

高保湿低共熔离子/电子协同导电水凝胶的制备及其传感应用研究

doi:10.20269/j.cnki.1674-7100.2026.1009

谭家欣 汤 力

汤建新

湖南工业大学

生物与医学工程学院

湖南 株洲 412007

摘要:针对传统水凝胶作为柔性应变传感器时易失水、使用场景受限、生物相容性差等问题，采用一锅光聚合法成功制备了一种高保湿性的丙烯酰胺/双三氟甲烷磺酰亚胺锂/氧化石墨烯/甲基丙烯酸甲酯水凝胶（LAGM），并应用于柔性应变传感器领域。首先将丙烯酰胺和双三氟甲烷磺酰亚胺锂以一定摩尔比制备成低共熔溶剂，然后加入氧化石墨烯水溶液搅拌均匀制成“低共熔溶剂包水”结构，进一步引入疏水单体甲基丙烯酸甲酯并在光聚合条件下成胶。研究结果揭示，该水凝胶不仅展现了卓越的力学性能（拉伸强度为2934.73 kPa，断裂伸长率为419.39%）和出色的保湿性能（达到平衡时仅失重2.4%），还具备稳定灵敏的传感特性。进一步将其组装应用于柔性应变传感器，该传感器不仅能够准确捕捉并监测人体运动状态，还能稳定运用于人体心电、肌电、眼电信号的检测。这一研究成果不仅解决了传统应变传感器的缺陷，还为未来柔性可穿戴设备的发展提供了新的解决方案。

关键词:低共熔水凝胶；保湿性；柔性应变传感器

中图分类号: TB324; TP212.9

文献标志码: A

文章编号: 1674-7100(2026)01-0076-12

引文格式: 谭家欣, 汤 力, 汤建新. 高保湿低共熔离子/电子协同导电水凝胶的制备及其传感应用研究 [J]. 包装学报, 2026, 18(1): 76-87.

1 研究背景

柔性电子技术的快速发展对新型功能材料提出了更高要求，其中，低共熔水凝胶因其优异的柔韧性、生物相容性和可调控的导电性而备受关注^[1-4]。然而，传统水凝胶在实际应用中面临着环境抗性和使用耐久性方面的严峻挑战^[5-6]。首先，水凝胶中大量自由水分子易在环境温度变化下蒸发，导致材料失水干裂，严重影响其力学性能和导电稳定性^[7-8]。其次，

传统水凝胶在高湿度环境或水溶液中易发生过度膨胀，导致结构破坏和功能失效^[9-10]。此外，传统水凝胶的力学性能难以满足长期循环使用的需求，限制了其在柔性传感领域的实际应用^[11-12]。

针对上述问题，国内外研究者已开展了大量探索性工作。例如，Yu J. 等^[10]通过引入疏水基团提高水凝胶的保水性和机械强度；Liu M. Y. 等^[13]利用纳米材料复合和离子液体掺杂增强水凝胶的环境稳定性和导电性能。然而，这些方法往往存在制备工艺复杂、

收稿日期: 2025-10-27

基金项目: 国家自然科学基金项目(51774128); 湖南省自然科学基金株洲联合基金项目(2023JJ50184, 2018JJ4009)

作者简介: 谭家欣, 女, 硕士生, 主要研究方向为低共熔导电水凝胶柔性传感器, E-mail: jiaxintan313@163.com

通信作者: 汤建新, 男, 教授, 博士, 主要从事生物医用材料、生物芯片与传感器件研究, E-mail: jxtang0733@163.com

成本高昂或环境友好性差等问题, 难以实现规模化应用^[14-15]。近年来, 低共熔溶剂 (DES) 作为一种新型绿色溶剂, 因其独特的物理化学性质和在材料制备中的优势而受到广泛关注^[16-17]。DES 由氢键供体和受体通过分子间作用力形成, 具有低挥发性、高热稳定性和良好的溶解性等特性, 为开发高性能水凝胶提供了新的途径^[18-22]。

因此, 本研究通过一锅光聚合法将氧化石墨烯 (GO) 水溶液引入由丙烯酰胺 (AM) 和双三氟甲烷磺酰亚胺锂 (LiTFSI) 共混形成的 DES 中, 并引发 AM 和甲基丙烯酸甲酯 (MMA) 共聚, 制备了一种具有“低共熔溶剂包水”型结构的水凝胶 (LAGM)。

“低共熔溶剂包水”型结构通过 DES 与水的强氢键网络实现分子级水分的固定, 与传统物理封闭或单一溶剂化方法相比, 具有更高效和可调控的保水性能, 突破了传统水凝胶材料在保水能力上的限制。一方面, 该水凝胶中 LiTFSI 的阴阳离子会形成导电通路从而使 LAGM 水凝胶具有离子导电性^[23-25]; 另一方面, 引入的 GO 水溶液使水凝胶具有电子导电性^[26-28], 故该水凝胶具有离子 / 电子双重导电性。MMA 的疏水性使水凝胶具有优异的保湿性和抗溶胀性, 进一步拓展了其在水凝胶传感器方面的应用。

2 实验部分

2.1 主要原料与仪器

原料: 丙烯酰胺、双三氟甲烷磺酰亚胺锂、甲基丙烯酸甲酯、N, N- 亚甲基双丙烯酰胺, 上述原料纯度均为 99%, 均从上海麦克林生化科技股份有限公司购买。1-羟环己基苯酮 (I-184), 纯度为 98%, 上海阿拉丁生化科技股份有限公司。氧化石墨烯, 纯度为 99%, 化学纯, 湖南金阳烯碳新材料股份有限公司。实验用水均为去离子水。

仪器: 电子天平, FA1004 型, 力辰科技制造有限公司; 电热鼓风干燥箱, 101-0BS 型, 上海力辰邦西仪器科技有限公司; 数显智能控温磁力搅拌器, SZCL-3B 型, 巩义市予华仪器有限责任公司; 电子万能试验机, AGS-X 型, 日本岛津公司; 电化学工作站, CHI660E 型, 上海辰华仪器有限公司。

2.2 水凝胶的制备

LAGM 水凝胶的制备过程遵循以下步骤。首先, 将氧化石墨烯与去离子水配制成 3 mg/mL 的氧化石墨烯水溶液, 超声 1 h 直至均匀分散, 保存备用。再

将 LiTFSI 与 AM 分别以不同摩尔比 (1:2, 1:3, 1:4, 1:5, 1:6) 进行混合并置于 20 mL 玻璃瓶中, 在 85 ℃下搅拌 0.5 h, 得到透明澄清的 DES 溶液。随后加入不同质量分数的氧化石墨烯水溶液, 继续在 85 ℃下搅拌 0.5 h, 使各组分充分溶解且均匀分布。接下来, 向溶液中加入 1 g 的 MMA、0.03 g 的交联剂 MBAA 和 0.03 g 的光引发剂 I-184, 在 65 ℃下搅拌均匀, 随后迅速将溶液倒入尺寸为 80 mm × 80 mm × 1 mm 的模具中, 在紫外光环境下反应 1 h, 形成 LAGM 水凝胶。

2.3 表征与测试

2.3.1 傅里叶红外光谱

将 LAGM 水凝胶干燥并研磨成粉末。对 LiTFSI 粉末、AM 粉末以及 LAGM 水凝胶粉末进行溴化钾压片处理, 采用傅里叶变换红外光谱仪 (FTIR) 对所制备的粉末和 MMA 单体进行表征与测试, 获得 LiTFSI、AM、MMA 和 LAGM 水凝胶的红外光谱图。

2.3.2 力学性能测试

将尺寸为 1 mm × 4 mm × 17 mm 的水凝胶样品置于万能试验机拉伸夹具上, 在室温下以 100 mm/min 的拉伸速率对样品进行拉伸试验, 测试样品力学性能, 并记录实时拉伸强度和断裂伸长率, 每组样品平行测试 3 次。拉伸强度 (σ_t) 和断裂伸长率 (ε_t) 分别由式 (1) 和式 (2) 进行计算。

$$\sigma_t = F/A_0, \quad (1)$$

$$\varepsilon_t = \Delta l/l_0, \quad (2)$$

式中: F 为载荷力, N;

A_0 为原始横截面积, m^2 ;

Δl 为拉伸长度, m;

l_0 为原始长度, m。

弹性模量通过 5%~10% 应变区域的拉伸应力 – 拉伸应变曲线斜率进行计算; 拉伸应力 – 拉伸应变曲线的积分面积为韧性。

2.3.3 自恢复与抗疲劳性能测试

使用万能试验机对水凝胶样品的自恢复性能进行测试, 将尺寸为 1 mm × 4 mm × 17 mm 的水凝胶样品置于万能试验机拉伸夹具上, 在室温下以 100 mm/min 的拉伸速率对其进行加载 – 卸载循环测试。当水凝胶试样拉伸到预设应变时, 再将其以相同的速率恢复到原始标距, 即可得到水凝胶的加载 – 卸载曲线, 耗散能 (U_{hys}) 由式 (3) 进行计算。

$$U_{\text{hys}} = \int_{\varepsilon=0}^{\varepsilon=\varepsilon_x} (\sigma_{\text{load}} - \sigma_{\text{unload}}) d\varepsilon, \quad (3)$$

式中: ε_x 为预设应变;

σ_{load} 和 σ_{unload} 分别为加载和卸载过程中的相应应力。

使用万能试验机进行水凝胶的自恢复性能测试，试样尺寸与拉伸测试保持一致。测试过程中，以 100 mm/min 的恒定速率对试样进行加载 - 卸载循环，并在相邻两次循环之间设置特定的静置时间，以考察材料的自恢复行为。通过分析拉伸应力 - 应变曲线，分别计算首次和第二次循环的耗散能及峰值应力，并以第二次循环的测定值与首次循环的比值作为自恢复效率的评价指标。该方法能够有效表征水凝胶在循环变形后的能量耗散能力和力学性能恢复程度。

使用万能试验机进行水凝胶的抗疲劳性能测试，试样尺寸与拉伸测试保持一致。测试过程中，以 100 mm/min 的恒定速率对试样进行周期性加载 - 卸载，并在各循环间设置固定间隔时间以模拟实际使用条件。通过分析连续循环过程中的拉伸应力 - 应变曲线，分别计算第 1 次和第 n 次循环的耗散能与峰值应力，并以二者的相对比值作为评价指标。该方法通过量化材料在反复变形过程中的力学性能衰减程度，可有效表征水凝胶的耐疲劳特性。

2.3.4 黏附性能测试

将水凝胶裁剪成 20 mm × 20 mm × 1 mm 的方形块状，并将其夹在两个相同的基材之间进行搭接 - 剪切试验，使用万能试验机的拉伸夹具夹住上下两块基材，以 100 mm/min 的拉伸速率进行测试，每组样品平行测试 3 次。黏附强度 (P) 由式 (4) 进行计算。

$$P = F_{\max} / S, \quad (4)$$

式中： F_{\max} 为最大拉伸力，N；

S 为试样的横截面积， m^2 。

2.3.5 保水、抗溶胀性能测试

1) 保水性能测试。将水凝胶切成质量均匀统一的小块，第一次称取的质量为初始质量，随后在空气 (15 °C、相对湿度为 50%) 中敞口放置，前 3.5 h 内每隔 0.5 h 称量一次质量，3.5 h 之后每隔 24 h 称量一次质量，每组样品平行测试 3 次。保水率 (WR) 由式 (5) 进行计算。

$$WR = \frac{m_t - m_0}{m_0} \times 100\%, \quad (5)$$

式中： m_t 为每次称量的质量，g；

m_0 为初始质量，g。

2) 抗溶胀性能测试。将水凝胶切成质量均匀统

一的小块，第一次称取的质量为初始质量，随后在去离子水中完全浸泡放置，前 3.5 h 内每隔 0.5 h 称量一次质量，3.5 h 之后每隔 24 h 称量一次质量，每组样品平行测试 3 次。通过式 (6) 计算溶胀率 (SR)。

$$SR = \frac{m_t - m_0}{m_0} \times 100\%, \quad (6)$$

2.3.6 导电性能测试

利用电化学工作站，使用交流阻抗法测定水凝胶的电阻。将待测水凝胶切成尺寸为 10 mm × 10 mm × 1 mm 的方形，测量频率范围设置为 0.1 Hz 至 1000 kHz，开路电位阻抗幅值设置为 5 mV。每组样品平行测试 3 次。通过式 (7) 计算水凝胶电导率 (σ)。

$$\sigma = l / (R \times S), \quad (7)$$

式中： l 为水凝胶的长度，m； R 为水凝胶的电阻， Ω 。

2.3.7 传感性能测试

采用标准尺寸为 1 mm × 4 mm × 17 mm 的水凝胶试样，将其固定于万能试验机的拉伸夹具上。测试在室温条件下进行，以 100 mm/min 的恒定速率施加拉伸载荷。为同步监测材料在形变过程中的电学响应，将试验机与电化学工作站联用，实时记录拉伸过程中的电阻变化。基于所获得的电阻 - 应变数据，通过式 (8) 计算得到材料的灵敏度因子 (GF)。

$$GF = (\Delta R / R_0) / \varepsilon, \quad (8)$$

式中： ΔR 为动态拉伸过程中电阻的变化量；

R_0 为水凝胶传感器处于原始长度时的电阻；

ε 为水凝胶的应变。

3 结果与讨论

3.1 LAGM 水凝胶制备原理

如图 1 所示，LAGM 水凝胶通过一锅光聚合法成功制备。在该合成过程中，丙烯酰胺和甲基丙烯酸甲酯的碳碳双键发生断裂，通过自由基共聚反应构建了三维交联网络结构。该水凝胶的导电特性源于两个机制：一方面，LiTFSI 解离产生的阴阳离子形成离子导电通路；另一方面，引入的氧化石墨烯水溶液提供了电子导电性能，从而赋予水凝胶材料离子 - 电子协同导电特性。此外，由于 MMA 疏水基团的存在，水凝胶表现出优异的保湿性能和抗溶胀性能。值得注意的是，材料中丰富的氢键网络作为一种动态可逆相互作用，在外力作用下断裂后可自发重组^[23, 28-29]，这一特性使 LAGM 水凝胶展现出良好的自恢复能力和耐久性。

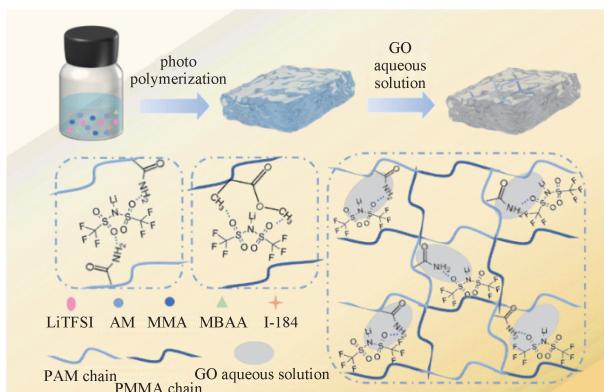


图 1 LAGM 水凝胶制备示意图

Fig. 1 Preparation of LAGM hydrogel

3.2 LAGM 水凝胶的表征

如图 2 所示, 使用傅里叶变换红外光谱仪来表征 LAGM 水凝胶、LiTFSI、AM 和 MMA 的化学结构。

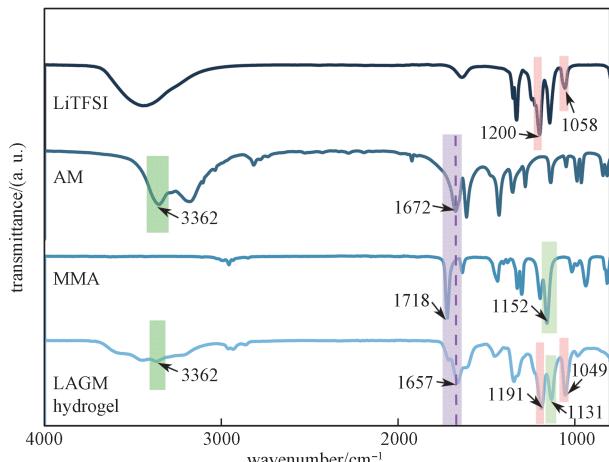


图 2 LiTFSI、AM、MMA 和 LAGM 水凝胶的傅里叶红外光谱

Fig. 2 FTIR spectra of LiTFSI, AM, MMA and LAGM hydrogel

在 LAGM 水凝胶的 FTIR 曲线中, 可以观察到属于 LiTFSI 的 C—F 键 (1200 cm^{-1}) 和 S=O 键 (1058 cm^{-1}) 伸缩振动的特征吸收峰, 表明其以导电添加物的形式存在。位于 3362 cm^{-1} 处的峰归因于 AM 中 N—H 键伸缩振动, 该峰在 LAGM 水凝胶的 FTIR 曲线上清晰可见。位于 1152 cm^{-1} 处的峰归因于 C—O 键的伸缩振动, 该峰在 MMA 和 LAGM 水凝胶谱图中清楚呈现。位于 1672 cm^{-1} 和 1718 cm^{-1} 处的特征峰分别归因于 AM 和 MMA 中 C=O 键的伸缩振动, 其在 LAGM 水凝胶 (1657 cm^{-1}) 中也可被观察到, 且峰型展宽, 表明 AM 和 MMA 产生聚合现象。以上 FTIR 结果证实了 LAGM 水凝胶的成功合成。

(cm^{-1}) 伸缩振动的特征吸收峰, 表明其以导电添加物的形式存在。位于 3362 cm^{-1} 处的峰归因于 AM 中 N—H 键伸缩振动, 该峰在 LAGM 水凝胶的 FTIR 曲线上清晰可见。位于 1152 cm^{-1} 处的峰归因于 C—O 键的伸缩振动, 该峰在 MMA 和 LAGM 水凝胶谱图中清楚呈现。位于 1672 cm^{-1} 和 1718 cm^{-1} 处的特征峰分别归因于 AM 和 MMA 中 C=O 键的伸缩振动, 其在 LAGM 水凝胶 (1657 cm^{-1}) 中也可被观察到, 且峰型展宽, 表明 AM 和 MMA 产生聚合现象。以上 FTIR 结果证实了 LAGM 水凝胶的成功合成。

3.3 LAGM 水凝胶的力学性能

为定量表征 LAGM 水凝胶的力学性能, 进行如图 3 所示的承载实验。将 200 g 标准砝码垂直悬挂于 LAGM 水凝胶试样上, 该水凝胶不仅能完全承受 200 g 的载荷作用, 且在整个测试过程中保持结构完整性, 未出现任何断裂现象。这一结果充分证实了 LAGM 水凝胶具有优异的力学强度和承载能力。



图 3 承载力实验

Fig. 3 Bearing capacity test

为了验证 LAGM 水凝胶的柔韧性, 对其进行了扭曲、打结和拉伸等测试(见图 4)。如图 4a-d 所示, 在实验过程中水凝胶展现出良好的变形能力, 即使被拉伸至原长度的数倍也未发生断裂。表明 LAGM 水凝胶兼具优异的力学性能和突出的柔韧性特征, 使其在柔性电子器件、可穿戴应变传感器等新兴领域展现出重要的应用前景。

在图 5 中进一步探讨了不同摩尔比的 DES 和 GO 水溶液含量对 LAGM 水凝胶力学性能的影响。如图 5a 所示, 随着 DES 中 LiTFSI 和 AM 的摩尔比从 1:2 增加至 1:6, 水凝胶的拉伸强度和断裂伸长率

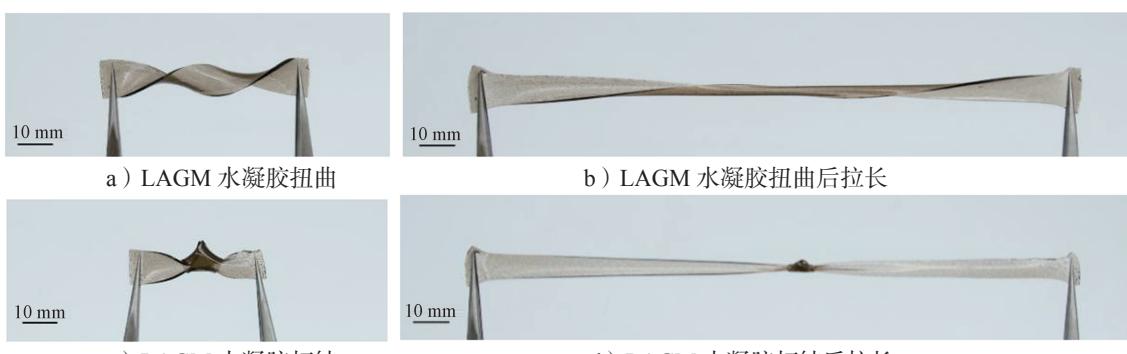
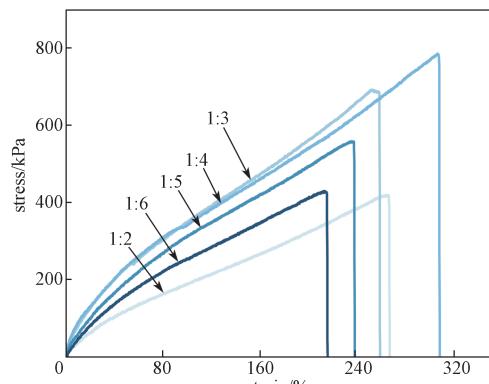


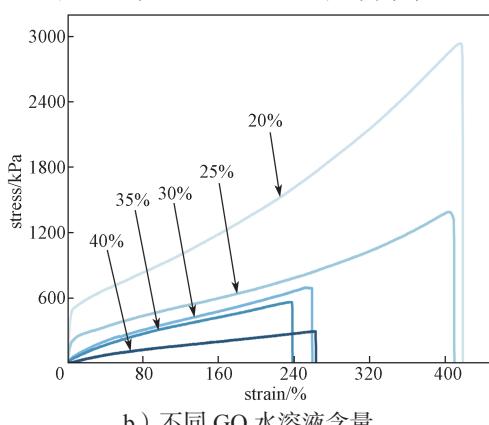
图 4 LAGM 水凝胶扭曲及打结拉伸图

Fig. 4 LAGM hydrogel twisting and knotting stretching images

均表现出先增大后减小的趋势。类似地,图5b测试了GO水溶液含量的变化对水凝胶力学性能的影响,当GO水溶液质量分数从20%增加至40%时,水凝胶的拉伸强度和断裂伸长率均呈现逐步减小的趋势,且GO水溶液质量分数为20%和25%时,LAGM水凝胶产生塑性形变。以上这两种力学行为的变化机理可归因于水凝胶交联密度的调控效应。随着各组分含量的增加,水凝胶内部交联网络密度相应提高,从而显著增强其力学强度。然而,当交联密度超过临界阈值时,过度的交联作用会导致聚合物网络结构刚性化,分子链段运动能力受限,最终引起水凝胶力学性能的衰退。在最优配比条件下($n_{\text{LiTFSI}}:n_{\text{AM}}=1:3$, GO水溶液质量分数为20%),LAGM水凝胶展现出优异的力学性能,其拉伸强度达2934.73 kPa,断裂伸长率达419.39%。



a) DES 中 LiTFSI 和 AM 的不同摩尔比



b) 不同 GO 水溶液含量

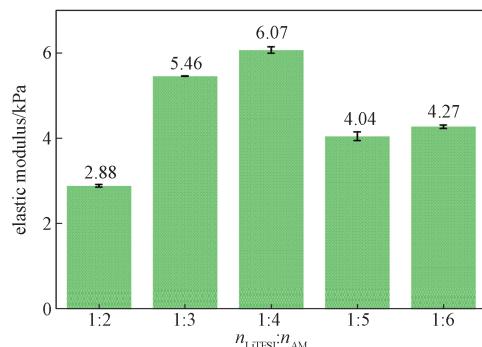
图 5 LAGM 水凝胶拉伸应力 – 拉伸应变曲线

Fig. 5 LAGM hydrogel tensile stress-strain curves

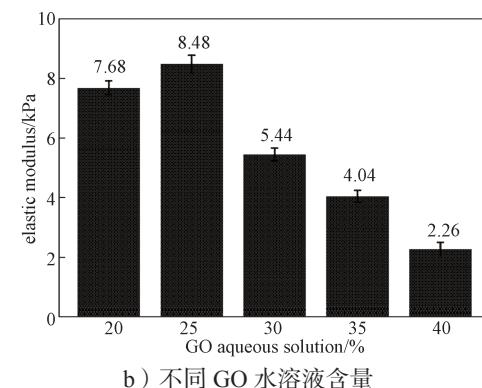
柔件应变传感器需要水凝胶具有较低的弹性模量。图6测试了不同摩尔比的DES和GO水溶液含量对水凝胶弹性模量和韧性的影响。

综合图6a~d可知,GO水溶液质量分数为20%和25%的LAGM水凝胶发生塑性形变,会导致水凝

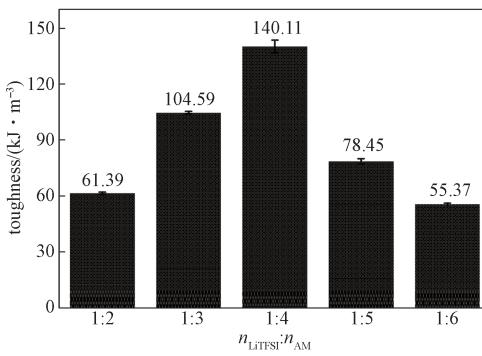
胶抗疲劳及自恢复性能较差。故选用LiTFSI和AM摩尔比为1:3的DES、GO水溶液质量分数为30%的配比条件制备LAGM水凝胶并进行下一步实验。



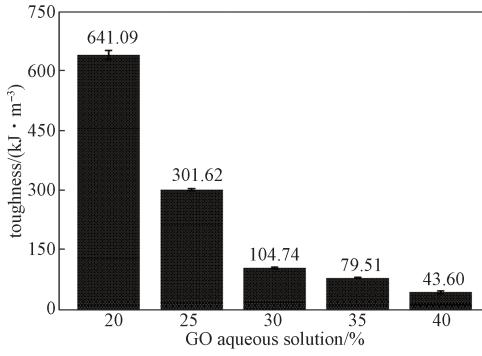
a) DES 中 LiTFSI 和 AM 的不同摩尔比



b) 不同 GO 水溶液含量



c) DES 中 LiTFSI 和 AM 的不同摩尔比



d) 不同 GO 水溶液含量

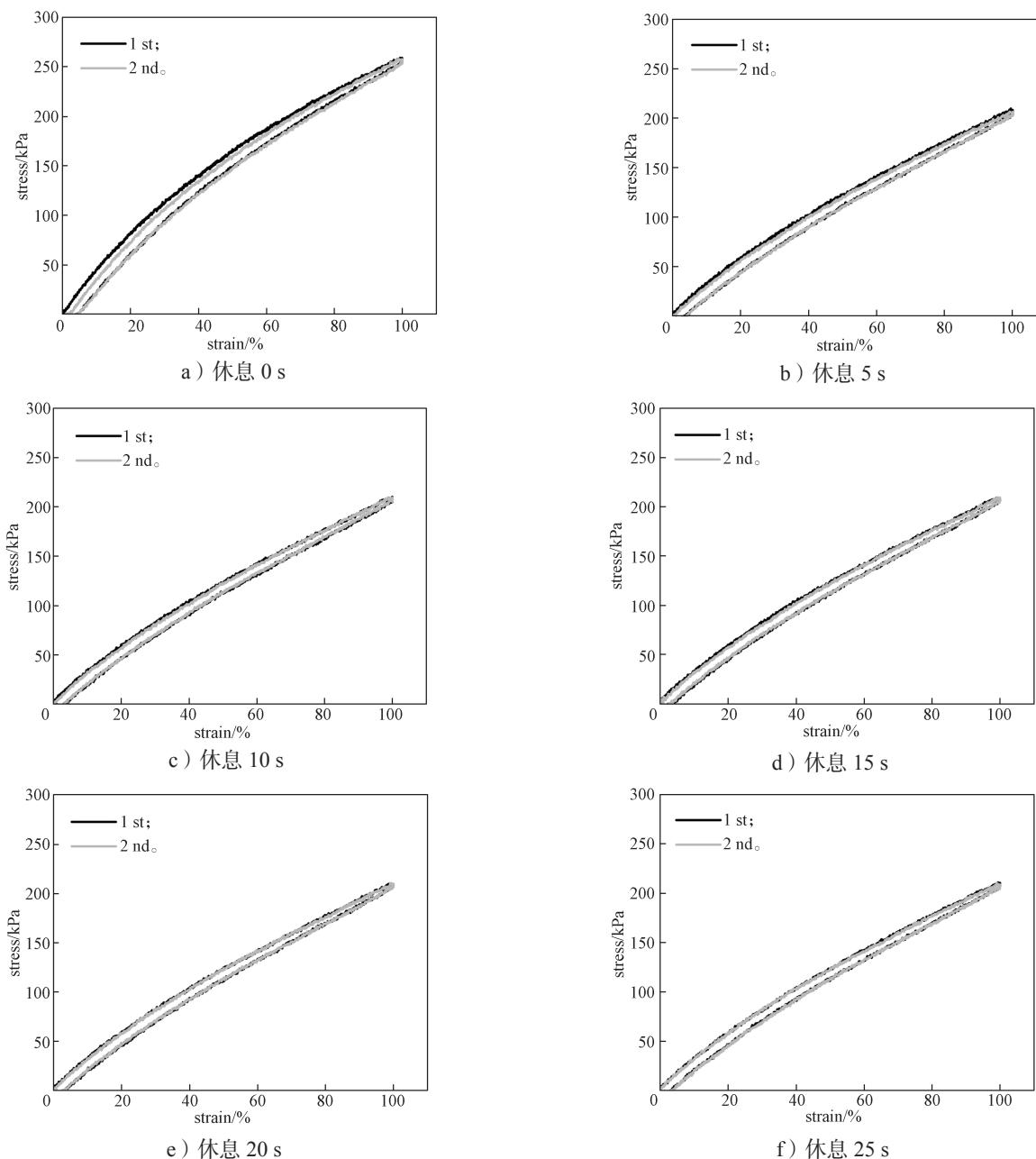
图 6 LAGM 水凝胶弹性模量和韧性
Fig. 6 LAGM hydrogel elastic modulus and toughness

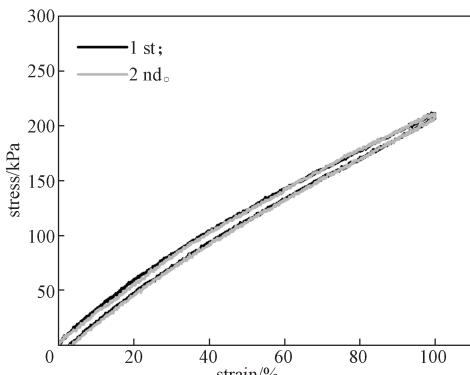
3.4 LAGM 水凝胶的自恢复性能

自恢复性能是影响柔性传感器耐用性和稳定性的重要因素。LAGM 水凝胶通过氢键的可逆交联作用实现自我修复, 这种动态物理相互作用在破坏后能够自发重建, 从而显著提升了水凝胶的长期使用性能。为评估其自恢复能力, 对 LAGM 水凝胶进行了两次加载-卸载循环测试, 并在每次测试后设置不同的休息时间(0, 5, 10, 15, 20, 25, 30 s), 实验结果如图 7a~g 所示。图 7h 记录了峰值应力和耗散能随休息时间的变化趋势。随着休息时间的增加, LAGM 水凝胶的力学性能逐渐恢复, 耗散能和峰值

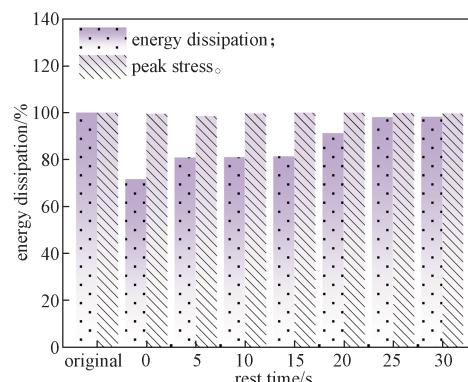
应力的恢复效率均持续提高。当休息时间延长至 30 s 时, 耗散能恢复率达到 98.24%, 峰值应力恢复率高达 99.62%, 几乎完全恢复至初始状态。优异的快速自恢复性能表明, LAGM 水凝胶具备出色的抗疲劳特性, 为其在柔性传感器领域的长期稳定应用提供了重要保障。

如图 8 所示, 为系统评价 LAGM 水凝胶的抗疲劳特性, 在固定应变(100%)下对其进行了 100 次循环加载-卸载测试。在图 8a 中, 所有循环次数下的加载-卸载曲线均呈现高度一致, 表明材料具有优异的循环稳定性。能量耗散数据进一步证实, 经过





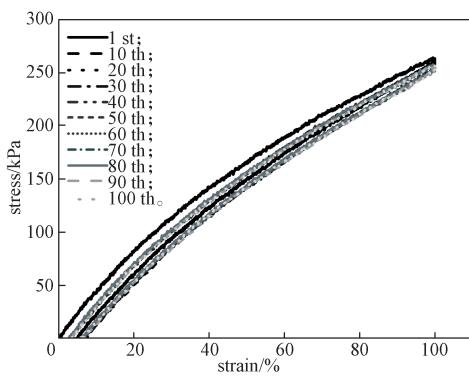
g) 休息 30 s



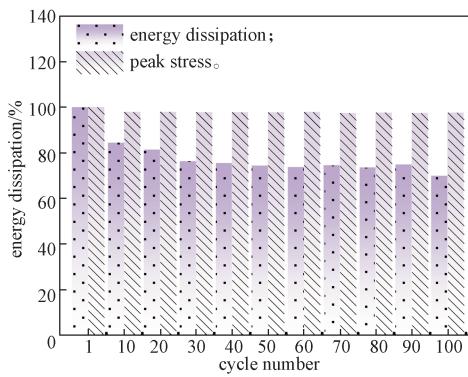
h) 能量耗散率及峰值应力

图 7 LAGM 水凝胶自恢复性能

Fig. 7 Self-recoverability of LAGM hydrogel



a) 100 次加载 - 卸载循环



b) 能量耗散率及峰值应力

图 8 LAGM 水凝胶抗疲劳性能

Fig. 8 LAGM hydrogel fatigue resistance

100 次循环后, LAGM 水凝胶仍能保持 69.91% 的形变恢复率和 97.56% 的峰值应力(图 8b)。这种显著的抗疲劳性能源于材料内部构建的均匀可逆氢键交联网络, 该动态网络结构在循环力学载荷作用下能有效维持其完整性。值得注意的是, 即使在较大应变条件下, 材料仍表现出卓越的恢复能力。基于上述特性, LAGM 水凝胶展现出作为高性能应变传感器材料的巨大潜力。

3.5 LAGM 水凝胶的黏附性能

得益于水凝胶内富含的氢键相互作用和离子配位作用, LAGM 水凝胶对多种基材展现出优异的黏附性能。如图 9 所示, 该水凝胶对玻璃、塑料、金属、陶瓷、橡胶以及猪皮等不同表面均显示出显著的黏附效果, 证明了其广泛的适用性和适应性。LAGM 水凝胶优异的黏附性能源于其丰富的羟基, 这些基团能够与不同基材表面形成多重氢键相互作用。当 LAGM 水凝胶与金属基材接触时, 界面处会形成离子 - 偶极相互作用, 显著增强黏附强度。在与生物

组织(如皮肤)接触时, 水凝胶中的羟基可与组织表面的蛋白质分子(含羟基、氨基等官能团)形成密集的氢键网络。

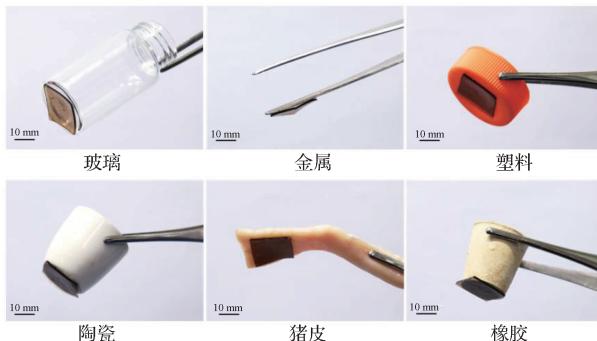


图 9 LAGM 水凝胶对不同基材的黏附示意图

Fig. 9 Schematic representation of LAGM hydrogel adhesion to different substrates

选取猪皮、塑料、钛和玻璃等代表性基材进行 LAGM 水凝胶黏附性能测试, 结果如图 10 所示。LAGM 水凝胶在猪皮、塑料、钛和玻璃上的黏附强度分别为 35.5, 1.7, 77.1, 16.0 kPa。以上结果充分证实

了LAGM水凝胶具有广谱的基材适应性和优异的界面黏附性能。值得注意的是,其对生物组织的高黏附强度(35.5 kPa)确保了水凝胶基传感器在人体活动过程中能够保持稳定附着,从而实现对生理信号的持续和准确监测。

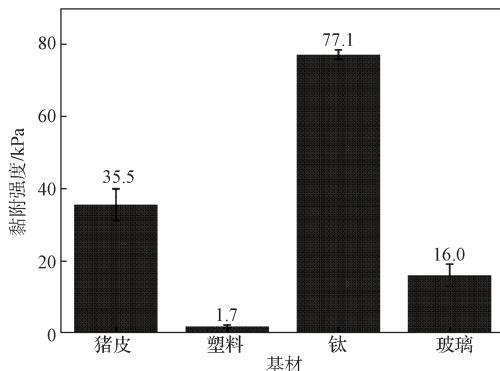


图 10 LAGM 水凝胶对不同基材的黏附强度
Fig. 10 Adhesion strength of LAGM hydrogel to different substrates

3.6 LAGM 水凝胶的保水、抗溶胀性能

具有良好保水性能的水凝胶用于柔性应变传感器时,可有效延长其使用时间,在强干旱或高湿度地区仍然可以长期使用。如图 11 所示,分别测试了在空气和去离子水中 LAGM 水凝胶的质量变化。

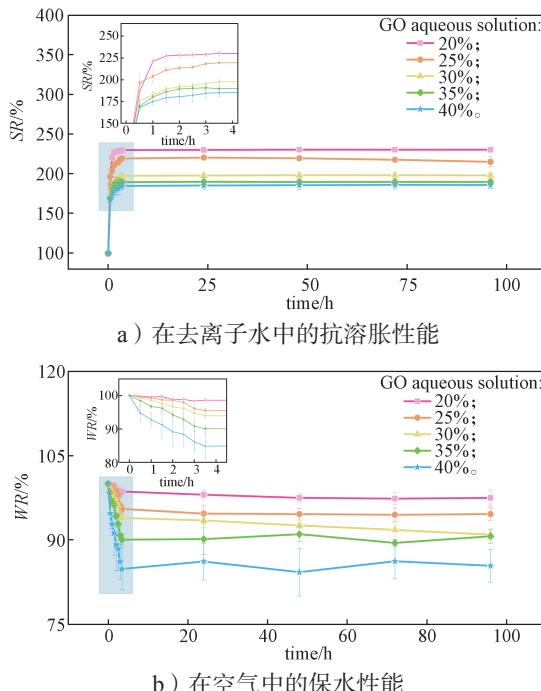


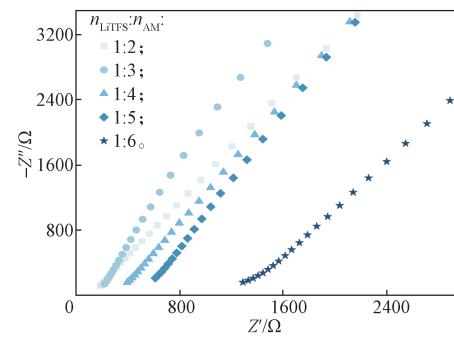
图 11 LAGM 水凝胶质量 - 时间曲线
Fig. 11 LAGM hydrogel mass-time curve

由图 11 可知,LAGM 水凝胶具有较好的抗溶

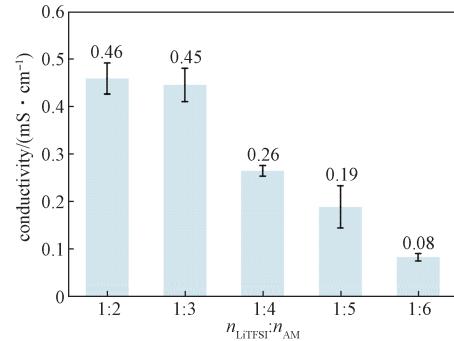
胀和保水作用,3 h 左右均可达到平衡,溶胀率不超过 150% (见图 11a),失重率不超过 15% (见图 11b)。当 GO 水溶液的质量分数为 40% 时,所制备的水凝胶在去离子水中的平衡溶胀率为 186.2%;而当 GO 水溶液的质量分数为 20% 时,该水凝胶在空气中的失重率仅为 2.4%,展现出卓越的保湿性能。

3.7 LAGM 水凝胶的导电性能

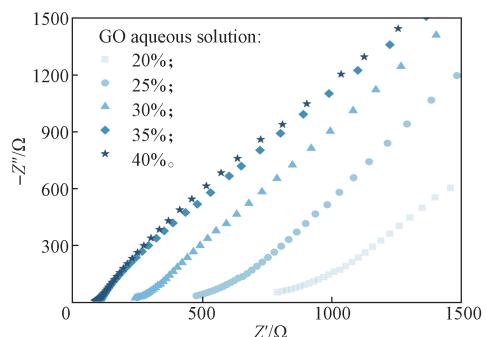
水凝胶的导电性能是其作为柔性应变传感器的基础。如图 12 所示,定量测试了 LAGM 水凝胶的离子电导率。随着 DES 中 LiTFSI 和 AM 的摩尔比从 1:2 增加到 1:6,水凝胶的离子电导率随之减小,源于 LiTFSI 过量引发的离子缔合增强,导致有效载流子浓度下降、体系黏度升高,进一步限制离子迁移率,以及氢键网络破坏阻碍离子传输通道的协同效应。当 LiTFSI 和 AM 的摩尔比为 1:2 和 1:3 时,LAGM 水凝胶具有较好的导电性(见图 12a~b)。进一步探讨了不同 GO 水溶液含量对 LAGM 水凝胶导电性能的影响。如图 12c~d 所示,当 GO 水溶液质量分数从 20% 增加至 40% 时,水凝胶的电导率随之增大,这是因为 GO 具有一定的电子导电性。在最优配比条件下($n_{\text{LiTFSI}}:n_{\text{AM}}=1:3$, GO 水溶液质量分数为 20%),LAGM 水凝胶的电导率达到 1.20 mS/cm,说明 LAGM 水凝胶具有较好的导电性。



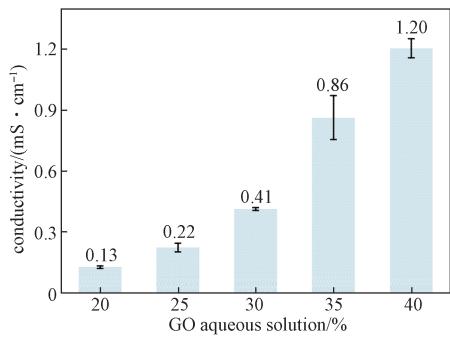
a) DES 组分不同配比条件下的电化学阻抗谱



b) DES 组分在不同配比条件下的电导率



c) 不同 GO 水溶液含量条件下的电化学阻抗谱



d) 不同 GO 水溶液含量条件下的电导率

图 12 LAGM 水凝胶电导率

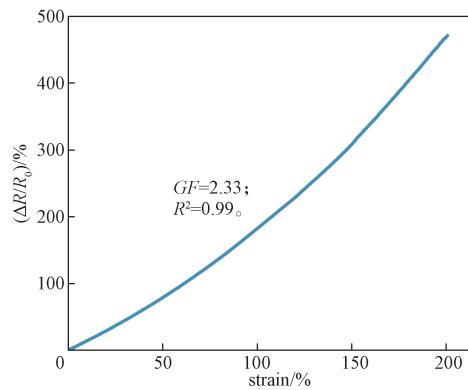
Fig. 12 The conductivity of LAGM hydrogel

3.8 LAGM 水凝胶应变传感器的传感性能

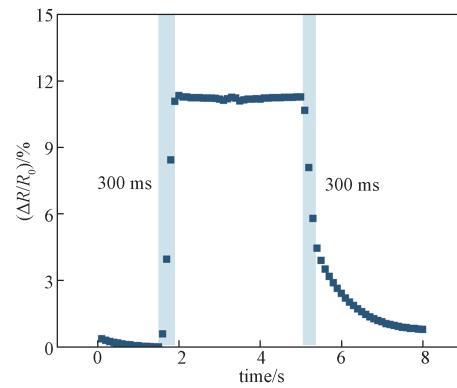
如图 13 所示, 系统表征了 LAGM 水凝胶应变传感器的传感特性。其工作机制基于水凝胶在机械变形过程中导电网络结构的动态演变: 当水凝胶发生形变时, 内部导电通路的重构导致电子传输路径改变, 从而产生显著的电阻响应。实验数据显示, 在 0%~200% 的应变范围内, 该传感器展现出良好的线性响应特性(见图 13a), 且其 GF 值达到 2.33, 表明其具有优异的应变灵敏度, 能够精确识别不同尺度的形变信号。动态性能测试结果(见图 13b)进一步显示, 该传感器的响应时间和恢复时间均低至 300 ms, 这种快速的信号转换能力使其能够实现实时连续地对形变进行监测。基于上述优异的传感性能, LAGM 水凝胶应变传感器在人体运动监测、柔性电子皮肤等应用领域展现出显著的技术优势。

LAGM 水凝胶展现出优异的应变传感性能, 其兼具良好的导电性、出色的拉伸性能、较高的灵敏度以及毫秒级的快速响应能力。这些特性协同作用, 使制备的传感器能够准确检测微小形变, 并实时输出电信号变化, 满足高精度监测需求。对 LAGM 水凝胶应变传感器展开应变传感性能测试(见图 14)。在 10%~40% 的应变范围进行循环加载测试, 结果显

示传感器的相对电阻值与施加应变值呈良好的对应关系。在整个测试过程中, 传感器表现出优异的信号稳定性, 其电阻响应具有高度可重复性。这些数据充分证实了 LAGM 水凝胶传感器具备精确检测不同幅度应变的能力, 且具有良好的工作稳定性。



a) 灵敏度



b) 瞬时响应速度

图 13 LAGM 水凝胶应变传感器灵敏度及瞬时响应速度

Fig. 13 LAGM hydrogel strain sensor sensitivity and the transient response speed

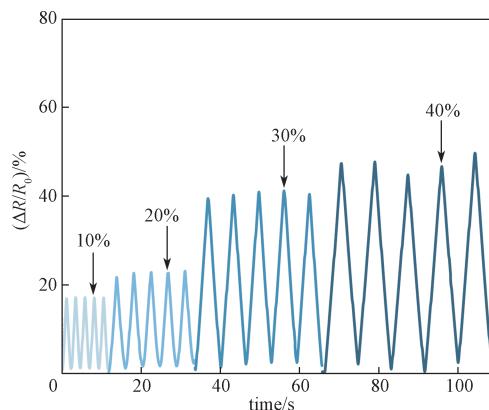


图 14 LAGM 水凝胶应变传感器在 10%~40% 应变下的传感性能

Fig. 14 Sensing performance of LAGM hydrogel strain sensors under 10% to 40% strain

在 50% 的应变下进行 200 次循环拉伸实验, 以此评估 LAGM 水凝胶应变传感器的稳定性。如图 15 所示, 在连续加载 - 卸载过程中, 传感器的电阻响应保持高度一致, 未出现明显波动。这种稳定的传感性能表明, 该传感器在实际使用条件下能够可靠地监测运动信号, 且可以长期使用。

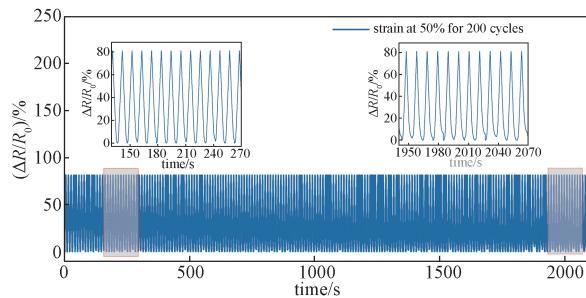


图 15 对 LAGM 水凝胶应变传感器在 50% 应变下进行 200 次加载 - 卸载循环

Fig. 15 Performing 200 loading-unloading cycles with a 50% strain on the LAGM hydrogel strain sensor

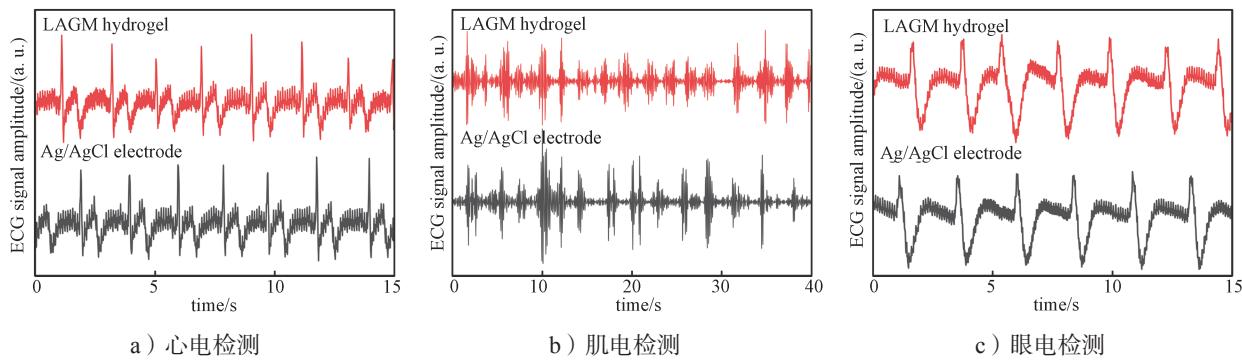


图 16 LAGM 水凝胶与商用电极检测信号对比

Fig. 16 Comparison of detection signals between LAGM hydrogel and commercial electrodes

4 结论

本研究通过将 GO 水溶液引入 AM 和 LiTFSI 共熔形成的 DES 中, 形成“低共熔溶剂包水”型结构, 再加入疏水性的 MMA 单体, 构建了一种具有离子 - 电子双重导电且具有高保水性的低共熔 LAGM 水凝胶。通过对 LAGM 水凝胶进行力学性能测试、保水性能和抗溶胀性能测试、黏附性能测试以及组装成应变传感器并进行传感性能测试, 主要结论如下:

1) 力学性能分析表明, 随着 DES 体系中 LiTFSI 与 AM 摩尔比的增加, 水凝胶的拉伸强度和断裂伸长率均呈现先增大后减小的变化趋势。同时, GO 水溶液含量的增加会致力学性能的下降。在最优配比条件下 ($n_{\text{LiTFSI}}:n_{\text{AM}}=1:3$, GO 水溶液质量分数为

3.9 LAGM 水凝胶的应用

如图 16 所示, 使用 LAGM 水凝胶代替商用电极片与人体皮肤相连, 传感器能够精准且稳定地捕捉到人体心电、肌电和眼电信号, 结果显示 LAGM 水凝胶具有与商用电极相媲美的应用价值, 可用于稳定检测心电(见图 16a)、肌电(见图 16b)和眼电信号(见图 16c), 且具有良好的灵敏度, 为运动分析、康复训练以及日常活动监测提供了一种可靠的工具。

LAGM 水凝胶应变传感器展现出的综合性能优势为其在多个前沿领域开拓了重要的应用前景。在生物医学工程领域, 该材料可用于开发新一代生理信号监测系统; 在智能假肢方向, 其优异的传感特性能够实现更精准的运动控制; 在人机交互界面方面, 为开发柔性电子皮肤提供了新的材料选择; 在日常健康监护领域, 则有望推动个性化医疗设备的创新发展。这些应用不仅突破了传统可穿戴设备的技术局限, 更为实现精准医疗和智能健康管理提供了创新性的解决方案。

20%), LAGM 水凝胶展现出优异的力学性能, 其拉伸强度达 2934.73 kPa, 断裂伸长率达 419.39%。

2) 界面黏附性能测试显示, LAGM 水凝胶对不同基材表现出选择性的黏附行为。其中对金属钛的界面结合力最为突出 (77.1 kPa), 对其他基材的黏附强度由大到小依次为猪皮组织 (35.5 kPa)、玻璃 (16.0 kPa)、塑料 (1.7 kPa)。

3) 保水与抗溶胀性能研究表明, 当 GO 水溶液质量分数为 40% 时, 水凝胶在去离子水中的平衡溶胀率为 186.2%; 当 GO 水溶液质量分数为 20% 时, 水凝胶在空气中仅失重 2.4%, 表现出优异的保湿性能。

4) 电学性能测试结果显示, 在最优配比条件下 ($n_{\text{LiTFSI}}:n_{\text{AM}}=1:3$, GO 水溶液质量分数为 20%), LAGM 水凝胶的电导率达到 1.20 mS/cm, 满足柔性

电子器件对导电材料的基本要求。

5) 传感性能评估证实,LAGM应变传感器具有优异的灵敏度($GF=2.33$)。在实际应用中表现出信号采集准确性高、响应实时性强(300 ms)、工作稳定性好三重优势,这些特性使其在可穿戴医疗监测领域具有重要的应用价值。

综上所述,通过设计“低共熔溶剂包水”型结构,制备了一种具有优异力学性能和保水性能的LAGM导电水凝胶,其组装的应变传感器具有良好的传感性能,为拓展导电水凝胶在运动传感领域中的应用及低共熔水凝胶的构建提供了新途径。

参考文献:

- [1] 陈一,李朔,李佳新,等.导电水凝胶在柔性电子器件领域的研究进展[J].包装学报,2023,15(6):91-98.
- [2] LIANG Y J, WANG K F, LI J J, et al. Low-Molecular-Weight Supramolecular-Polymer Double-Network Eutectogels for Self-Adhesive and Bidirectional Sensors[J]. Advanced Functional Materials, 2021, 31(45): 2104963.
- [3] HAN S J, WU Q R, XU Y D, et al. Multi-Functional Eutectic Hydrogel for 3D Printable Flexible Omnidirectional Strain Sensors[J]. Advanced Materials Technologies, 2023, 8(23): 2301123.
- [4] 陈柏文,孙晓钰,郭清淳,等.聚苯胺/聚(丙烯酰胺-丙烯酸)导电水凝胶基柔性应变传感器的制备[J].胶体与聚合物,2023,41(3): 118-121.
- [5] LI T, SHU H, LIU J T, et al. Advancements in Polyacrylamide Gel Electrolytes for Aqueous Zinc-Ion Batteries: High Conductivity, Anti-Freezing, and Self-Healing[J]. Journal of Energy Storage, 2025, 131: 117477.
- [6] YE Y H, WAN Z M, GUNAWARDANE P D S H, et al. Ultra-Stretchable and Environmentally Resilient Hydrogels via Sugaring-out Strategy for Soft Robotics Sensing[J]. Advanced Functional Materials, 2024, 34(26): 2315184.
- [7] MONDAL A K, XU D Z, WU S, et al. Lignin-Containing Hydrogels with Anti-Freezing, Excellent Water Retention and Super-Flexibility for Sensor and Supercapacitor Applications[J]. International Journal of Biological Macromolecules, 2022, 214: 77-90.
- [8] FENG Y Q, WANG S C, LI Y Q, et al. Entanglement in Smart Hydrogels: Fast Response Time, Anti-Freezing and Anti-Drying[J]. Advanced Functional Materials, 2023, 33(21): 2211027.
- [9] REN Z, GUO F, WEN Y, et al. Strong and Anti-Swelling Nanofibrous Hydrogel Composites Inspired by Biological Tissue for Amphibious Motion Sensors[J]. Materials Horizons, 2024, 11(22): 5600-5613.
- [10] YU J, FENG Y F, SUN D, et al. Highly Conductive and Mechanically Robust Cellulose Nanocomposite Hydrogels with Antifreezing and Antidehydration Performances for Flexible Humidity Sensors[J]. ACS Applied Materials & Interfaces, 2022, 14(8): 10886-10897.
- [11] LI Z K, WANG B, LU J J, et al. Highly Stretchable, Self-Healable, and Conductive Gelatin Methacryloyl Hydrogel for Long-Lasting Wearable Tactile Sensors[J]. Advanced Science, 2025: e02678.
- [12] NI Y M, ZANG X R, CHEN J J, et al. Flexible MXene-Based Hydrogel Enables Wearable Human-Computer Interaction for Intelligent Underwater Communication and Sensing Rescue[J]. Advanced Functional Materials, 2023, 33(49): 2301127.
- [13] LIU M Y, ZHANG L M, ROSTAMI J, et al. Tough MXene-Cellulose Nanofibril Ionotronic Dual-Network Hydrogel Films for Stable Zinc Anodes[J]. ACS Nano, 2025, 19(13): 13399-13413.
- [14] LIU Q, XIE M W, WANG C H, et al. Rapid Preparation Triggered by Visible Light for Tough Hydrogel Sensors with Low Hysteresis and High Elasticity: Mechanism, Use and Recycle-by-Design[J]. Small, 2024, 20(32): 2311647.
- [15] FEI J, SUN W, LI H, et al. Unlocking Hydrogel-Based Desalination with Ammonia Gas Dewatering[J]. Environmental Science & Technology, 2025, 59(23): 11907-11918.
- [16] ABBOTT A P, CAPPER G, DAVIES D L, et al. Novel Solvent Properties of Choline Chloride/Urea Mixtures[J]. Chemical Communications, 2003(1): 70-71.
- [17] SMITH E L, ABBOTT A P, RYDER K S. Deep Eutectic Solvents (DESs) and Their Applications[J]. Chemical Reviews, 2014, 114(21): 11060-11082.
- [18] P PAIVA A, CRAVEIRO R, AROSO I, et al. Natural Deep Eutectic Solvents: Solvents for the 21st Century[J]. ACS Sustainable Chemistry & Engineering, 2014, 2(5): 1063-1071.
- [19] LI T, LIU J T, SHU H, et al. High-Performance Deep Eutectic/Ionic Liquid Gels for Zinc-Ion Battery and Flexible Sensor Applications in Extreme Environments[J]. Advanced Functional Materials, 2025: e14358.
- [20] ZHANG H, TANG N, YU X, et al. Strong and Tough Physical Eutectogels Regulated by the Spatiotemporal

- Expression of Non-Covalent Interactions[J]. Advanced Functional Materials, 2022, 32(41): 2206305.
- [21] TANG N, JIANG Y J, WEI K L, et al. Evolutionary Reinforcement of Polymer Networks: A Stepwise-Enhanced Strategy for Ultrarobust Eutectogels[J]. Advanced Materials, 2024, 36(6): 2309576.
- [22] YUAN W T, HE Y, LIANG Q Q, et al. Ultra-Stretchable, Self-Recoverable, Notch-Insensitive, Self-Healable and Adhesive Hydrogel Enabled by Synergetic Hydrogen and Dipole–Dipole Crosslinking[J]. Materials Horizons, 2025, 12(7): 2223–2233.
- [23] LIU H M, GUAN S Q, WANG P W, et al. Super Tough Anti-Freezing and Antibacterial Hydrogel with Multi-Crosslinked Network for Flexible Strain Sensor[J]. Small, 2025, 21(8): 2407870.
- [24] GUDLA H, EDSTRÖM K, ZHANG C. Salt Effects on the Mechanical Properties of Ionic Conductive Polymer: A Molecular Dynamics Study[J]. ACS Materials Au, 2024, 4(3): 300–307.
- [25] WEI Y, CHEN W, GE X Y, et al. A Flexible, Highly Conductive, Tough Ionogel Electrolyte Containing LiTFSI Salt and Ionic Liquid [EMIM][TFSI] Based on PVDF-HFP for High-Performance Supercapacitors[J]. Polymer, 2023, 289: 126501.
- [26] OU X L, GUAN L, GUO W L, et al. Graphene Oxide-Based Injectable Conductive Hydrogel Dressing with Immunomodulatory for Chronic Infected Diabetic Wounds[J]. Materials & Design, 2022, 224: 111284.
- [27] HAN Z L, WANG P, LU Y C, et al. A Versatile Hydrogel Network–Repairing Strategy Achieved by the Covalent-Like Hydrogen Bond Interaction[J]. Science Advances, 2022, 8(8): eabl5066.
- [28] YUAN J X, ZOU X L, QIN Y, et al. Anti-Freeze, Anti-Dehydrating and Stretchable Triboelectric Materials Enabled by Covalent-Like Hydrogen Bond Interaction[J]. Nano Energy, 2024, 131: 110215.

(责任编辑: 李 涛)

Preparation of Highly Moisturising Deep Eutectic Solvent Hydrogel with Dual Ionic-Electronic Conductivity and Its Sensing Applications

TAN Jiaxin, TANG Li, TANG Jianxin

(School of Biological Science and Medical Engineering, Hunan University of Technology, Zhuzhou Hunan 412007, China)

Abstract: Aiming at the problems of easy water loss, limited application scenarios and poor biocompatibility of traditional hydrogels for flexible strain sensors, a highly humectant acrylamide/lithium bis(trifluoromethane)sulfonimide/graphene oxide/methyl methacrylate hydrogel (LAGM) by one-pot photopolymerisation has been successfully prepared and applied in the field of flexible strain sensing. Firstly, acrylamide and bis(trifluoromethane) were prepared as deep eutectic solvents with a certain molar ratio. Then, graphene oxide aqueous solution was added to form a ‘deep eutectic solvent-in-water’ structure. Further, the methyl methacrylate, a hydrophobic monomer, was introduced to form a hydrogel by photopolymerisation. The results show that the hydrogel not only exhibits excellent mechanical properties (tensile stress: 2934.73 kPa, tensile strain: 419.39%) and excellent moisture retention (only 2.42% weight loss at equilibrium), but also possesses stable and sensitive sensing properties. The assembly is further applied to flexible strain sensors, which can not only accurately capture and monitor human motion, but also be stably applied to the detection of human electrocardiographic, electromyographic, and electrooculographic signals. This research result not only solves the above defects of traditional sensors, but also provides a new solution for the future development of flexible wearable devices.

Keywords: deep eutectic solvent hydrogel; moisturising; flexible strain sensor