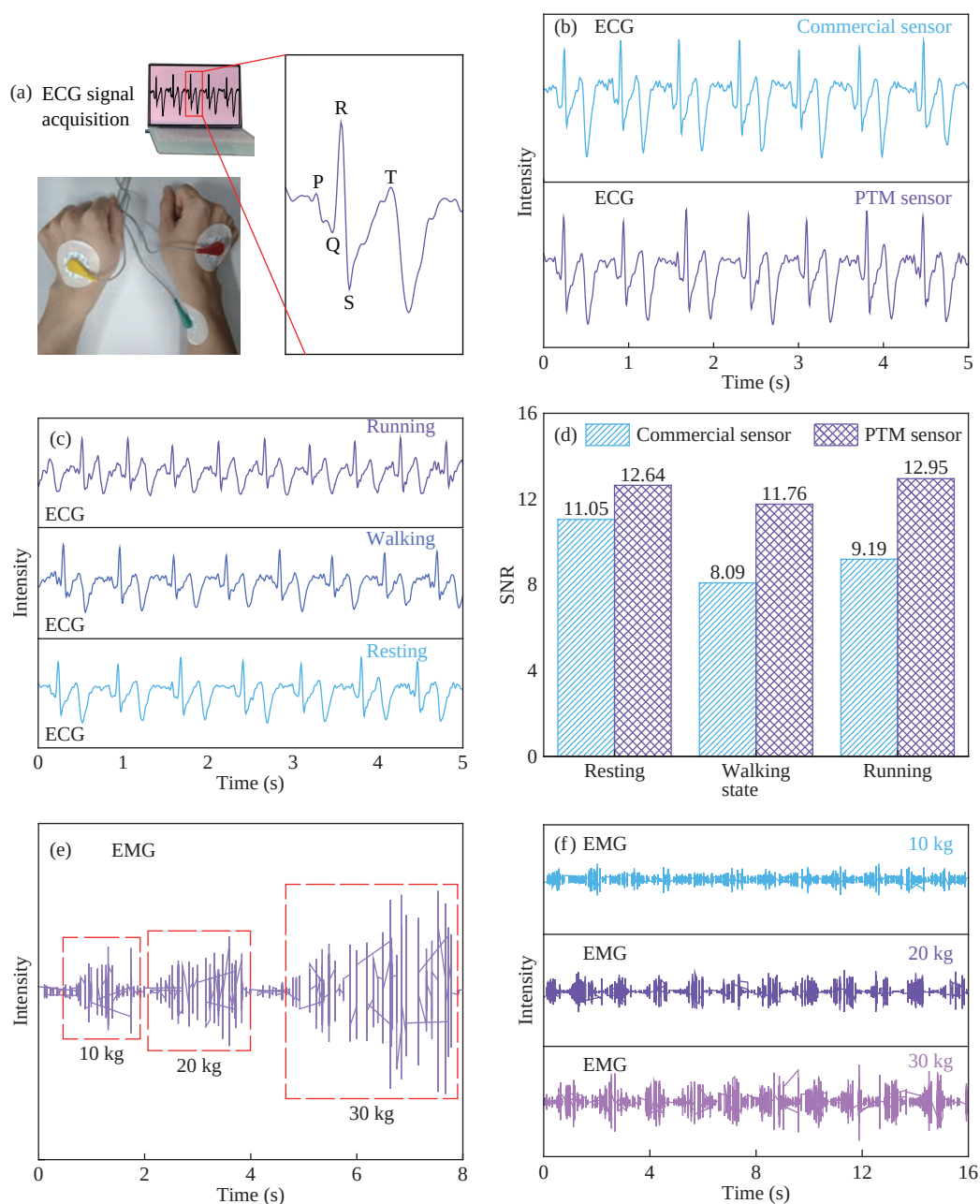


图7 PTM水凝胶的肌电信号(EMG)与心电信号(ECG)的监测:(a) ECG采集示意图以及特征峰;(b)商用电极与PTM水凝胶采集到的ECG对比图;(c) PTM水凝胶采集静息、行走、跑步3种状态下的ECG;(d)商用电极与PTM水凝胶对3种运动状态下采集到的ECG的信噪比对比;(e) PTM水凝胶采集到的3种不同握力下的EMG;(f) PTM水凝胶对3种握力下的EMG进行循环采集测试

Figure 7 Electromyography (EMG) and electrocardiography (ECG) monitoring of PTM hydrogels: (a) Schematic diagram of ECG acquisition and characteristic peaks; (b) Comparison of ECG signals collected by commercial electrodes and PTM hydrogels; (c) ECG signals collected by PTM hydrogels under resting, walking, and running states; (d) Comparison of signal-to-noise ratio (SNR) of ECG signals collected by commercial electrodes and PTM hydrogels under the three motion states; (e) EMG signals collected by PTM hydrogels under three different grip forces; (f) Cyclic acquisition test of EMG signals under three grip forces using PTM hydrogels

3 结论

制备了聚丙烯酰胺/单宁酸/MXene(PTM)

复合水凝胶柔性传感器,通过引入官能团丰富的二维MXene纳米片与多活性黏附位点的单宁酸(TA),实现了水凝胶多维度性能的协同提

升。相较于常规MXene基水凝胶传感器存在的电导率偏低($0.05\sim 0.08\text{ S}\cdot\text{m}^{-1}$)、拉伸性能有限($500\%\sim 1000\%$)等缺陷,该复合水凝胶兼具优异力学延展性、高传感灵敏度、稳定界面黏附性与良好生物相容性,综合性能更具竞争力。依托上述优势,PTM传感器不仅能精准监测肢体弯曲、面部微表情等各类人体运动,还能高效采集肌电(EMG)、心电(ECG)等关键生理电信号。实际检测中,传感器输出信号特征鲜明、稳定性优异,动态监测环境下的信号信噪比(SNR)优于商用刚性电极,展现出优质生理信号采集与可穿戴医疗监测的广阔应用潜力。综上,本研究通过材料设计与性能优化,开发出一种综合性能突出的PTM水凝胶传感器,在柔性、传感与黏附性之间实现了良好平衡,为新一代可穿戴医疗监测设备及智能人机交互系统提供了有价值的材料解决方案,在健康监护、运动科学、康复工程及软体机器人等领域具有广阔应用前景。

参考文献

- Cheng, M.; Zhu, G. T.; Zhang, F.; Tang, W. L.; Shi, J. P.; Yang, J. Q.; Zhu, L. Y. A review of flexible force sensors for human health monitoring. *J. Adv. Res.*, **2020**, 26, 53–68.
- Yuan, J. F.; Zhang, Y. Z.; Wei, C. S.; Zhu, R. A fully self-powered wearable leg movement sensing system for human health monitoring. *Adv. Sci.*, **2023**, 10(29), 2303114.
- Sun, Z. G.; Huang, L. X.; Zhang, Y.; Wu, X. F.; Zhang, M. H.; Liang, J. H.; Bao, Y. W.; Xia, X. H.; Gu, H. S.; Homewood, K.; Lourenco, M.; Gao, Y. Homojunction TiO_2 thin film-based room-temperature working H_2 sensors with non-noble metal electrodes. *Sens. Actuat. B Chem.*, **2024**, 398, 134675.
- Ma, Z. Y.; Zhang, Y.; Zhang, K. Y.; Deng, H.; Fu, Q. Recent progress in flexible capacitive sensors: structures and properties. *Nano Mater. Sci.*, **2023**, 5(3), 265–277.
- Tamura, T. Advanced wearable sensors technologies for healthcare monitoring. *Sensors*, **2025**, 25(2), 322.
- Vo, D. K.; Trinh, K. T. L. Advances in wearable biosensors for healthcare: current trends, applications, and future perspectives. *Biosensors*, **2024**, 14(11), 560.
- Wang, B. B.; Dai, L.; Hunter, L. A.; Zhang, L.; Yang, G. H.; Chen, J. C.; Zhang, X. Y.; He, Z. B.; Ni, Y. H. A multifunctional nanocellulose-based hydrogel for strain sensing and self-powering applications. *Carbohydr. Polym.*, **2021**, 268, 118210.
- Wang, X. T.; Ji, H. X.; Gao, L.; Hao, R.; Shi, Y.; Yang, J. Y.; Hao, Y.; Chen, J. H. Wearable hydrogel-based health monitoring systems: a new paradigm for health monitoring. *Chem. Eng. J.*, **2024**, 495, 153382.
- Yao, X.; Zhang, S. F.; Wei, N.; Qian, L. W.; Coseri, S. Cellulose-based conductive hydrogels for emerging intelligent sensors. *Adv. Fiber Mater.*, **2024**, 6(5), 1256–1305.
- Etana, B. B.; Malengier, B.; Krishnamoorthy, J.; van Langenhove, L. Integrating wearable textiles sensors and iot for continuous sEMG monitoring. *Sensors*, **2024**, 24(6), 1834.
- Huang, M. K.; Hu, C. X.; Xu, B. Q.; Huang, X. M.; Gao, X. M.; Ding, Z.; Guo, S. S. Wireless EEG monitoring system with wearable self-powered flexible sensors. *Chem. Eng. J.*, **2025**, 519, 165446.
- Kang, B. B.; Yan, X. R.; Zhao, Z. D.; Song, S. S. Dual-sensing, stretchable, fatigue-resistant, adhesive, and conductive hydrogels used as flexible sensors for human motion monitoring. *Langmuir*, **2022**, 38(22), 7013–7023.
- Romine, W.; Banerjee, T.; Goodman, G. Toward sensor-based sleep monitoring with electrodermal activity measures. *Sensors*, **2019**, 19(6), 1417.
- Širaić, B.; Ilić, V.; Toskić, L. Usability of wireless ECG body sensor for cardiac function monitoring during field testing. *Meas. Sci. Rev.*, **2021**, 21(2), 55–60.
- Tang, H. C.; Kang, B. B.; Li, Y. Y.; Zhao, Z. D.; Song, S. S. Self-healing hydrogels as flexible sensor for human motion monitoring. *ChemistrySelect*, **2021**, 6(40), 11130–11136.
- Wang, H. C.; Liu, J. L.; Cui, H. A.; Liu, Y. J.; Zhu, J. Z.; Wang, H. F.; Song, G.; Li, Z. L.; Chen, D. Strain sensor with high sensitivity and large response range based on self-assembled elastic-sliding conductive networks. *ACS Appl. Electron. Mater.*, **2021**, 3(4), 1758–1770.
- Chen, Y.; Lv, X. W.; Wang, Y. S.; Shi, J. Y.; Luo, S. H.; Fan, J. J.; Sun, B.; Liu, Y. P.; Fan, Q. L. Skin-adhesive lignin-grafted-polyacrylamide/hydroxypropyl cellulose hydrogel sensor for real-time cervical spine bending monitoring in human-machine Interface. *Int. J. Biol. Macromol.*, **2023**, 247, 125833.
- He, P.; Guo, R. S.; Hu, K.; Liu, K.; Lin, S.; Wu, H.; Huang, L. L.; Chen, L. H.; Ni, Y. H. Tough and super-stretchable conductive double network hydrogels with multiple sensations and moisture-electric generation. *Chem. Eng. J.*, **2021**, 414, 128726.
- Hu, X. S.; Jing, X.; Mei, J. W.; Liu, F. X.; Feng, P. Y.; Xu, J. Y.; Liu, Y. J. Highly sensitive, anti-freezing and stretchable hydrogels with modified MXene for

- multifunctional applications. *Food Chem.*, **2025**, 481, 144126.
- 20 Li, Q. Q.; Zhi, X. R.; Xia, Y. F.; Han, S. L.; Guo, W. Y.; Li, M. Y.; Wang, X. Ultrastretchable high-conductivity MXene-based organohydrogels for human health monitoring and machine-learning-assisted recognition. *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **2023**, 15(15), 19435–19446.
- 21 Wu, L. D.; Zhao, J. X.; Li, Y. X.; Qin, H. Y.; Zhai, X. J.; Li, P. Y.; Li, Y.; Liu, Y. N.; Chen, N. Y.; Li, Y. Biocompatible protein/liquid metal hydrogel-enabled wearable electronics for monitoring marine inhabitants' health. *Engineering*, **2025**, 47, 213–221.
- 22 Zhu, T. Y.; Jiang, W. J.; Shi, X.; Sun, D. X.; Yang, J. H.; Qi, X. D.; Wang, Y. MXene/Ag doped hydrated-salt hydrogels with excellent thermal/light energy storage, strain sensing and photothermal antibacterial performances for intelligent human healthcare. *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, **2023**, 170, 107526.
- 23 刘玉森, 王孟朝, 周迅, 岳兵兵. 基于多酚-金属离子催化系统的聚丙烯酰胺-羧甲基壳聚糖-木质素磺酸钠自愈合水凝胶摩擦纳米发电机. *高分子通报*, **2025**, 38(8), 1267–1279.
- 24 Dong, X. X.; Tong, S.; Dai, K.; Ren, D. D.; Wang, T. T.; Wang, Y. X.; Leng, Y. T.; Li, Q.; Wang, S. W. Preparation of PVA/PAM/Ag strain sensor via compound gelation. *J. Appl. Polym. Sci.*, **2022**, 139(14), 51883.
- 25 Qin, M.; Yuan, W. F.; Zhang, X. M.; Cheng, Y. Z.; Xu, M. J.; Wei, Y.; Chen, W. Y.; Huang, D. Preparation of PAA/PAM/MXene/TA hydrogel with antioxidant, healable ability as strain sensor. *Colloids Surf. B Biointerfaces*, **2022**, 214, 112482.
- 26 Yang, J. Q.; Fan, Y. L.; Xiong, X. L.; Jiang, Q. F.; Li, P.; Jian, J.; Chen, L. C. Highly conductive and adhesive wearable sensors based on PVA/PAM/SF/PEDOT: PSS double network hydrogels. *Appl. Phys. A*, **2024**, 130(3), 157.
- 27 Zhang, X. M.; Ma, Y. F.; Feng, P. Z. Highly sensitive and oxidation resistance polyacrylic/polyacrylamide hydrogel for multifunctional flexible sensors. *ACS Appl. Polym. Mater.*, **2025**, 7(17), 11128–11141.
- 28 Hasan, S.; Parvez Mahmud, M. A.; Adams, S. D.; Long, J. M.; Kong, L. X.; Kouzani, A. Z. Polyacrylamide-lithium chloride-MXene based conductive hydrogel as stretchable strain sensor and triboelectric nanogenerator. *ACS Appl. Electron. Mater.*, **2024**, 6(8), 5542–5554.
- 29 Si, Z. K.; Yan, Y. Z.; Liu, X.; Xu, L. L.; Liao, H. X.; Nie, Z.; Xue, C. H.; Wan, G. P.; Wang, G. Z. Flexible and multifunctional microcrystalline cellulose/Ti₃C₂T_x MXene-POSS composite films for electromagnetic interference shielding in extreme environments. *Chem. Eng. J.*, **2025**, 525, 169897.
- 30 Wu, W. X.; Feng, W. Y.; Yu, Y.; Li, L.; Lu, M. S.; Qian, G. F.; Chen, C. Z.; Min, D. Y. Highly sensitive MXene-enhanced polyacrylamide/carboxymethyl cellulose double-network hydrogels with wide operation range for wearable electronics. *Ind. Crops Prod.*, **2024**, 214, 118573.
- 31 Xu, M. L.; Ge, R. F.; Wang, W. Y.; Peng, Y. Q.; Li, Z. C.; Liu, W. H.; Wang, L. Xanthan gum-toughened nanocomposite conductive hydrogel for wearable sensors and smart livestock monitoring. *Int. J. Biol. Macromol.*, **2025**, 318, 144983.
- 32 Zhai, H. L.; Wang, T. T.; Yue, C.; Zhang, H.; Ma, L. M.; Li, Z. P.; Wang, J. Q.; Yang, S. R. Self-healing, adhesive, and antioxidant MXene-reinforced conductive hydrogels for stain sensor. *Mater. Today Commun.*, **2023**, 35, 106245.
- 33 Liu, Y. F.; Bai, Z. X.; Lin, G.; Xia, Y. Q.; Tong, L. F.; Li, T. R.; Liu, C. C.; Liu, S. N.; Jia, K.; Liu, X. B. Tannic acid-mediated interfacial layer-by-layer self-assembly of nanofiltration membranes for high-efficient dye separation. *Appl. Surf. Sci.*, **2022**, 602, 154264.
- 34 Wang, H.; Wang, C. P.; Zou, Y.; Hu, J. J.; Li, Y. W.; Cheng, Y. Y. Natural polyphenols in drug delivery systems: current status and future challenges. *Giant*, **2020**, 3, 100022.
- 35 李冬冬, 蔡超, 杨萌, 赵宁, 徐坚. 基于单宁酸的功能材料研究进展. *高分子通报*, **2017**, (9), 10–20.
- 36 Zhang, S. P.; Guo, F. M.; Li, M.; Yang, M. D.; Zhang, D.; Han, L.; Li, X. J.; Zhang, Y. J.; Cao, A. Y.; Shang, Y. Y. Fast gelling, high performance MXene hydrogels for wearable sensors. *J. Colloid Interface Sci.*, **2024**, 658, 137–147.
- 37 Hajian, S.; Maddipatla, D.; Narakathu, B. B.; Atashbar, M. Z. MXene-based flexible sensors: a review. *Front. Sens.*, **2022**, 3, 1006749.
- 38 Chen, C.; Yang, H.; Yang, X.; Ma, Q. H. Tannic acid: a crosslinker leading to versatile functional polymeric networks: a review. *RSC Adv.*, **2022**, 12(13), 7689–7711.
- 39 Wu, W. Z.; Mi, Y.; Meng, Q. Q.; Li, N.; Li, W.; Wang, P.; Hou, Y. Natural polyphenols as novel interventions for aging and age-related diseases: exploring efficacy, mechanisms of action and implications for future research. *Chin. Herb. Med.*, **2025**, 17(2), 279–291.
- 40 Duan, H. Y.; Zhang, Y. L.; Zhang, Y. T.; Zhu, P. C.; Mao, Y. C. Recent advances of stretchable nanomaterial-based hydrogels for wearable sensors and electrophysiological signals monitoring. *Nanomaterials*, **2024**, 14(17), 1398.
- 41 Li, R. R.; Chang, S. J.; Bi, J. H.; Guo, H. T.; Yi, J.

- Y.; Chu, C. Q. Flexible, stretchable, and self-healing MXene-based conductive hydrogels for human health monitoring. *Polymers*, **2025**, 17(19), 2683.
- 42 Liu, W.; Xie, R. J.; Zhu, J. Y.; Wu, J. S.; Hui, J. F.; Zheng, X. Y.; Huo, F. W.; Fan, D. D. A temperature responsive adhesive hydrogel for fabrication of flexible electronic sensors. *npj Flex. Electron.*, **2022**, 6, 68.
- 43 Shi, S. T.; Wang, Y. Y.; Ye, Z. W.; Xie, H. X.; Liu, C. C.; Liao, J. Q.; Zhao, D. W.; Sun, Q. F.; Shamshina, J. L.; Shen, X. P. Dual-working-pattern nanosheet-based hydrogel sensors for constructing human-machine and physiological-electric interfaces. *Adv. Sci.*, **2025**, 12(33), e14301.
- 44 Son, D.; Lee, J.; Qiao, S. T.; Ghaffari, R.; Kim, J.; Lee, J. E.; Song, C.; Kim, S. J.; Lee, D. J.; Jun, S. W.; Yang, S. X.; Park, M.; Shin, J.; Do, K.; Lee, M.; Kang, K.; Hwang, C. S.; Lu, N. S.; Hyeon, T.; Kim, D. H. Multifunctional wearable devices for diagnosis and therapy of movement disorders. *Nat. Nanotechnol.*, **2014**, 9(5), 397–404.
- 45 Cui, D. P.; Sun, Y. L.; Li, T.; Hu, Z. W.; Zhao, Y.; Wang, X. Y.; Chen, S. X.; Toktarbay, Z.; Wei, H. G. Mechanically robust polyacrylamide/gelatin ionic hydrogels reinforced by sodium alginate for wearable device applications. *Adv. Compos. Hybrid Mater.*, **2025**, 8(3), 233.
- 46 Ma, Y. H.; Zhang, D. Z.; Wang, Z. H.; Zhang, H.; Xia, H.; Mao, R. Y.; Cai, H. L.; Luan, H. X. Self-adhesive, anti-freezing MXene-based hydrogel strain sensor for motion monitoring and handwriting recognition with deep learning. *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **2023**, 15(24), 29413–29424.
- 47 Xiang, J. J.; Liu, A. D.; Dong, Y. X.; Chen, Y. Y.; Liu, X.; Luo, Y. J.; Zhang, N. F.; Chen, T.; Ye, M. D.; Yang, Y.; Guo, W. X. Stretchable, antifreeze, and water-retaining silk fibroin-based ionic conductive hydrogel for wearable sensors. *ACS Appl. Electron. Mater.*, **2025**, 7(9), 4307–4318.
- 48 Zhao, Y.; Feng, H. X.; Shang, Q.; Jiao, L. H. Design high ductility and self-adhesion ionic hydrogel for strain sensors using polyacrylamide and gum Arabic. *Polym. Bull.*, **2024**, 81(17), 15513–15531.
- 49 张姗姗, 张强, 马兴飞. 面向柔性可穿戴传感器的高韧性双网络离子导电水凝胶. *高分子通报*, **2024**, 37(11), 1636–1644.
- 50 Liu, J. H.; Meng, X. J.; Dong, F.; Ren, S. Y.; Wang, B.; Tan, F. Highly stretchable and sensitive $\text{Ti}_3\text{C}_2\text{T}_x$ MXene/sodium alginate/acrylamide hydrogel for flexible electronic sensors. *ACS Appl. Polym. Mater.*, **2022**, 4(11), 8216–8226.
- 51 Ma, J. Z.; Liang, H. Y.; Li, W.; Liang, E. H.; Zhang, W. B. Polyacrylamide-gelatin-MXene composite hydrogels with interpenetrating network structures for human movement monitoring. *ACS Appl. Polym. Mater.*, **2025**, 7(7), 4549–4560.
- 52 Yuan, W.; Qu, X. Y.; Lu, Y.; Zhao, W.; Ren, Y. F.; Wang, Q.; Wang, W. J.; Dong, X. C. MXene-composited highly stretchable, sensitive and durable hydrogel for flexible strain sensors. *Chin. Chem. Lett.*, **2021**, 32(6), 2021–2026.
- 53 Soni, S.; Wadhwa, R.; Rishi, M.; Kalra, J.; Teja, A.; Bhatia, D. D.; Gupta, D. High-performance polyacrylamide hydrogel-based wearable sensors for electrocardiography monitoring and motion sensing. *ACS Appl. Electron. Mater.*, **2025**, 7(9), 4025–4034.
- 54 Yang, Q.; Li, M. Z.; Chen, R.; Gao, D. H.; Wang, Z.; Qin, C. J.; Yang, W. J.; Liu, H.; Zhang, P. S. Enhanced mechanical strength of metal ion-doped MXene-based double-network hydrogels for highly sensitive and durable flexible sensors. *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **2023**, 15(44), 51774–51784.
- 55 Chen, J. N.; Wang, Y.; Xu, W. J.; Wu, X.; Bao, Q.; You, L. J.; Xiong, C. H.; Wang, S. Y. High performance breathable conductive hydrogel sensor based on sodium alginate and polyacrylamide with cross-linked dual network structures. *Int. J. Biol. Macromol.*, **2025**, 307, 142172.
- 56 Lou, Y. W.; Wang, J. K.; Peng, Y. B.; Wang, X. N.; Zhang, J. N.; Chen, L. F.; Gao, W. C.; Gao, Z. P.; Li, X. N.; Chen, W. Y.; Zhao, M. Double network hydrogel confined MXene/Liquid metal by dynamic hydrogen bond for high-performance wearable sensors. *Chem. Eng. J.*, **2024**, 500, 156884.
- 57 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.
- 58 Zhang, H. D.; Shen, H.; Lan, J. N.; Wu, H.; Wang, L. J.; Zhou, J. P. Dual-network polyacrylamide/carboxymethyl chitosan-grafted-polyaniline conductive hydrogels for wearable strain sensors. *Carbohydr. Polym.*, **2022**, 295, 119848.
- 59 Wang, H. B.; Xiang, J.; Wen, X.; Du, X. S.; Wang, Y.; Du, Z. L.; Cheng, X.; Wang, S. Multifunctional skin-inspired resilient MXene-embedded nanocomposite hydrogels for wireless wearable electronics. *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, **2022**, 155, 106835.
- 60 Zeng, J. W.; Qian, H. X.; Jia, R. P.; Xu, M. T.; Wang, S.; Xu, X. W.; Chang, S. F.; Wu, D. D.; Shi, J. C.; Han, S. MXene-based dual-network conductive organic hydrogel for wearable sensor to monitor human motions. *J. Appl. Polym. Sci.*, **2023**, 140(32), e54260.