

原位成型水凝胶在柔性可穿戴传感器领域的应用

谌 艳, 付慧莉*

武汉工程大学材料科学与工程学院, 湖北 武汉

收稿日期: 2025年4月21日; 录用日期: 2025年5月20日; 发布日期: 2025年5月28日

摘 要

生物医学与柔性电子领域的蓬勃发展对水凝胶性能提出了更高要求, 开发高效成胶、可控成胶的水凝胶成为柔性可穿戴传感器领域的研究热点之一。原位成型水凝胶可以通过不同的触发机制直接在目标位置上形成凝胶, 从而与周围组织紧密接触, 显著提升附着力, 减少因空隙或相对位移造成的噪音干扰, 提高传感信号质量。具备优异机械弹性和可控导电性能的原位成型水凝胶, 在柔性可穿戴传感器领域有着非常广阔的应用前景。本文综述了原位成型水凝胶的主要成胶机制, 介绍了其在柔性可穿戴传感器领域的应用, 并对其未来发展方向进行了展望。

关键词

原位成型, 水凝胶, 柔性, 可穿戴, 传感器

Applications of In-Situ formed Hydrogels in Flexible Wearable Sensors

Yan Shen, Huili Fu*

School of Materials Science and Engineering, Wuhan Institute of Technology, Wuhan Hubei

Received: Apr. 21st, 2025; accepted: May 20th, 2025; published: May 28th, 2025

Abstract

The booming development of biomedicine and flexible electronics has imposed higher demands on hydrogel performance, driving the development of hydrogels with efficient and controllable gelation as a research hotspot in flexible wearable sensors. In-situ formed hydrogels enable targeted

*通讯作者。

文章引用: 谌艳, 付慧莉. 原位成型水凝胶在柔性可穿戴传感器领域的应用[J]. 材料科学, 2025, 15(5): 1123-1130.
DOI: 10.12677/ms.2025.155118

gelation through stimuli-responsive mechanisms to establish conformal contact with surrounding tissues, which significantly enhances adhesion strength of the hydrogels and effectively mitigates signal noise caused by interfacial voids or micro-displacements. Integrating superior mechanical resilience and tunable conductivity, these hydrogels hold vast application potential in the field of flexible wearable sensors. This review systematically analyzes the gelation mechanism of in situ-forming hydrogels, introduces their applications in flexible wearable sensing, and proposes future directions.

Keywords

In-Situ Formed, Hydrogel, Flexible, Wearable, Sensor

Copyright © 2025 by author(s) and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY 4.0).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

1. 引言

水凝胶是以天然或合成高分子材料为基础构建的三维亲水网络结构材料。水凝胶的多孔结构为它们提供了柔软的质地和优异的溶胀能力,使其在可植入人工器官[1]、组织工程支架[2]、生物粘合剂[3]等领域应用广泛。除此之外,研究者们仍在尝试使用不同的方法拓展水凝胶的应用范围,如利用氢键[4]、离子络合[5]、金属配体配位[6]和合成肽链[7]等手段,改善水凝胶的机械性能,从而获得高强度或高韧性的水凝胶;在水凝胶中引入无机盐[8]、导电聚合物[9]、金属纳米颗粒/纳米线[10]、液态金属(LMs)[11]、碳纳米管[12]等导电填料制备导电水凝胶,使其用作柔性电子产品中的基底或传感层等。随着生物医学与柔性电子领域的蓬勃发展,对水凝胶性能提出了更高要求,开发高效成胶、可控成胶的导电水凝胶成为当今研究者的研究热点之一。

原位成型水凝胶,是指通过不同的触发机制来实现体系从液态到凝胶的转变而直接在目标位置上形成的水凝胶[13]-[15]。原位成型水凝胶可以填充深的、不规则的和广泛的区域,确保在凝胶化后能与周围组织紧密接触,减少因空隙或位移带来的噪音干扰,提高传感信号质量。具备优异机械性能和导电性能的原位成型水凝胶,在柔性可穿戴传感器领域有着非常广阔的应用前景。

2. 原位成型水凝胶的成胶机制

目前,水凝胶基于不同触发机制的成胶方法主要有光引发、热引发、氧化还原引发、离子交联引发、pH 引发、自组装引发等[16]-[27]。其中,光引发与热引发依赖外部能量输入,氧化还原体系通过化学反应触发实现高效聚合,而离子交联、pH 响应及自组装机制则借助分子间相互作用动态调控网络结构。

2.1. 光引发

光引发通过特定波长光源(如紫外光)激发光敏剂产生活性自由基,实现单体(如丙烯酰胺类、丙烯酸酯类等)聚合和交联反应的精准触发,其交联程度由光强度和时间调控。Li 等人[16]介绍了一种利用紫外光引发在不同基材上制备丙烯酰胺/海藻酸钠双网络(DN)坚韧水凝胶涂层的新方法。该方法先采用硅烷偶联剂对基材进行表面改性,并在其表面沉积引发剂层,然后将基材浸入 DN 水凝胶前体液中,通过调节紫外光照射时间和引发剂用量,实现了基材上 DN 水凝胶涂层厚度的精确控制。Ge 等人[17]通过光聚合反应制备了一种新型的快速成胶离子凝胶。采用深共晶溶剂(DES)代替水或有机溶剂,制备出的凝胶具有

可调的机械性能,并在恶劣环境中表现出快速凝胶化的特性(成胶时间约 2 min)和高粘合性。光引发水凝胶可用于微创植入式传感器,如皮下葡萄糖监测设备等。尽管光引发能实现凝胶的快速固化,但其应用受限于三大因素:① 紫外线对人体组织存在潜在损伤风险;② 紫外光透光率限制导致深层固化困难;③ 对设备依赖度高。此外,要实现长期稳定的传感与监测,还需要解决材料在环境光照条件下的稳定性问题。因此,这种看似理想的方式在实际应用中仍面临很大挑战。

2.2. 热引发

热引发常利用温度敏感引发剂(如过硫酸钾)在升温条件下分解生成活性自由基,自由基引发单体聚合从而实现凝胶生成。此外,温敏聚合物材料在特定温度以上时,可通过低临界溶解温度(LCST)相变成胶。这类水凝胶具有可精确调控亲水-疏水平衡的分子结构,如聚(N-异丙基丙烯酰胺)(PNIPAM)溶液在 32℃ 以上时疏水作用增强而发生相分离,从溶胶转变为凝胶;具有两亲性特征的三嵌段共聚物体系如 PLGA-PEG-PLGA、PEO-PPO-PEO 等,其凝胶化机理主要依赖于温度变化引发的疏水作用、氢键及链缠结的协同作用。Zhao 等人[18]将制备好的水凝胶前驱体溶液转移到模具中 60℃ 下保存 4 h 形成预水凝胶,然后将预水凝胶在 -20℃ 下冷冻 12 h,制备了 PVA/PAA/CMC/AgNWs 水凝胶并应用于柔性应变传感器。该传感器具有高灵敏度($GF = 4.59$)、高愈合效率(94.3%)、强粘接性以及高稳定性。Zou 等人[19]以 MWCNTs、 $FeCl_3$ 、明胶、壳聚糖和 AM 为原料,在 60℃ 的烘箱中反应 7 h,通过氢键、螯合作用和静电作用等相互作用,制备了具有超强粘附力的凝胶,粘接强度达到 243.5 kPa。Lei 等人[20]通过在聚乙烯醇(PVA)和聚乙烯吡咯烷酮(PVP)组成的水凝胶骨架中引入 N-异丙基丙烯酰胺(NIPAAm)和溴化 1-乙烯基-3-丁基咪唑(VBIMBr)的共价交联网络,制备了具有互穿网络结构的应变和温度双重响应的离子导电水凝胶(PPPNV)。作为可穿戴应变传感器,PPPNV 水凝胶表现出高应变灵敏度($GF = 2.6$)、高拉伸性(-930%)、良好的拉伸强度(125 kPa)优异的抗冻性能(-37.34℃)和保水性。作为温度传感器,PPPNV 水凝胶表现出良好的热响应($TCR = -1.41\% \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$)。虽然热引发体系能构建高强度网络(储能模量 $> 10 \text{ kPa}$),但高温条件会破坏热敏性药物或活细胞,导致其在生物医学领域应用受限。热引发水凝胶适用于体温触发的贴合应用,例如运动监测贴片。但在实际应用中,需要进一步优化其响应范围,以避免环境温度波动带来的干扰。

2.3. 氧化还原引发

氧化还原引发体系通过氧化剂与还原剂的电子转移反应产生活性自由基,提供了室温快速成胶的新方法。Zhao 等人[21]通过磺化木质素包覆的二氧化硅纳米粒子(LSNs)、聚丙烯酰胺(PAM)链和三价铁离子(Fe^{3+})的协同作用,实现了稳定的导电性能。铁离子和 LSNs 上的邻苯二酚基团发生动态氧化还原作用生成自由基,促进 AM 单体在 60 秒内完成自由基聚合反应,赋予 LSN-Fe/PAM 水凝胶良好的机械强度(拉伸和压缩强度分别为 180 kPa 和 480 kPa)和弹性(滞后 $< 15\%$)。Sun 等人[22]用一种基于碱木质素(AL)大分子的自催化体系 $AL-Cu^{2+}$ 在碱性水-乙二醇(EG)二元溶剂中快速制备了导电有机水凝胶,该凝胶具有良好的环境适应性(工作温度范围 -40 至 60℃),优异的拉伸性(伸长率 $\geq 800\%$)和强大的粘附性能(粘附强度 31.4 kPa)。该引发机制效率高,固化过程可在数秒内完成,因而适用于需要快速原位固化或个性定制的应用场景。

2.4. 离子交联引发

离子交联引发通过动态键合作用补充共价网络缺陷的协同效应来实现凝胶的生成,如利用体内离子(Na^+ 、 Ca^{2+})触发凝胶化可用于伤口敷料及药物递送。从分子结构来看,这类水凝胶内部有着动态可逆键合,交联密度依赖于离子浓度。Jiang 等人[23]以离子液体(ILs)为引发剂,以 $Ti_3C_2T_x$ -MXene 为模板剂,通过静电和氢键作用,使 $Ti_3C_2T_x$ -MXene 纳米片之间发生可控凝胶化反应。在凝胶化过程中,离子液体

破坏了纳米片之间的静电排斥, 以交联剂的形式将纳米片连接起来, 形成三维多孔结构。其组装的硬币型超级电容器表现出 $121.1 \mu\text{Wh}/\text{cm}^2$ 的卓越能量密度。Suezawa 等人[24]证明了胶原蛋白溶液的快速凝胶化是由过渡金属络合作用引起的, 过渡金属离子与胶原蛋白分子中的氮原子或氧原子形成络合物, 而碱性金属离子则不形成。这种模量可控和透明的胶原蛋白凝胶的快速凝胶化技术将为药物评估和基础癌症生物学研究提供有力的技术支持。在柔性可穿戴传感器领域, 离子交联水凝胶适合作短期表皮电极, 例如心电监测(ECG)等应用场景。

2.5. pH 引发

pH 引发机制通过环境酸碱度变化触发分子内基团(如氨基/羧基)的质子化 - 去质子化反应, 动态调控氢键或静电交联网络的形成。这种无外源添加剂的特性, 使其在药物控释和伤口敷料等生物医学领域的应用中展现出独特优势。Lyu 等人[25]提出了一种通过将高浓度碱施加到聚乙烯醇/离子液体(PVA/IL)溶液中来诱导络合(即碱诱导分子聚集)从而制备水凝胶的新策略。该策略能够快速、轻松地制造具有可调直径、可控厚度和出色机械性能的管状结构水凝胶, 水凝胶的拉伸强度高达 1.1 MPa, 拉伸应变超过 600%。Yu 等人[26]展示了一种基于 pH 诱导及低强度离心辅助手段制备的多功能 MXene 凝胶。在 pH 为 10 (MXene 电负性最高)时, $\text{Ti}_3\text{C}_2\text{T}_x\text{MXene}$ 分散浓度最低至 0.5 mg/mL, 凝胶化时间最低可达 30 s。该引发机制的突出优势在于其对生理信号的动态识别能力, 特别是能够实时监测创面感染等病理状态导致的酸碱度波动。然而, pH 引发水凝胶也存在明显的局限性: 其稳定性较差, 需依赖缓冲体系维持功能完整性; 同时凝胶化反应往往呈现不可逆特性, 导致材料难以重复使用。在柔性可穿戴传感器应用中, pH 引发水凝胶适用于慢性伤口的长期监测。

2.6. 自组装引发

自组装引发机制是从分子间作用力协同的角度, 通过疏水作用、 π - π 堆积或主客体识别等非共价键的定向结合, 在无需外部能量输入的条件下实现纳米纤维或微区结构的动态自组装。从分子结构特点来看, 这类水凝胶具有高比表面积及仿生纳米纤维结构。这种仿生设计不仅赋予水凝胶可逆重塑的能力, 还为柔性传感中的信号传导路径优化提供了分子级的调控基础。Kundu 等人[27]研究了低分子量凝胶因子在 1-丙醇/水混合溶剂体系中通过自组装过程构建的分子凝胶, 并研究了其凝胶化特性及流变学行为。研究表明, 凝胶剂分子间的自组装行为促使纤维状超分子结构的形成, 这些纤维结构通过拓扑相互作用进一步构建成凝胶态材料。自组装引发水凝胶适用于生物标志物检测(如炎症因子等)传感器。

Table 1. Comparative analysis of triggering mechanisms
表 1. 引发机制对比分析

机制类型	成胶时间	优点	局限性	网络强度
光引发[17]	60 s~120 s	高时空精度	紫外光可能损伤组织	中高
热引发[28]	6 h~12 h	生物安全性高	响应温度范围窄	高
氧化还原引发[29]	10 s~30 s	快速	稳定性有限	中高
离子交联引发[30]	5 s~5 min	条件温和、生物相容性高	机械强度低	低中
pH 引发[31]	5 min~2 h	响应生理信号	稳定性差	低
自组装引发[32]	10 min~60 min	仿生结构、高生物活性	成本高	较低

上述不同引发机制的对比分析如表 1 所示。六种引发机制各有优劣, 不同引发机制的协同使用, 如

光热协同、离子/自组装复合等, 为水凝胶性能优化提供了创新思路。Wang 等人[33]通过倒模法, 将米诺环素包裹的共轭聚合物纳米颗粒、碱性成纤维细胞生长因子与甲基丙烯酰化透明质酸水凝胶前驱体混合溶液均匀填充至微针尖端, 并以 PVA 作为衬底, 通过光交联固化形成稳定的载药微针。微针能够在近红外光照射下迅速升温, 当温度达到 41℃时, 药物能够快速释放实现药物的精准递送。Wu 等人[34]制备了一种由草药肉桂醛(CA)和叶酸(FA)组成的自组装超分子水凝胶, 使得席夫碱和离子交联成为一种动态双交叉协同作用, 这种纳米级的水凝胶(C-FA-gel)具有良好的粘附性, 易于从组织上剥离, 无任何残留物。实验表明, 水凝胶敷料完全填充猪皮肤上的不规则伤口后, 12 小时内即可透皮吸收。

3. 原位成型水凝胶在柔性可穿戴传感器领域的应用

柔性可穿戴传感器研发过程中的一个关键难题是如何确保传感器与皮肤紧密且稳定地贴合, 保障信号的精准传输, 并减少因皮肤活动而产生的干扰[35][36]。尤其对于不规则部位的监测, 预先制备好的贴片或者电子器件, 尽管被制备成超薄、柔软、灵活或可拉伸的形态且加入了粘附性, 但仍难以完全贴合。皮肤与传感界面之间可能会出现空隙以及相对位移, 进而产生噪声、扭曲等干扰, 降低数据的质量和可靠性, 在很大程度上限制了柔性传感器在健康监测、运动传感、康复治疗等领域的实际应用。

原位成型水凝胶为解决上述问题提供了一种简便且有效的途径。一方面, 溶液状态的前体材料相较于传统的预制材料, 能够更轻松地扩大与目标皮肤的接触面积, 显著提升附着力, 在用户活动时维持稳定的皮肤-电子界面, 确保采集到无运动伪影的数据。另一方面, 采用原位成型方式生产的柔性传感器件能够实现个性化定制, 满足不同的特定需求。Tang 等人[37]通过近红外光的作用触发水凝胶前驱体水溶液的快速热交联反应, 在褶皱皮肤表面原位构建高度贴合的水凝胶生物电子界面(ISF-HEs)。前驱体溶液凭借其流动性, 能够渗透到皱纹、毛发等微小间隙中, 与生物组织表面实现完全且紧密的贴合。这种生物电子耦合和应力适应的传感界面能够最大程度地减少器件与褶皱皮肤之间的空隙, 避免运动伪影干扰。ISF-HEs 能够实时采集高质量的表面肌电信号, 显著提高信噪比($\text{SNR} \approx 32.04 \text{ dB}$), 减少了信号串扰, 并有效抵抗了运动伪影干扰。Huang 等人[38]通过导电聚合物引发两性离子单体的自聚合反应, 实现了导电水凝胶电极(ISF-PSPH)的原位制备。这种水凝胶是通过将前体溶液注入目标位置后自发形成的, 无需额外处理, 且在凝胶化过程中无明显热量释放, 在皮肤上形成时不会对组织造成损伤。ISF-PSPH 水凝胶具备出色的弹性、良好的粘附性能以及固有的抗菌特性, 能够与多毛皮肤表面和不规则伤口紧密贴合, 记录稳定可靠的多毛皮肤表面肌电信号($\text{SNR} \geq 32 \text{ dB}$), 并能在电刺激下加速糖尿病伤口的愈合。

4. 展望

原位成型水凝胶在柔性传感领域应用的发展方向将主要集中在其传感灵敏度、抗疲劳性与功能集成的突破上。

通过调控水凝胶组分、结构与成胶机制, 在皮肤表面原位调控水凝胶的模量和粘附力, 实现与人体不同组织(如肌肉、表皮等)的力学匹配, 减少界面信号衰减, 从而提高传感灵敏度。例如, ① 通过掺入纳米级增强相(如石墨烯、碳纳米管)或智能聚合物(如温敏/酸碱敏感型高分子材料)开发具有梯度模量特性的水凝胶材料。② 通过构筑微纳米级表面拓扑结构来改善界面结合性能, 从而降低信号在传输过程中的损耗。

通过引入动态键(如配位键、氢键、离子键等)、物理或化学自修复路径或外部触发响应, 使制备的水凝胶具备自修复能力与高稳定性, 在长期多次拉伸循环中可保持初始应力, 滞后程度低, 能够支持长期稳定的生理信号监测。例如, ① 构建含动态共价交联(如硼酸酯键或二硫键)的双网络体系。② 通过超分子组装或拓扑交联设计, 借助分子链缠结、环状单元或滑环结构提升材料的抗断裂性能与能量耗散能力。

通过在水凝胶中引入复合导电填料, 可同步检测压力、应变、温度等多维信号, 满足复杂场景的需求。例如, ① 如开发光热双重响应水凝胶, 利用多机制协同成胶, 同步实现环境监测与药物控释功能。② 采用层状复合结构设计, 以应变敏感材料为核心层, 外层整合响应型荧光探针, 构建具有多参数检测能力的集成传感器。

原位成型水凝胶以其不可替代的特性, 正推动柔性可穿戴传感器向高精度、低侵入和多场景的应用方向发展, 未来有望成为智慧医疗与可穿戴技术的核心材料平台, 并推动可穿戴医疗设备的大规模产业化应用。

基金项目

国家自然科学基金(51603157); 湖北省自然科学基金(2016CFB296); 武汉工程大学教学研究项目(X2022021)。

参考文献

- [1] Anderson, C.F., Chakraborty, R.W., Grimmer, M.E., Domalewski, C.J., Wang, F. and Cui, H. (2022) Collagen-Binding Peptide-Enabled Supramolecular Hydrogel Design for Improved Organ Adhesion and Sprayable Therapeutic Delivery. *Nano Letters*, **22**, 4182-4191. <https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.2c00967>
- [2] Abalymov, A., Pinchasik, B., Akasov, R.A., Lomova, M. and Parakhonskiy, B.V. (2023) Strategies for Anisotropic Fibrillar Hydrogels: Design, Cell Alignment, and Applications in Tissue Engineering. *Biomacromolecules*, **24**, 4532-4552. <https://doi.org/10.1021/acs.biomac.3c00503>
- [3] He, S., Guo, B., Sun, X., Shi, M., Zhang, H., Yao, F., *et al.* (2022) Bio-Inspired Instant Underwater Adhesive Hydrogel Sensors. *ACS Applied Materials & Interfaces*, **14**, 45869-45879. <https://doi.org/10.1021/acsami.2c13371>
- [4] Lv, A., Lv, X., Tian, S., Xie, T., Xu, X. and Sun, S. (2023) Tough, Self-Healing, and Antimicrobial Hydrogel Sensors Based on Hydrogen-Bonded, Cross-Linked Chitosan and MWCNTs. *ACS Applied Polymer Materials*, **5**, 6452-6462. <https://doi.org/10.1021/acsapm.3c01039>
- [5] Luo, H., Jiang, L., Guo, Y., Li, M., Hu, L., Wu, H., *et al.* (2024) Extreme Toughening of Conductive Hydrogels through Synergistic Effects of Mineralization, Salting-Out, and Ion Coordination Induced by Multivalent Anions. *Small*, **21**, Article 2409565. <https://doi.org/10.1002/sml.202409565>
- [6] Ju, H., Zhu, Q.L., Zuo, M., Liang, S., Du, M., Zheng, Q., *et al.* (2023) Toughening Hydrogels by Forming Robust Hydrazide-Transition Metal Coordination Complexes. *Chemistry—A European Journal*, **29**, e202300969. <https://doi.org/10.1002/chem.202300969>
- [7] Liu, P., Zhang, Y., Guan, Y. and Zhang, Y. (2023) Peptide-Crosslinked, Highly Entangled Hydrogels with Excellent Mechanical Properties but Ultra-Low Solid Content. *Advanced Materials*, **35**, Article 2210021. <https://doi.org/10.1002/adma.202210021>
- [8] Wang, H., Zhang, Q., Chen, S., Liu, X., Liu, J., He, W., *et al.* (2024) Highly Conductive Supramolecular Salt Gel Electrolyte for Flexible Supercapacitors. *ACS Applied Materials & Interfaces*, **41**, 56170-56180. <https://doi.org/10.1021/acsami.4c12666>
- [9] Xiang, C., Wen, C., Wang, Z., Tian, Y., Li, Y., Liao, Y., *et al.* (2025) Multifunctional Conductive Hydrogel for Sensing Underwater Applications and Wearable Electroencephalogram Recording. *ACS Applied Materials & Interfaces*, **17**, 8327-8339. <https://doi.org/10.1021/acsami.4c19660>
- [10] Seo, Y., Kim, B.S., Ballance, W.C., Aw, N., Sutton, B. and Kong, H. (2020) Transparent and Flexible Electronics Assembled with Metallic Nanowire-Layered Nondrying Glycerol. *ACS Applied Materials & Interfaces*, **12**, 13040-13050. <https://doi.org/10.1021/acsami.9b21697>
- [11] Chen, Y., Estevez, D., Zhu, Z., Wang, Y., Mai, Y. and Qin, F. (2024) Multifunctional Conductive Hydrogel Composites with Nickel Nanowires and Liquid Metal Conductive Highways. *ACS Applied Materials & Interfaces*, **16**, 29267-29281. <https://doi.org/10.1021/acsami.4c05344>
- [12] Lu, Y., Yue, Y., Ding, Q., Mei, C., Xu, X., Wu, Q., *et al.* (2021) Self-Recovery, Fatigue-Resistant, and Multifunctional Sensor Assembled by a Nanocellulose/Carbon Nanotube Nanocomplex-Mediated Hydrogel. *ACS Applied Materials & Interfaces*, **13**, 50281-50297. <https://doi.org/10.1021/acsami.1c16828>
- [13] Liu, G.W., Pickett, M.J., Kuosmanen, J.L.P., Ishida, K., Madani, W.A.M., White, G.N., *et al.* (2024) Drinkable *in Situ*-Forming Tough Hydrogels for Gastrointestinal Therapeutics. *Nature Materials*, **23**, 1292-1299.

- <https://doi.org/10.1038/s41563-024-01811-5>
- [14] Quadrado, R.F.N., Zhai, Z., Zavadinack, M., Klassen, G., Iacomini, M., Edgar, K.J., *et al.* (2024) All-Polysaccharide, Self-Healing, pH-Sensitive, *in Situ*-Forming Hydrogel of Carboxymethyl Chitosan and Aldehyde-Functionalized Hydroxyethyl Cellulose. *Carbohydrate Polymers*, **336**, Article 122105. <https://doi.org/10.1016/j.carbpol.2024.122105>
 - [15] Li, X., Lin, H., Yu, Y., Lu, Y., He, B., Liu, M., *et al.* (2024) In Situ Rapid-Formation Sprayable Hydrogels for Challenging Tissue Injury Management. *Advanced Materials*, **36**, Article 2400310. <https://doi.org/10.1002/adma.202400310>
 - [16] Li, Y., Liu, J., Zhang, Q., Hu, N., Jiang, Z., Kan, Q., *et al.* (2024) Growth of Double-Network Tough Hydrogel Coatings by Surface-Initiated Polymerization. *ACS Applied Materials & Interfaces*, **16**, 10822-10831. <https://doi.org/10.1021/acsami.4c00370>
 - [17] Ge, G., Mandal, K., Haghniaz, R., Li, M., Xiao, X., Carlson, L., *et al.* (2023) Deep Eutectic Solvents-Based Ionogels with Ultrafast Gelation and High Adhesion in Harsh Environments. *Advanced Functional Materials*, **33**, Article 2207388. <https://doi.org/10.1002/adfm.202207388>
 - [18] Zhao, W., Qu, X., Xu, Q., Lu, Y., Yuan, W., Wang, W., *et al.* (2020) Ultrastretchable, Self-Healable, and Wearable Epidermal Sensors Based on Ultralong Ag Nanowires Compositing Binary-Networked Hydrogels. *Advanced Electronic Materials*, **6**, Article 2000267. <https://doi.org/10.1002/aelm.202000267>
 - [19] Zou, X., Wang, X., Gou, M., Yue, O., Bai, Z., Zhang, H., *et al.* (2022) Ultra-Strong Adhesive, Self-Healing and Electroactive Bio-Based Hydrogels for the On-Demand Fabrication of Sandwich-Inspired Smart Electronic Sensing Floors. *Journal of Materials Chemistry A*, **10**, 14555-14567. <https://doi.org/10.1039/d2ta03782c>
 - [20] Lei, T., Wang, Y., Feng, Y., Duan, X., Zhang, Q., Wan, A., *et al.* (2025) PNIPAAm-Based Temperature Responsive Ionic Conductive Hydrogels for Flexible Strain and Temperature Sensing. *Journal of Colloid and Interface Science*, **678**, 726-741. <https://doi.org/10.1016/j.jcis.2024.09.131>
 - [21] Zhao, H., Hao, S., Fu, Q., Zhang, X., Meng, L., Xu, F., *et al.* (2022) Ultrafast Fabrication of Lignin-Encapsulated Silica Nanoparticles Reinforced Conductive Hydrogels with High Elasticity and Self-Adhesion for Strain Sensors. *Chemistry of Materials*, **34**, 5258-5272. <https://doi.org/10.1021/acs.chemmater.2c00934>
 - [22] Sun, D., Feng, Y., Sun, S., Yu, J., Jia, S., Dang, C., *et al.* (2022) Transparent, Self-Adhesive, Conductive Organohydrogels with Fast Gelation from Lignin-Based Self-Catalytic System for Extreme Environment-Resistant Triboelectric Nanogenerators. *Advanced Functional Materials*, **32**, Article 2201335. <https://doi.org/10.1002/adfm.202201335>
 - [23] Jiang, J., Zhao, W. and Zhao, L. (2024) Ultrarapid Gelation of Porous Ti₃C₂T_x MXene Monoliths Induced by Ionic Liquids. *Nano Letters*, **24**, 3196-3203. <https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.4c00093>
 - [24] Suezawa, T., Sasaki, N., Yukawa, Y., Assan, N., Uetake, Y., Onuma, K., *et al.* (2023) Ultra-Rapid and Specific Gelation of Collagen Molecules for Transparent and Tough Gels by Transition Metal Complexation. *Advanced Science*, **10**, Article 2302637. <https://doi.org/10.1002/advs.202302637>
 - [25] Lyu, Y., Ji, Z., Liu, D., Xu, X., Guo, R., Shi, X., *et al.* (2025) Spider-Silk Inspired Ultrafast Alkali-Induced Molecular Aggregation for 3D Printing Arbitrary Tubular Hydrogels. *Materials Horizons*, **12**, 520-530. <https://doi.org/10.1039/d4mh01291g>
 - [26] Yu, W., Yang, Y., Wang, Y., Hu, L., Hao, J., Xu, L., *et al.* (2024) Versatile MXene Gels Assisted by Brief and Low-Strength Centrifugation. *Nano-Micro Letters*, **16**, Article No. 94. <https://doi.org/10.1007/s40820-023-01302-3>
 - [27] Hashemnejad, S.M. and Kundu, S. (2017) Probing Gelation and Rheological Behavior of a Self-Assembled Molecular Gel. *Langmuir*, **33**, 7769-7779. <https://doi.org/10.1021/acs.langmuir.7b01531>
 - [28] Shi, X. and Wu, P. (2021) A Smart Patch with On-Demand Detachable Adhesion for Bioelectronics. *Small*, **17**, Article 2101220. <https://doi.org/10.1002/sml.202101220>
 - [29] Yang, Q., Chen, R., Li, M., Song, H., Zhao, X., Zhang, L., *et al.* (2024) High Antimicrobial Electrotherapy and Wound Monitoring Hydrogel with Bimetal Phenolic Networks for Smart Healthcare. *Advanced Functional Materials*, **35**, Article 2413080. <https://doi.org/10.1002/adfm.202413080>
 - [30] Zhang, J., Jin, K., Feng, Y., Lu, D., Chen, M., Wang, H., *et al.* (2024) Injectable Self-Healing and Anti-Dissolving Low-Molecular-Weight Hydrogels Enabled by Ionic Cross-Linking for Cell Encapsulation. *ACS Macro Letters*, **14**, 20-25. <https://doi.org/10.1021/acsmacrolett.4c00725>
 - [31] Cheng, R., Xu, M., Zhang, X., Jiang, J., Zhang, Q. and Zhao, Y. (2023) Hydrogen Bonding Enables Polymer Hydrogels with Ph-Induced Reversible Dynamic Responsive Behaviors. *Angewandte Chemie International Edition*, **62**, e202302900. <https://doi.org/10.1002/anie.202302900>
 - [32] Hu, J., Shan, F., Tian, Y., Wei, J., Chen, Z., Liu, W., *et al.* (2025) Deep Eutectic Solvent-Mediated Sunlight Polymerization for Rapid Fabrication of Degradable Hydrogel-Based Wearable Sensors. *Chemical Engineering Journal*, **504**, Article 158837. <https://doi.org/10.1016/j.cej.2024.158837>
 - [33] Wang, Z., Li, B., Nie, C., Zhang, R., Qu, S., Shao, Q., *et al.* (2025) Photothermal Conjugated Polymer Microneedle with

-
- Biofilm Elimination and Angiogenesis for Diabetic Wound Healing. *Nano Letters*, **25**, 2911-2921. <https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.4c06284>
- [34] Wu, Y., Yang, Z., Li, X., Li, T., Zheng, J., Hu, M., *et al.* (2023) A Self-Assembled Hydrogel Dressing as Multi-Target Therapeutics to Promote Wound Healing. *Chemical Engineering Journal*, **477**, Article 147145. <https://doi.org/10.1016/j.cej.2023.147145>
- [35] Park, B., Shin, J.H., Ok, J., Park, S., Jung, W., Jeong, C., *et al.* (2022) Cuticular Pad-Inspired Selective Frequency Damper for Nearly Dynamic Noise-Free Bioelectronics. *Science*, **376**, 624-629. <https://doi.org/10.1126/science.abj9912>
- [36] Song, D., Li, X., Jang, M., Lee, Y., Zhai, Y., Hu, W., *et al.* (2023) An Ultra-Thin MXene Film for Multimodal Sensing of Neuroelectrical Signals with Artifacts Removal. *Advanced Materials*, **35**, Article 2304956. <https://doi.org/10.1002/adma.202304956>
- [37] Tang, H., Li, Y., Chen, B., Chen, X., Han, Y., Guo, M., *et al.* (2022) *In Situ* Forming Epidermal Bioelectronics for Daily Monitoring and Comprehensive Exercise. *ACS Nano*, **16**, 17931-17947. <https://doi.org/10.1021/acs.nano.2c03414>
- [38] Huang, X., Chen, C., Ma, X., Zhu, T., Ma, W., Jin, Q., *et al.* (2023) *In Situ* Forming Dual-Conductive Hydrogels Enable Conformal, Self-Adhesive and Antibacterial Epidermal Electrodes. *Advanced Functional Materials*, **33**, Article 2302846. <https://doi.org/10.1002/adfm.202302846>