第 37 卷 第 11 期
2024 年 11 月

高 分 子 通 报
POLYMER BULLETIN

Vol. 37, No. 11
November, 2024

·研究论文·

面向柔性可穿戴传感器的高韧性双网络离子导电水凝胶

张姗姗* 张强 马兴飞

(商丘工学院机械工程学院，商丘 476000)

摘要：高性能水凝胶具有优异的韧性、导电性和传感功能，被视为制备柔性可穿戴传感器理想的候选者。然而，水凝胶面临着机械性能与电化学性能之间的权衡，限制了其在柔性可穿戴传感器中的广泛应用。为了解决水凝胶机械性能与电化学性能之间难以兼容的矛盾，本文将NaCl引入聚乙烯醇/聚丙酰胺(PVA/PAM)双网络水凝胶中，采用一锅法制备了PVA/PAM/NaCl (PAN) 导电水凝胶。NaCl的添加为PAN水凝胶引入了物理缠结，并提供了致密的三维网络结构。PAN水凝胶不仅具有优异的力学性能，包括1.06 MPa的拉伸强度、1550%的拉伸应变和2.79 MPa的压缩强度，同时表现出较高的电导率(2.25 $S\cdot m^{-1}$)。此外，PAN水凝胶应变传感器的灵敏度为1.089，且具有较高的线性相关性(R^2=0.988)，能够精确可靠地检测人体运动。通过将PAN水凝胶传感器装配在人体的不同位置，能够精准地识别不同肌肉运动产生的信号。

关键词：聚乙烯醇；柔性可穿戴；水凝胶；离子导电

High-toughness Dual-network Ion-conductive Hydrogel for Flexible Wearable Sensors

ZHANG Shan-shan*, ZHANG Qiang, MA Xing-fei

(*School of Mechanical Engineering, Shangqiu Institute of Technology, Shangqiu 476000, China*)

Abstract: High-performance hydrogels, known for their excellent toughness, conductivity, and sensing capabilities, are considered as ideal candidates for flexible wearable sensors. However, hydrogels often face a trade-off between mechanical performance and electrochemical properties, limiting their extensive application in flexible wearable sensors. To address the incompatibility between the mechanical and electrochemical properties of hydrogels, we introduced NaCl into a poly(vinyl alcohol)/polyacrylamide (PVA/PAM) dual-network hydrogel. Using a one-pot synthesis method, we prepared the PVA/PAM/NaCl (PAN) conductive hydrogel. The inclusion of NaCl introduces physical entanglements into the PAN hydrogel, providing a dense three-dimensional network structure. The PAN hydrogel exhibits outstanding mechanical properties, including a tensile strength of 1.06 MPa, an elongation at break of 1550%, and a compressive strength of 2.79 MPa, while also demonstrating high electrical conductivity (2.25 $S\cdot m^{-1}$). Additionally, the strain sensitivity of the PAN hydrogel sensor is 1.089, with a high linear correlation (R^2 = 0.988), enabling precise and reliable detection of human motion. By attaching PAN hydrogel sensors to various parts of the human body, it is possible to accurately identify signals generated by different muscle movements.

Keywords: Poly(vinyl alcohol); Flexible wearable; Hydrogel; Ionic conductivity

2024-06-21 收稿，2024-07-16 录用，2024-08-13 网络出版
基金项目：河南省高等教育教学改革研究与实践项目 (项目号 2024SJGLX0586)
* 通信联系人：张姗姗，E-mail: zshan0620@163.com
doi: 10.14028/j.cnki.1003-3726.2024.24.185

引用：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
Citation: Zhang, S. S.; Zhang, Q.; Ma, X. F. High-toughness dual-network ion-conductive hydrogel for flexible wearable sensors. *Polym. Bull.* (in Chinese), **2024**, 37(11), 1636–1644

柔性可穿戴器件作为新一代人机交互的接口为物联网领域提供了新的动力。随着人机界面技术的发展，柔性可穿戴设备被广泛应用于多模态电子皮肤、柔性机器人和表皮传感器等[1~3]。其中，柔性传感器作为可穿戴设备核心的功能器件，实现了外界信号刺激转化为可视化电信号的功能。目前，水凝胶因具有良好的柔韧性、生物相容性和易加工等优点而成为制备柔性可穿戴器件理想的候选者。然而，大多数水凝胶材料面临着力学强度差、应变范围小和导电性能弱等困扰，限制了柔性可穿戴设备的实际应用[4~8]。

为了解决水凝胶基柔性传感器机械性能与电气性能之间的矛盾，一系列柔性材料被开发出来。通常在水凝胶基质中引入导电填料(例如：碳材料、导电聚合物、金属粉末和纳米颗粒等)能够实现一定范围内的力学或导电性的增强[9~11]。然而，填料与水凝胶之间的相分离通常会导致拉伸性能、韧性和抗疲劳性能的恶化。Suo 等[12]通过在水凝胶中添加 Fe_3O_4 粉末实现了超过 2000% 的拉伸应变，但保持了 40 kPa 的拉伸强度。此外，宁方栋等[13]合成了掺杂纳米微球的聚丙烯酰胺(PAM)水凝胶，其具有 860 kPa 的拉伸强度和 1280% 的拉伸应变。同样地，张熙等利用羟丙基甲基纤维素(HPMC)和丙烯酰胺(AM)制备了具有高导电性(8.4 $S·m^{-1}$)的双网络水凝胶，然而其断裂强度仅为 0.7 MPa。因此，迫切需求兼具优异机械性能和电气性能的水凝胶柔性传感器，以实现长期稳定和准确的信号采集[14,15]。

综上所述，本文以聚乙烯醇(PVA)、AM 和氯化钠(NaCl)为主要原料，通过一锅法自由基聚合制备出优异机械性能和电气性能的双网络 PAN 水凝胶，以克服传统水凝胶导电材料性能不兼容等问题。PAN 水凝胶呈现杰出的综合性能，包括拉伸性能(>1000% 应变)、拉伸强度(~1.06 MPa)、韧性(6.63 $MJ·m^{-3}$)、导电性(2.25 $S·m^{-1}$)和低迟滞率(<15%)。此外，基于 PAN 水凝胶构建了电阻型柔性传感器，并展示了其优异的传感器性能，可以将不同的机械刺激转换为电信号。通过将 PAN 水凝胶传感器装配在人体的不同部位，表明其具备获取不同肌肉运动信号的能力。这项工作为机械性能优异的导电水凝胶的设计和研究提供了新的思路，并拓宽了其在智能软电子和可穿戴传感器方面的实际应用。

1　实验部分

1.1　材料

聚乙烯醇(PVA,1788 型)、丙烯酰胺(AM)、*N*,*N*-亚甲基双丙烯酰胺(MBAA)和甘油由上海麦克林生化有限公司供应；2-羟基-4'-(2-羟乙氧基)-2-甲基苯丙酮(光引发剂 2959)、氯化钠(NaCl，AR，99.5%)购自上海阿拉丁生化科技有限公司。以上药品无需进一步纯化，直接使用。其他所需的玻璃板、橡胶垫圈、紫外灯等物品均采购于当地的供应商。

1.2　PPM 水凝的制备

采用一锅法制备了 PAN 离子水凝胶。首先，将 1.5 g PVA 溶于 20 mL 蒸馏水中，90 ℃搅拌。然后将 0.25 g 甘油(Gly)和一定比例的 NaCl 缓慢加入 PVA 水溶液中，得到 PVA/Gly/NaCl 前驱体。然后将 30 g AM、30 mg MBAA 和 15 mg 光引发剂 2959 加入到 PVA/Gly/NaCl 溶液中，在水浴中搅拌至所有组分溶解。然后将原液慢慢倒入 2 mm 高的硅胶垫片与两块玻璃板结合的模具中。最后，将所得溶液置于紫外光(λ = 365 nm，50 $mW·cm^{-2}$ 强度)下 1 h，形成 PVA/PAM/Gly/NaCl 离子水凝胶，简称为 PAN 离子水凝胶。

1.3　测试仪器

万能材料试验机(AG-X plus, SHIMADZU)；电化学工作站(上海辰华，CHI660D)；X 射线粉末衍射 (Panalytical, Netherlands)；紫外分光光度计(Thermo NanoDrop One)；数字源表 (Keithley2450, 美国)。

1.4　表征方法

1.4.1　机械性能的表征

制备哑铃形水凝胶试样进行拉伸试验。试验在室温下的万能材料试验机上进行，变形速率为 100 $mm·min^{-1}$。拉伸应变由拉伸长度除以原始长度确定。应力是通过将施加的力除以实际横截

面面积来计算的。试样的抗拉强度和伸长率对应于试样断裂时的拉伸应力和应变。制备圆柱型试件进行了压缩试验，其直径为15 mm，高度为10 mm，压缩速率为0.5 mm·min^{-1}。

1.4.2 灵敏度的测量

灵敏度定义为GF = $(\Delta R/R_0)/\varepsilon$计算的规范因子，其中$R_0$为初始阻值，$\Delta R$由实时测量的电阻($R$)减去$R_0$计算得到，$\varepsilon$为拉伸应变。

1.4.3 电导率的测量

将PAN离子水凝胶的制备成尺寸为10 mm×10 mm，厚度为2 mm的试件，夹在由镍网制成的两个电极之间。离子电导率由$\sigma = R/(L\times A)$计算得到，其中L为PAN离子水凝胶试样的厚度，A为试样与电极的有效重叠面积，R为Nyquist图中$-Z''= 0$时的体电阻。

2 结果与讨论

2.1 PAN水凝胶的特性

如图1所示，通过合理的选择单体、交联剂和金属离子合成了具有超强可拉伸的离子导电水凝胶，这主要归因于PAN离子水凝胶的双网络系统。首先，长链的PVA作为刚性的第一网络赋予了PAN强韧的特性。随后，单体AM被引入水凝胶体系中，通过光聚合形成具有纠缠的聚合物网络，与第一网络共同构成了互穿双网络系统。此外，将甘油注入PAN中，由于其含有大量的羟基，不仅增强了物理交联的链间网络，而且还提高了水凝胶柔软的质地。为了赋予PAN优异的导电性，NaCl被作为导电相添加进水凝胶，形成了具有连续的导电网络。

通过一锅法将PAN各组分充分混合，形成了透明的前驱液(图2a)。在经过λ=365 nm波长的紫外光聚合后，形成的PAN水凝胶表现出超强的力学性能。如图2(b)所示，PAN可以轻松地实现扭转、拉伸等行为而保持良好的本征弹性。经过紫外分光光度计的测量，PAN的透明度可以高达75% (图2c)。同时，我们测量了PAN的电化学行为。图2(d)展示了频率与PAN阻抗和相位角之间的联系，结果表明PAN水凝胶中离子具有良好的导电通路。此外，通过Nyquist图展示的结果获得了相同的结论(图2e)，经计算PAN水凝胶离子电导率为2.25 S·m^{-1}。上述测试选择组分为PAN-2进行，详细讨论见下文。因此，PAN水凝胶兼具优异的机械和电气性能，为柔性可穿戴设备的实际应用提供新的制备途径。

2.2 PAN水凝胶的可拉伸性及其原理

柔性可穿戴设备在实际使用中面临着拉伸等机械行为的刺激。为了进一步探究PAN在拉伸过程中的力学变化，选取一系列不同组分的水凝胶进行测试。如图3(a)所示，PAN水凝胶能够在万能材料试验机的作用下承受超大应变的拉伸而不发生断裂，直接证明了其作为柔性可穿戴设备的潜力。通过改变PAN中NaCl的含量以进一步控制水凝胶的机械性能。我们将0、0.3、0.6和0.9 g的NaCl引入PAN水凝胶中，分别命名为PAN-0、PAN-1、PAN-2和PAN-3。如图3(b)所示，随着NaCl导电相的引入，PAN水凝胶呈现明显的力学性能的强化。具体来说，随着NaCl含量的逐步提升，PAN水凝胶的拉伸强度由0.23 MPa (PAN-0)提升到1.06 MPa (PAN-3)，对应的拉伸应变由1550%降低到760%。同时，经过计算获得不同组分的PAN水凝胶的弹性模量和韧性。如图3(c)所示，由于盐析效应引起的链缠结，PAN水凝胶的弹性模量与NaCl的含量成正相关性，从63.7 kPa增加到600 kPa。此外，PAN水凝胶的韧性与NaCl的含量呈现先增大后减小的趋势，并在PAN-2组

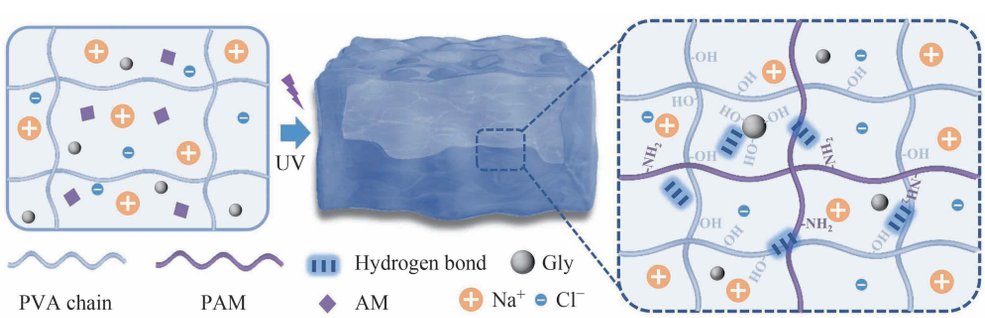


图 1 PAN 水凝胶的设计原理

Figure 1 Design principle of PAN hydrogel

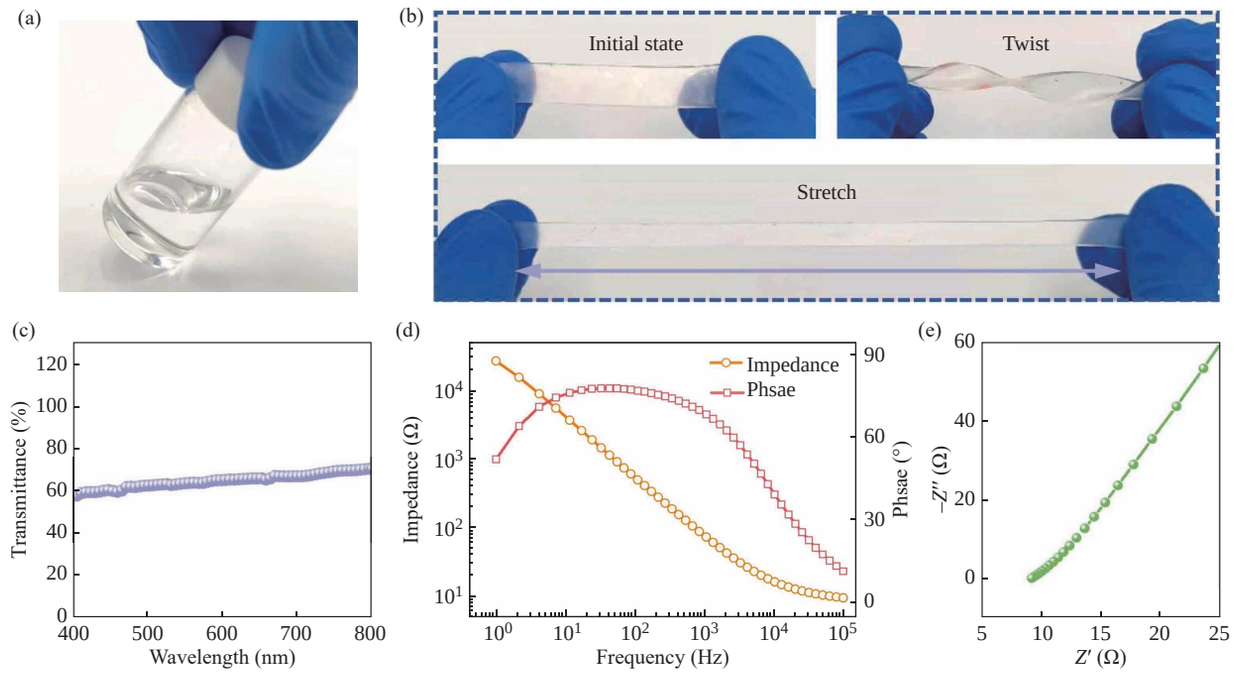


图 2　(a) PAN 水凝胶前驱液的光学图像；(b) PAN 水凝胶的力学行为；(c) PAN 水凝胶的透明度；PAN 水凝胶的电化学测试：(d) Bode 图，(e) Nyquist 图

Figure 2　(a) Optical image of PAN hydrogel precursor solution; (b) Mechanical behavior of PAN hydrogel; (c) Transparency of PAN hydrogel; Electrochemical tests of PAN hydrogel: (d) Bode plot and (e) Nyquist plot

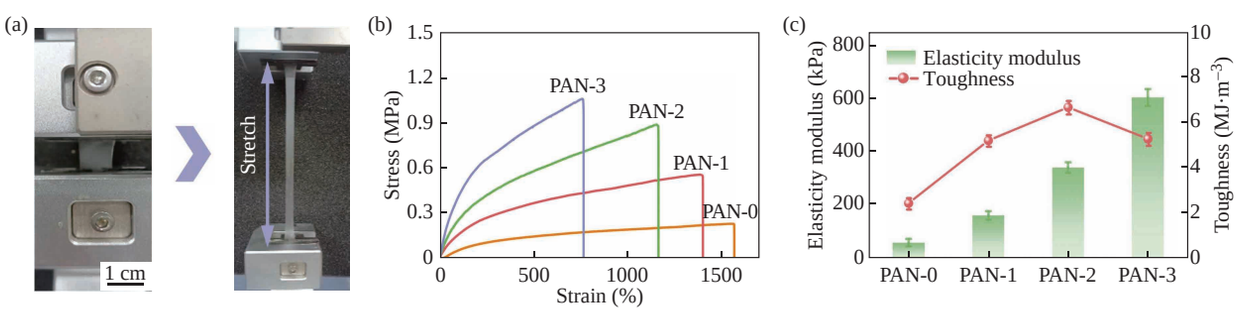


图 3　(a) PAN 水凝胶拉伸状态下的光学图像；(b，c) 不同 NaCl 含量的 PAN 水凝胶的应力-应变曲线，以及对应的弹性模量和韧性

Figure 3　(a) Optical image of PAN hydrogel under tensile strain; (b,c) Stress-strain curves of PAN hydrogels with different NaCl contents, and corresponding elastic modulus and toughness

分中取得 6.63 MJ·m^{-3} 的最优值。这主要归因于引入的 NaCl 在达到渗透阈值后，多余的部分导致 PAN 水凝胶应变的急剧弱化。因此，比较了不同组分的性能（表 1），将优化后的 PAN-2 作为主体样进行后续的测试。

为了揭示不同组分 PAN 水凝胶的增强机制，我们通过 X 射线粉末衍射 (XRD) 对其进行了测试。如图 4(a) 所示，PAN 水凝胶在 2θ=25° 有一个大而宽的特征峰，并且随着 NaCl 含量的提升特征峰逐渐减小。这归因于 NaCl 有效改变了 PAN 水凝胶的结晶度，导致聚合物网络结构的重构。根据 PAN 水凝胶的扫描电子显微镜 (SEM) 图谱显示（图 4b 和 4c），PAN-0 水凝胶呈现出大小不一的蜂窝孔状网络结构。NaCl 的引入使 PAN 水凝胶网

表 1　不同组分下 PAN 水凝胶的性能

Table 1　Properties of PAN hydrogels with different components

No.	Strain (%)	Stress (MPa)	Toughness (MJ·m^{-3})
PAN-0	760	1.06	2.46
PAN-1	1150	0.89	5.18
PAN-2	1450	0.55	6.63
PAN-3	1550	0.23	5.26

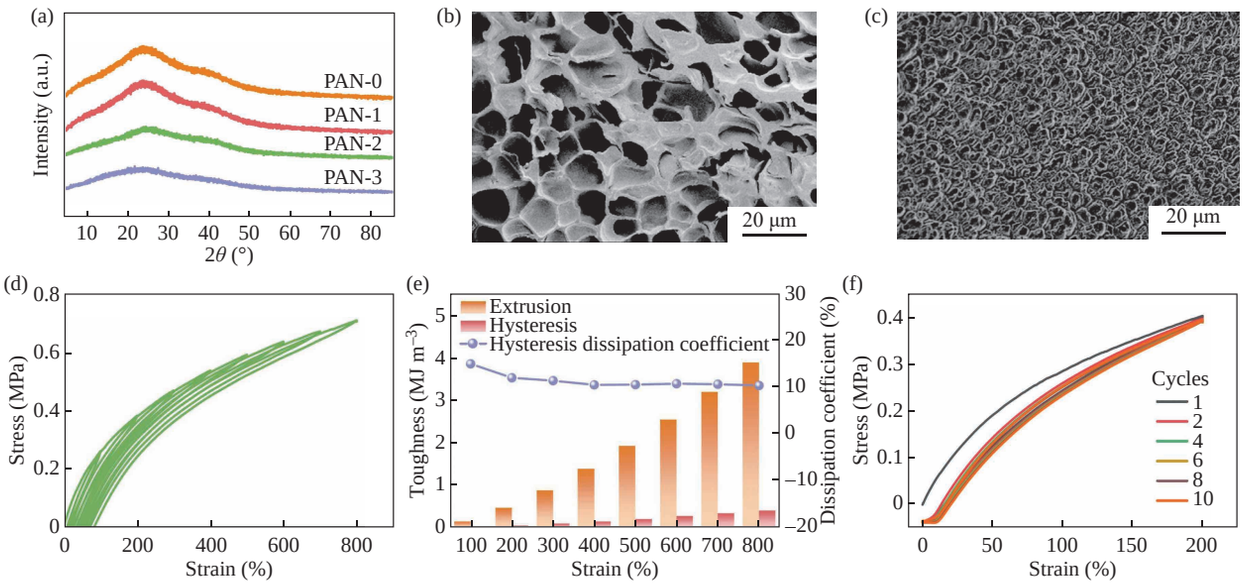


图 4　(a) 不同 NaCl 含量的 PAN 水凝胶的 XRD 图谱；(b) PAN-0 和 (c) PAN-3 的 SEM 显微图像；(d) PAN 水凝胶在 100%~800% 应变下的加载-卸载曲线，以及 (e) 对应的滞后和韧性；(f) PAN 水凝胶在 200% 的应变下连续加载-卸载 10 次

Figure 4　(a) XRD patterns of PAN hydrogels with different NaCl contents; SEM micrographs of (b) PAN-0 and (c) PAN-3; (d) Loading-unloading curves of PAN hydrogels at 100%–800% strain, with (e) corresponding hysteresis and toughness; (f) Continuous loading-unloading cycles of PAN hydrogel at 200% strain for 10 cycles

络结构逐渐向密集而又无序的孔洞转变，这进一步验证了从XRD分析的结构。

如图4(d)所示，对PAN水凝胶进行了从100%~800%应变的加载-卸载拉伸实验。应力-应变曲线显示PAN水凝胶具有适中的弹性，能够在大应变保持良好的恢复性能。为了定量分析PAN的弹性，从应力-应变曲线中计算获得图4(e)结果。随着拉伸应变的逐渐增加，韧性随之增大。值得注意的是，对应的滞后率稳定在12%，表明其具有有效的能量耗散机制。此外，图4(f)展示了PAN水凝胶在200%的应变下重复加载-卸载10次后的力学曲线，结果表明除第一次拉伸曲线外，剩余的力学曲线保持高度的重合，从而证明PAN水凝胶具有良好的抗疲劳特性。

2.3　PAN水凝胶的压缩性能

将PAN水凝胶制备成直径为15 mm、高10 mm的圆柱试件，并进行了一系列的压缩实验。如图5(a)所示，经过万能材料试验机压缩的PAN水凝胶，能够毫无损伤地恢复初始状态。此外，分别测量了不同组分下PAN水凝胶的压缩性能。如图5(b) 所示，随着NaCl含量的增加，PAN水凝胶压缩应力逐渐增大，这与测量的拉伸应力的结果保持一致(图5c)，对应的最大压缩应力从0.58 MPa (PAN-0)增加到2.79 MPa (PAN-3)。同时，对PAN水凝胶主体样进行了循环压缩实验测试，并将结果反映在图5(d)的力学曲线中。结果表明，PAN水凝胶的应力-应变曲线保持几乎相同的加载和卸载力学路径，并且具有较小的迟滞环。通过计算不同循环圈数的韧性和能量耗散率获得详细的力学变化过程。如图5(e)所示，循环压缩实验的过程中，PAN水凝胶的韧性显示出轻微的降低，表明存在一定能量的耗散，对应的滞后率稳定在15%，进一步验证了PAN水凝的弹性行为。因此，所合成的PAN水凝胶能够经受不同的机械拉伸和压缩，有望成为制备柔性可穿戴设备理想的候选材料。

2.4　PAN水凝胶的传感性能

传感性能是衡量柔性可穿戴设备与外界进行信息交互的重要指标。如图6(a)所示，我们测试了PAN水凝胶传感器在拉伸超过800%应变下对应的相对电阻变化($\Delta R/R_0$)。结果表明，PAN水凝胶传感器具有良好的线性电阻变化特性。从拟合的曲线中获得了PAN水凝胶传感器的灵敏度(GF)为1.089，线性相关性(R^2)保持在0.988。为了展示PAN水凝胶传感器优异的应变响应能力，将拉伸应变逐步从20%增加到400%，PAN水凝胶传感器的$\Delta R/R_0$呈现稳定的增长，证实了其具有实时反馈不同应变大小的能力(图6b)。其次，通过对PAN水凝胶传感器施加1%的微小应变，同样

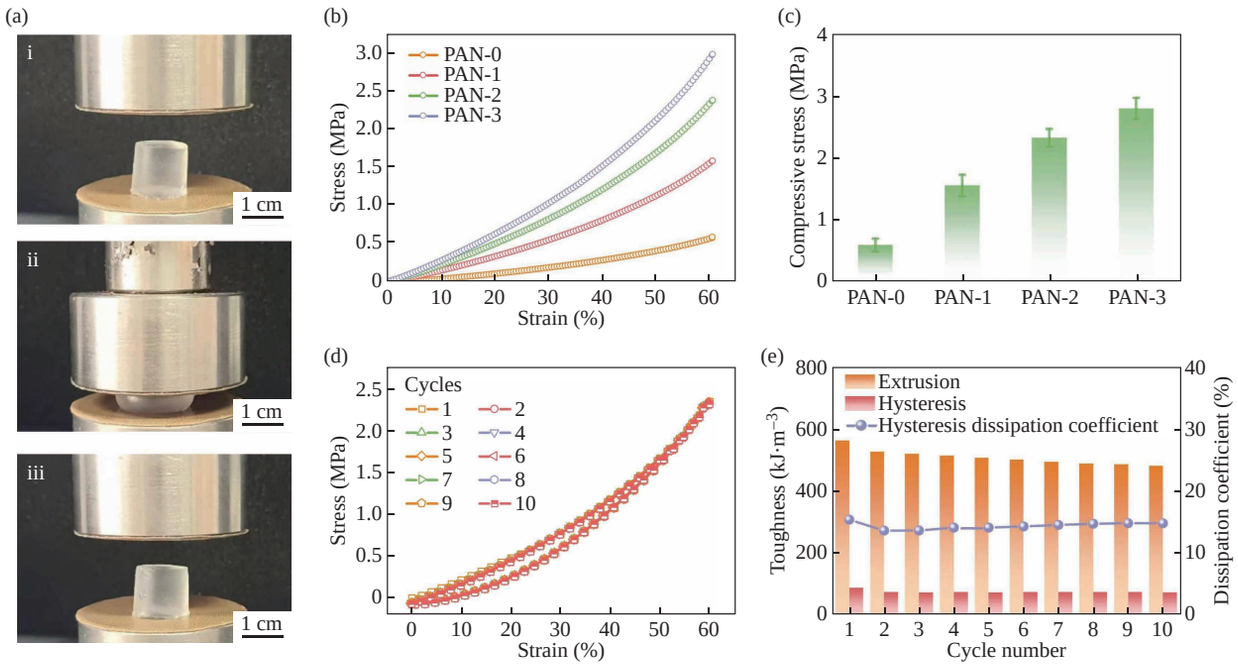


图 5　(a) PAN 水凝胶压缩状态下的光学图像；不同 NaCl 含量下 PAN 水凝胶的 (b) 压缩力学曲线，以及 (c) 对应的压缩应力；60% 压缩应变下 (d) 循环加载 10 次的力学曲线以及 (e) 对应的滞后和韧性

Figure 5　(a) Optical image of PAN hydrogel under compression; (b) Compression mechanical curves of PAN hydrogels with different NaCl contents, and corresponding (c) compressive stress; (d) Mechanical curves for cyclic loading at 60% compressive strain for 10 cycles, with (e) corresponding hysteresis and toughness

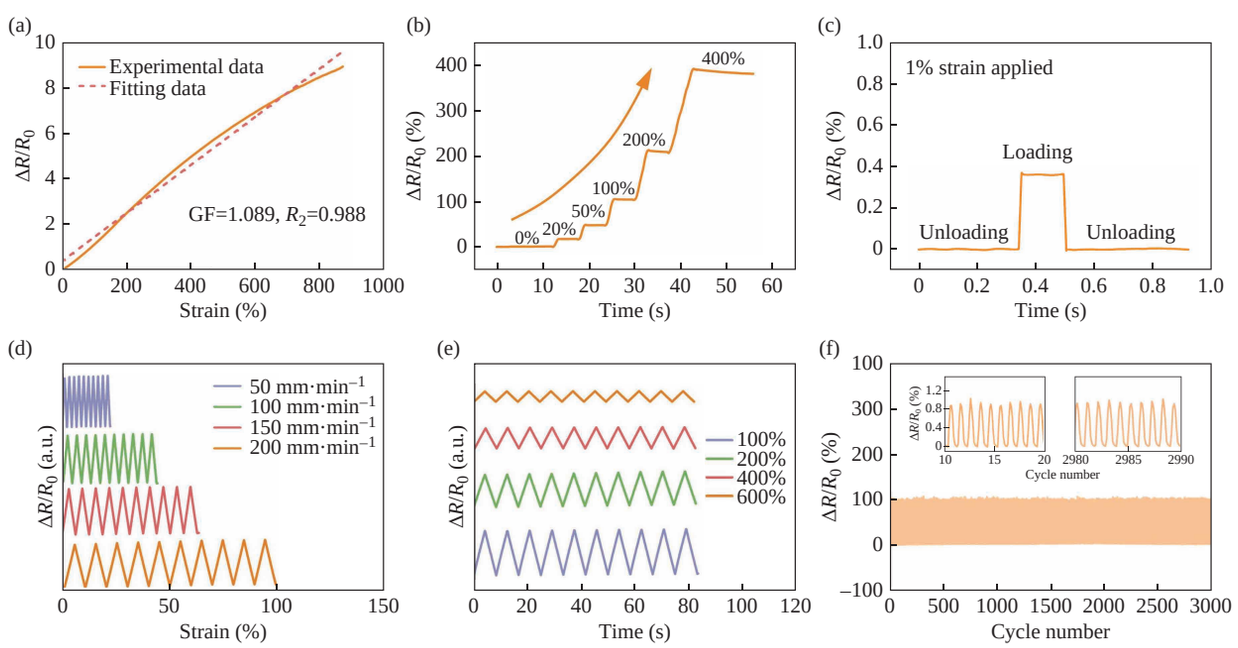


图 6　(a) PAN 水凝胶传感器拉伸应变与 $\Delta R/R_0$ 的曲线；(b) 连续应变增大的过程中 $\Delta R/R_0$ 的变化曲线；(c) 1% 应变下 PAN 水凝胶传感器的信号响应；(d) 不同拉伸速率下 PAN 水凝胶传感器的信号响应；(e) 不同拉伸应变下 PAN 水凝胶传感器的信号响应；(f) 100% 应变下 PAN 水凝胶传感器信号输出的长期稳定性

Figure 6　(a) $\Delta R/R_0$ curve of PAN hydrogel sensor under tensile strain; (b) $\Delta R/R_0$ variation curve during continuous increase in strain; (c) Signal response of PAN hydrogel sensor at 1% strain; (d) Signal response of PAN hydrogel sensor at different tensile rates; (e) Signal response of PAN hydrogel sensor at different tensile strains; (f) Long-term stability of signal output from PAN hydrogel sensor at 100% strain

成功地获取有效的电阻信号，显示出对于形变引起信号变化的精准表达，能够识别微小机械刺激下的机电信号(图6c)。此外，通过对PAN水凝胶施加不同的拉伸速率，进一步验证了其传感性能。结果表明，PAN水凝胶传感器能够在不同的拉伸速率下，保持稳定和精准的信号输出(图6d)。对PAN水凝胶传感器施加不同的循环应变(100%~600%)，信号稳定的输出进一步证明了其优异的传感功能(图6e)。

同样地，PAN水凝胶传感器在不同的应变循环拉伸下依旧显示出优异的信号稳定性。此外。传感器的耐用性和稳定性对于确保长期使用至关重要。如图6(f)所示，PAN水凝胶传感器在100%应变下超过连续3000次循环后的信号与初始信号具有相同的响应，显示出优异的耐久性和可靠性，保持良好的振幅和波形。

综上所述，PAN水凝胶表现出优异的综合性能，超越了文献[16~21]报道的性能(表2)，而展示出在可穿戴领域应用的潜在价值。

2.5　PAN水凝胶传感器的应用

柔性可穿戴设备在实际的应用中需要满足不同机械强度工况下的使用要求。由于PAN水凝胶展示出优异的力学性能、低迟滞、抗疲劳性、导电性、传感灵敏度和信号稳定性，其作为柔性可穿戴传感器在监测人体活动方面显示出巨大的潜力。构建基于水凝胶的应变传感器，并将其整合到人体的不同关节中，从而实现对人体运动的实时检测。由于应变条件的变化，水凝胶传感器的电阻变化能够准确地监测志愿者的不同运动。如图7(a)所示，当手指弯曲角度从0°逐渐增加到90°

表2　PAN水凝胶综合性能对比

Table 2　Comparison of comprehensive properties of PAN hydrogels

Material	Tensile strain (%)	Tensile strength (MPa)	Toughness (MJ·m^{-3})	Sensitivity	Ref.
PVA/AM/Gly/NaCl	1550	1.06	6.63	1.089	This work
PVA/AA/ChCl	700	1.8	4.5	2.6	[16]
ChCl/VAM/AA/CMCS	1200	1.1	0.392	1.183	[17]
AA/ChCl/LA/MA	320	310	0.029	0.6	[18]
PDMS/MWCNTS	200	3	3.1	1.55	[19]
ATAC/HEMA	1812	0.125	1.426	0.24	[20]
PVA/Gly/$CaCl_2$	800	0.65	2.25	3.422	[21]

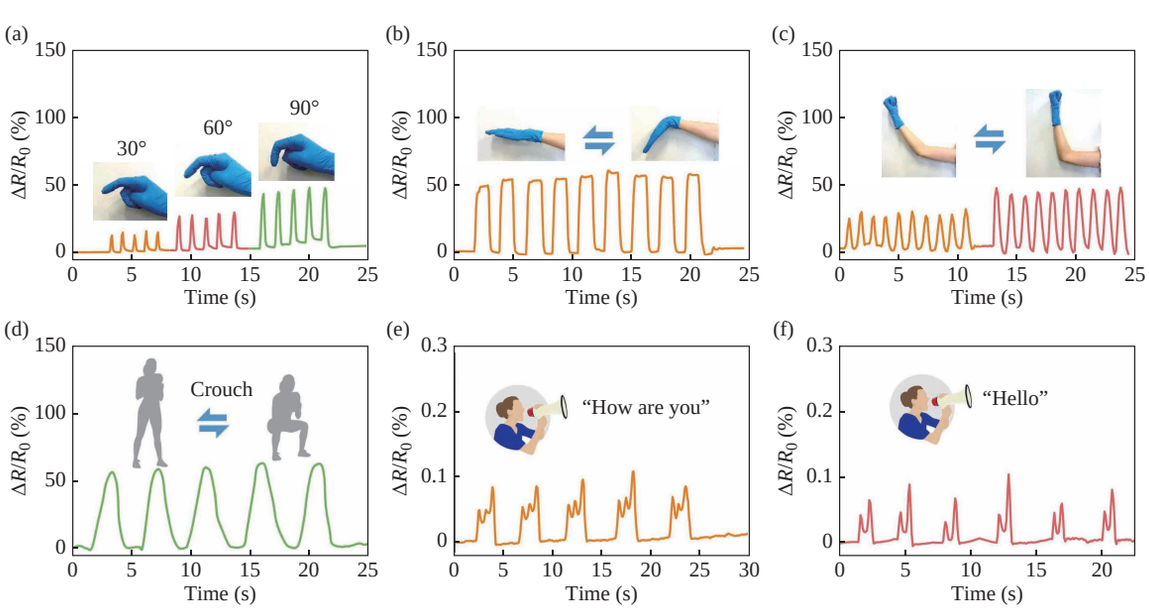


图7　(a) 手指不同弯曲程度下对应的信号响应；(b) 手腕弯曲下的信号响应；(c) 手肘弯曲下的信号响应；(d) 下蹲过程中的信号变化；(e，f) 说话状态下的信号响应

Figure 7　(a) Signal response corresponding to different degrees of finger bending; (b) Signal response from wrist bending; (c) Signal response from elbow bending; (d) Signal variation during squatting; (e, f) Signal response during speaking

时，水凝胶传感器的电阻迅速增加，这是水凝胶应变传感器的拉伸造成的。同时，在同一角度弯曲和伸直手指的过程中，阻力变化都能保持相近的数值，并表现出良好的稳定性，证实了对手指运动的瞬时和精确检测。水凝胶传感器还可用于检测腕部、肘部、膝关节的弯曲/释放等较大且重复的身体运动，从而具有关节疾病的潜在诊断价值(图7b~7d)。此外，水凝胶还可以作为压力传感器来监测人体运动。特别是水凝胶传感器在检测细微的肌肉运动同样显示出巨大的潜力。如图7(e)和7(f)所示，将PAN水凝胶传感器贴附在志愿者的喉咙上，显示的电阻信号能够清楚地识别志愿者口述“How are you”和“Hello”等语句。因此，PAN水凝胶具备了作为柔性可穿戴传感器实时监测人体运动信号的能力。

3　总结

综上所述，本文通过一锅法自由基聚合制备出既有优异力学性能、低迟滞、抗疲劳性、导电性和传感性能的双网络PAN水凝胶，并构建了高效的聚合物可穿戴传感器。制备的PAN水凝胶表现出优异的综合性能，包括拉伸性能(>1000%应变)、拉伸强度(~1.06 MPa)、韧性(6.63 $MJ·m^{-3}$)、导电性(2.25 $S·m^{-1}$)和低迟滞率(<15%)。利用PAN水凝胶优异的特性制备出一种多功能应变和压力监测系统，能够精准识别出在不同应变大小和速率下的信号。将PAN水凝胶柔性可穿戴传感器装配在人体的不同位置，实现了稳定、高效和精准的肌肉运动信号采集，展示出在柔性可穿戴领域和人机交互方面潜在的应用价值。

参考文献

1　薛贝贝，王兆元，董旭峰．聚多巴胺涂层修饰海藻酸钙/聚丙烯酰胺防粘连水凝胶的制备及性能．中国材料科学进展, **2022**, 1(3), 12.

2　姜雪冰，吴文碧，李波，邵彦翔，李响．调控光固化3D打印水凝胶力学性能策略的研究进展．生物医学工程研究, **2023**, 42(3), 292–298.

3　杨志凡，王超，杨朝飞，张权，于蓉蓉，惠小健．不同分子量下双网络水凝胶的力学性能研究．自然科学, **2022**, 10(4), 7.

4　孙广东，潘小鹏，钟宇浩，陈恩宇，黄益，邵建中．蓝光引发丙烯酸水凝胶的聚合交联动力学．高分子材料科学与工程, **2022**, (11), 2404–2411.

5　马森森，岳英楠，刘捷，邱建华，万纪强，汤克勇，张军，郑学晶．力学强度可调控的双醛微纤化纤维素/聚乙烯醇复合水凝胶的制备与性能研究．高分子通报, **2023**, 36(9), 1191–1199.

6　Li, J. Y.; Ding, Q. L.; Wang, H.; Wu, Z. X.; Gui, X. C.; Li, C. W.; Hu, N.; Tao, K.; Wu, J. Engineering smart composite hydrogels for wearable disease monitoring. *Nanomicro Lett.*, **2023**, 15(1), 105.

7　Luo, L. Q.; Wu, Z. X.; Ding, Q. L.; Wang, H.; Luo, Y. B.; Yu, J. H.; Guo, H.; Tao, K.; Zhang, S.; Huo, F. W.; Wu, J. *In situ* structural densification of hydrogel network and its interface with electrodes for high-performance multimodal artificial skin. *ACS Nano*, **2024**, 18(24), 15754–15768.

8　Wang, W.; Yao, D.; Wang, H.; Ding, Q.; Luo, Y.; Ding, H.; Yu, J.; Zhang, H.; Tao, K.; Zhang, S.; Huo, F.; Wu, J., A breathable, stretchable, and self‐calibrated multimodal electronic skin based on hydrogel microstructures for wireless wearables. *Adv. Funct. Mater.* **2024**, 2316339.

9　张甲樋，杜文浩，陈彦霏，张熙．HPMC/P(AM-co-AA)-Zr^{4+}/NaCl导电水凝胶的制备与性能．高分子材料科学与工程, **2022**, 38(8), 1–8.

10　黄驰，谢明威，刘琦，雍奇文，张兴华．高性能、多功能化的磁性水凝胶材料的研究进展．高分子通报, **2023**, 36(1), 54–68.

11　朱杰，李琪，王子萌，陈旸，高玲焕，梁子源，乔宁．PVP-semi-IPN-PCL/PLA水凝胶制备及负载卡马西平药物共晶体外释放．高分子通报, **2022**, (8), 47–53.

12　Zhang, L. M.; He, Y.; Cheng, S.; Sheng, H.; Dai, K.; Zheng, W. J.; Wang, M. X.; Chen, Z. S.; Chen, Y. M.; Suo, Z. Self-healing, adhesive, and highly stretchable ionogel as a strain sensor for extremely large deformation. *Small*, **2019**, 15(21), e1804651.

13　宁方栋，付美婷，张慧莹，张宇琦，张冉．聚合物纳米微球增韧水凝胶的制备与表征．高分子通报, **2023**, 36(1), 91–98.

14　侯萍，李铭，马军，陈冬梅，樊伟伟．天然高分子材料水凝胶的制备及其应用进展．高分子通报, **2022**, (8), 29–36.

15　姜新园，王冉冉，孙静．导电水凝胶及其在柔性电子器件中的应用．分析化学, **2023**, 51(9), 1381–1390.

16　Wang, Y.; Wang, J. K.; Ma, Z. Z.; Yan, L. F. A highly conductive, self-recoverable, and strong eutectogel of a deep eutectic solvent with polymer crystalline domain regulation. *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **2021**, 13(45), 54409–54416.

17　Lu, C. W.; Wang, C. P.; Wang, J. F.; Yong, Q.; Chu, F. X. Integration of hydrogen bonding interaction and Schiff-base chemistry toward self-healing, anti-freezing, and conductive elastomer. *Chem. Eng. J.*, **2021**, 425, 130652.

18 Wang, S. N.; Zhang, L. L.; Ma, R. T.; Yu, J.; Zhang, X. Y.; Shi, C.; Ma, L. S.; Li, T. Q.; Huang, Y. F.; Hu, Y. L.; Fan, Y. M.; Wang, Z. G. A novel one-pot strategy to construct 3D-printable cellulose nanofiber/poly(deep eutectic solvent) conductive elastomers. *Chem. Eng. J.*, **2023**, 454, 140022.

19 Yang, Y. P.; Wang, H. J.; Hou, Y. Y.; Nan, S. Q.; Di, Y. Y.; Dai, Y.; Li, F.; Zhang, J. MWCNTs/PDMS composite enabled printed flexible omnidirectional strain sensors for wearable electronics. *Compos. Sci. Technol.*, **2022**, 226, 109518.

20 Ren, H. L.; Chen, Y. Y.; Chen, X. L.; He, S. J.; Rong, Q. F. Environmentally stable, highly stretchable strain sensor based on a conductive single-network hydrogel with non-drying and adhesive properties. *Eur. Polym. J.*, **2023**, 194, 112164.

21 Lu, J.; Gu, J. F.; Hu, O. D.; Fu, Y. H.; Ye, D. Z.; Zhang, X.; Zheng, Y.; Hou, L. X.; Liu, H. Y.; Jiang, X. C. Highly tough, freezing-tolerant, healable and thermoplastic starch/poly(vinyl alcohol) organohydrogels for flexible electronic devices. *J. Mater. Chem. A*, **2021**, 9(34), 18406–18420.