http://pmse.scu.edu.cn

基于动态缠结网络的应变温度传感器的制备及性能

杜文浩[1], 李帅成[1], 赵志新[2], 张 熙[3]

(1. 中北大学 化学与化工学院, 山西 太原 030051; 2. 西华大学 材料科学与工程学院, 四川 成都 610039;
3. 四川大学 高分子研究所, 四川 成都 610065)

摘要:针对柔性传感器领域对兼具优异力学性能与多模态传感功能材料的迫切需求,文中合成了一种基于羧甲基纤维素钠大分子交联剂的温敏型导电水凝胶,系统优化了合成工艺,解析了结构-性能关系,并验证了其在人体运动监测与健康管理中的双模态传感潜力。通过一步接枝反应,制得了可以将化学交联网络和动态缠结网络同时整合到水凝胶的新型交联剂。水凝胶兼具出色的力学性能和电导率,在 25%~300%应变范围内响应时间短于 1 s,100 次循环后 $\Delta R/R_0$ 波动低于 5%,可实时监测关节弯曲动作。同时,该水凝胶的低临界共溶温度与人体体温吻合,可实现发热异常可视化预警。

关键词:导电水凝胶;柔性传感器;温敏性;动态缠结网络;大分子交联剂
中图分类号:TQ427.2$^+$6 **文献标识码**:A **文章编号**:1000-7555(2026)03-0071-10

在人工智能、人体运动监测及疾病诊断等领域,导电水凝胶凭借优异的导电性能、柔韧性及生物相容性成为柔性传感器的理想之选,其可以通过电子或离子传导将压力、温度和应变转换为电信号,以监测人体健康[1~3]。然而,开发兼具优异力学性能与高灵敏度的温度、运动监测柔性传感器仍面临挑战。具有离子传导作用的水凝胶通常由于离子导电路径对外部刺激不敏感导致灵敏度较低;由化学交联法制成的柔性传感器通常缺乏有效的能量耗散机制,力学性能不佳,这些缺点严重限制了柔性传感器的应用效果及使用寿命[4]。此外,现有的大多数关于离子导电水凝胶的研究着眼于应变传感,相比之下,其他关键生理信号,特别是可用于评估发烧、炎症和伤口感染的体温信号传感相关的研究较少。因此,有必要开发具有温度和运动监测功能的高性能柔性传感器,以稳定而精确地监测人体生理健康。

目前,主要是通过在水凝胶中引入电子导电填料(金属纳米颗粒[5]、碳基材料[6]和本征导电聚合物[7]等)或离子导电材料(可溶剂化的无机盐[8]、离子液体[9]等)来赋予水凝胶高导电性。相比于电子导电水凝胶,离子导电水凝胶依赖于导电离子的迁移,与生物组织的离子传导高度相似,有望赋予水凝胶灵敏而稳定的导电性能[10],是可穿戴传感器的理想选择。

传统的合成水凝胶由于网络结构不均匀、缺乏能量耗散机制等原因,力学性能较差。目前,改善水凝胶力学性能的方法有复合水凝胶、双网络水凝胶、类四面体型聚乙二醇大分子单体水凝胶和拓扑水凝胶等。但针对不同结构与功能的水凝胶尚无通用方法,需要发展具有优良力学性能的新型水凝胶功能材料。

本文拟通过一步接枝反应,在羧甲基纤维素钠表面引入大量可反应的双键基团以获得羧甲基纤维素钠基大分子交联剂,并与功能聚合单体(N-异丙基

doi: 10.16865/j.cnki.1000-7555.2025.0145
收稿日期: 2025-06-13
基金项目: 国家自然科学基金青年基金资助项目(52303162); 山西省基础研究计划资助项目(202203021222046)
通讯联系人: 杜文浩, 主要从事功能性高分子材料研究, E-mail: Wenhao_Du@outlook.com;
张熙, 主要从事水溶性及功能性高分子材料研究, E-mail: zhangxi6352@163.com

丙烯酰胺和 2-丙烯酰胺基-2-甲基丙磺酸)共聚,在水凝胶中构建化学交联-物理缠结网络结构。其中,N-异丙基丙烯酰胺组分的存在可以赋予水凝胶温敏特性,从而有效地实现人体温度监测;利用大分子交联剂在聚合过程中形成的“悬链”构建动态缠结网络,在赋予水凝胶有效能量耗散能力的同时,可实现导电离子在物理缠结网络中的富集,在水凝胶中构建连续导电路径;离子富集的物理缠结网络的瞬时解缠结可以实现材料阻抗的迅速变化,赋予该水凝胶较高的灵敏度;受力结束后,“悬链”重新缠结可以为水凝胶提供出色的自恢复能力,赋予水凝胶较好的电化学稳定性。

1 实验部分

1.1 试剂与仪器

N-异丙基丙烯酰胺(NIPAAm,含量 98.0%)、2-丙烯酰胺基-2-甲基丙磺酸(AMPS,含量 98.0%)、聚乙烯醇-1799(分析纯)、N, N, N′, N′-四甲基乙二胺(分析纯)、过硫酸铵(分析纯)、亚硫酸氢钠(分析纯)、烯丙基缩水甘油醚(AGE,含量 99.0%)、羧甲基纤维素钠(CMC-Na,含量 99.0%,黏度 300~800 mPa·s):上海泰坦科技股份有限公司;去离子水:自制。

真空冷冻干燥机:LGJ-10N/A 型,北京亚星仪科科技发展有限公司;核磁共振波谱仪:Bruker AV II-600 型,布鲁克公司;扫描电子显微镜:Regulus 8230 型,日本日立高新技术科技有限公司;紫外-可见分光光度计:U-2910 型,日本日立高新技术科技有限公司;万能拉伸试验机:5965 型,英斯特朗公司;数字源表:Keithley 2450 型,美国吉时利仪器公司;电化学工作站:CHI600F 型,上海辰华仪器有限公司。

1.2 实验过程

1.2.1 *羧甲基纤维素钠基大分子交联剂的制备*:将 100 mL 去离子水加入到 250 mL 的三口圆底烧瓶中,使用移液枪向三口烧瓶中加入 N, N, N′, N′-四甲基乙二胺,并在每次加入 N, N, N′, N′-四甲基乙二胺后检测瓶中体系的 pH 值,直至体系 pH 达到 12 左右。随后,称取 1 g 羧甲基纤维素钠固体,加入三口烧瓶中,在 75 ℃以 200 r/min 的转速搅拌 2 h。待羧甲基纤维素钠充分溶解后,分别称取计量好的烯丙基缩水甘油醚加入到烧瓶中,在氮气氛围中保持 75 ℃,以 200 r/min 的转速搅拌反应 30 h,得到羧甲基纤维素钠基大分子交联剂(命名为 CMC-AGE)。制得的大分子交联剂以水溶液形式存在,在使用前需经过过滤以去除未反应的固体残渣。制得的不同组成的大分子交联剂以 $CMC\text{-}AGE_{1\text{-}X}$ 命名,X 是 CMC-Na 的重复单元与 AGE 摩尔比,如 $CMC\text{-}AGE_{1\text{-}15}$ 表示投料过程中 CMC-Na 与 AGE 的摩尔比为 1∶15。本文所使用的交联剂 CMC-AGE 的合成配方如 Tab. 1 所示。

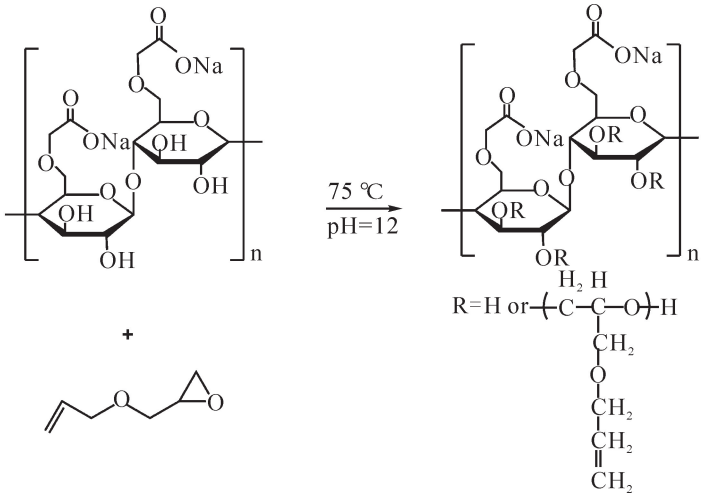


Fig. 1 Synthesis of the macro-crosslinker

Tab. 1　Experimental ingredients of crosslinkers

Sample	m(CMC-Na)/g	m(AGE)/g	V(DI water)/mL
$CMC\text{-}AGE_{1\text{-}15}$	1	7.07	100
$CMC\text{-}AGE_{1\text{-}20}$	1	9.43	100
$CMC\text{-}AGE_{1\text{-}25}$	1	11.79	100
$CMC\text{-}AGE_{1\text{-}30}$	1	14.14	100
$CMC\text{-}AGE_{1\text{-}35}$	1	16.50	100

1.2.2　温敏导电水凝胶的制备:在三口烧瓶中加入 100 mL 去离子水和 10 g 聚乙烯醇,在 95 ℃搅拌 3 h 得到均匀的聚乙烯醇溶液。待聚乙烯醇溶液降至室温后,向其中加入 1.7 g NIPAAm,0.78 g AMPS 及计量好的交联剂,以 200 r/min 的转速搅拌至溶解。然后,分别加入 0.03 g 过硫酸铵和 0.03 g 亚硫酸氢氨作为引发剂,10 μL N, N, N′, N′-四甲基乙二胺作为促进剂,以 200 r/min 的转速搅拌 5 min。将反应溶液迅速倒入模具中,将模具放入 40 ℃的恒温水培箱反应 6 h,最后,将模具放入冰箱中连续冻融 3 次,即可完成水凝胶的制备。其中,水凝胶的反应模具为实验室自制模具,裁剪一块合适大小的“凹”字型硅胶条,夹在 2 块有机玻璃板中间,通过多个燕尾夹在模具周围进行固定以确保模具的密封性。通过模具未封边的缝隙向模具中注入反应溶液,贴上封口膜以阻止反应过程中水分的大量挥发。

1.3　测试与表征

1.3.1　羧甲基纤维素钠基大分子交联剂的结构表征:采用核磁共振波谱仪考察羧甲基纤维素钠接枝反应前后的结构变化。称取 5 mg 羧甲基纤维素钠或羧甲基纤维素钠基大分子交联剂纯化样品置于离心管,用 700 μL 重水溶解,采用超声仪提升样品均一性,使用移液枪将均相溶液移入特制核磁管,使用核磁共振波谱仪进行氢谱采集。

1.3.2　水凝胶的微观形貌表征:将水凝胶浸泡于超纯水中至溶胀平衡,用液氮立即对水凝胶进行脆断以锁定水凝胶网络构象;然后将断口样品置于真空冷冻干燥机中 24 h 脱水,采用场发射扫描电镜在 5 kV 加速电压下对样品的多级结构进行高分辨成像分析。

1.3.3　水凝胶的力学性能测试:在万能试验机上使用 100 N 的传感器,以 50 mm/min 的加载速率测试水凝胶的力学性能。使用标距为 20 mm,宽度为 4 mm,厚度为 1 mm 的哑铃形样品进行拉伸试验。通过在不同的最大拉伸应变(从 50% 到 300%)下进行循环拉伸测试研究水凝胶的能量耗散能力。耗散能量(U_{hys})由加载-卸载曲线之间的面积计算得出。通过在 200% 的最大拉伸应变下进行循环拉伸试验研究水凝胶的抗疲劳性能。在 200% 的最大拉伸应变下,通过循环拉伸测试研究水凝胶静置不同时间(0 min,5 min,10 min,20 min 和 60 min)后的自恢复能力。

1.3.4　水凝胶的电化学性能测试:基于电化学阻抗谱技术(EIS)对水凝胶的离子传输特性进行系统表征。采用配备电化学阻抗谱(EIS)的工作站进行测试。在 0.01~10^5 Hz 频率范围内,测试温度为 25 ℃。将水凝胶切割为 10 mm×10 mm×2 mm 的立方体结构,采用铜箔(厚度 0.1 mm)构建三明治结构夹层电极系统。根据式(1)计算电导率(σ)

$$\sigma=\frac{L}{RS}=\frac{L}{Z'S} \tag{1}$$

式中:L——两电极间的距离,m;S——水凝胶的横截面积,m^2;R——水凝胶的电阻,Ω;Z'——测试样品的阻抗。

1.3.5　水凝胶的传感性能测试:采用数字源表记录矩形水凝胶样品(40 mm ×10 mm ×2 mm)的电信号变化。为了监测人体动作,将水凝胶传感器直接贴附在身体的不同部位(手指、手腕、手肘和膝盖)。相对电阻($\Delta R/R_0$)通过式(2)计算,灵敏度(GF)通过式(3)计算

$$\Delta R/R_0=\frac{R-R_0}{R_0} \tag{2}$$

$$\mathrm{GF}=\frac{R-R_0}{\varepsilon R_0} \tag{3}$$

式中：R_0——初始电阻，Ω；R——实时电阻，Ω；ε——测试中施加的应变。

1.3.6 水凝胶的温敏性能测试：使用紫外可见分光光度计，在目标温度区间（34～39 ℃）内测量水凝胶样品在 520 nm 波长处的透光率。测量前，将水凝胶样品裁剪长 3 cm、宽 1 cm 的样条，并装入比色皿。

2 结果与讨论

2.1 羧甲基纤维素钠基大分子交联剂的结构分析

在碱性条件下，利用羧甲基纤维素钠的羟基与烯丙基缩水甘油醚的环氧基的开环反应制得了羧甲基纤维素钠基大分子交联剂，利用核磁共振氢谱对接枝反应前后的羧甲基纤维素钠进行表征，结果如 Fig.2 所示。CMC-AGE 的 ^{1}H-NMR 波谱中出现了明显的位于 δ5.2 和 δ5.9 的烯丙基质子峰，表明烯丙基缩水甘油醚成功接枝到了羧甲基纤维素钠表面。利用核磁共振氢谱考察了不同反应阶段的 CMC-AGE 的结构，结果表明，随着反应的进行，烯丙基质子峰逐渐增强，直到 24 h，产物的核磁共振氢谱不再发生明显变化，这表明需要至少 24 h 接枝反应才能完成。

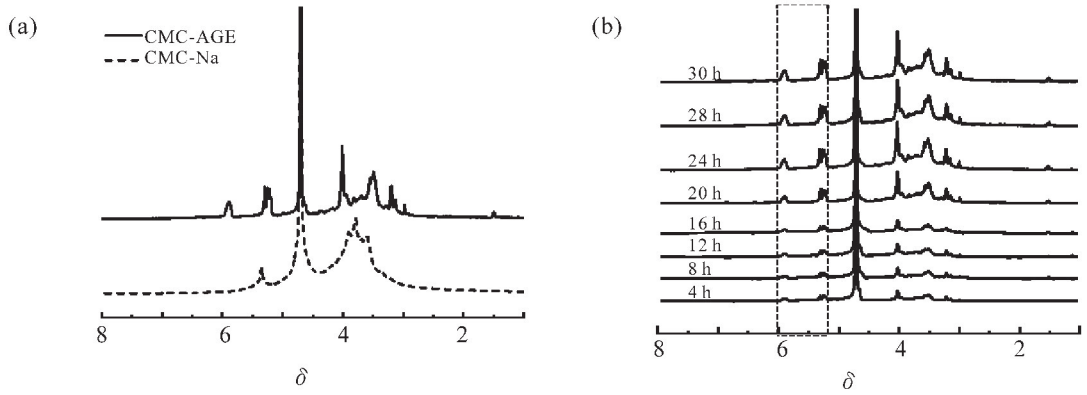


Fig. 2 (a) ^{1}H-NMR spectra of CMC-Na and CMC-AGE; (b) ^{1}H-NMR spectra of CMC-AGE during different reaction stages

2.2 水凝胶的结构与性能分析

2.2.1 水凝胶的微观形貌：将水凝胶浸泡于去离子水中，达到溶胀平衡后，利用扫描电子显微镜对水凝胶的微观形貌进行观测，结果如 Fig.3 所示。利用羧甲基纤维素钠基大分子交联剂制备的水凝胶具有较为宽松且均匀的网络结构，这一特质有望赋予水凝胶出色的力学性能。

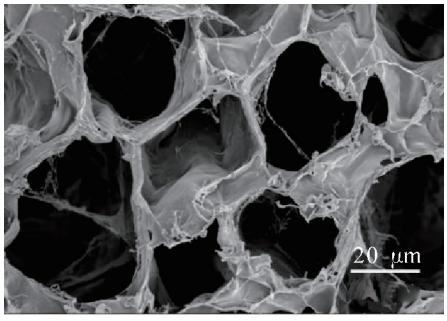


Fig. 3 SEM image of the hydrogel

2.2.2 水凝胶的力学性能：羧甲基纤维素钠基大分子交联剂表面的乙烯基官能团数量取决于分子链上烯丙基缩水甘油醚的接枝率，可以通过改变羧甲基纤维素钠和烯丙基缩水甘油醚的投料比，制备具有不同官能度的羧甲基纤维素钠基大分子交联剂。在其他条件不变的情况下，调整羧甲基纤维素钠和烯丙基缩水甘油醚的投料比，以羧甲基纤维素钠/烯丙基缩水甘油醚摩尔比为 1∶15，1∶25，1∶30 和 1∶35 合成大分子交联剂，并制备相应的水凝胶。为了研究不同官能度的交联剂对水凝胶力学性能的影响，利用万能试验机对水凝胶样条进行拉伸测试表征水凝胶的力学性能，结果如 Fig.4 所示。随着大分子交联剂中烯丙基缩水甘油醚含量的增加，水凝胶的断裂伸长率和拉伸强度均呈先增大后减小的趋势。

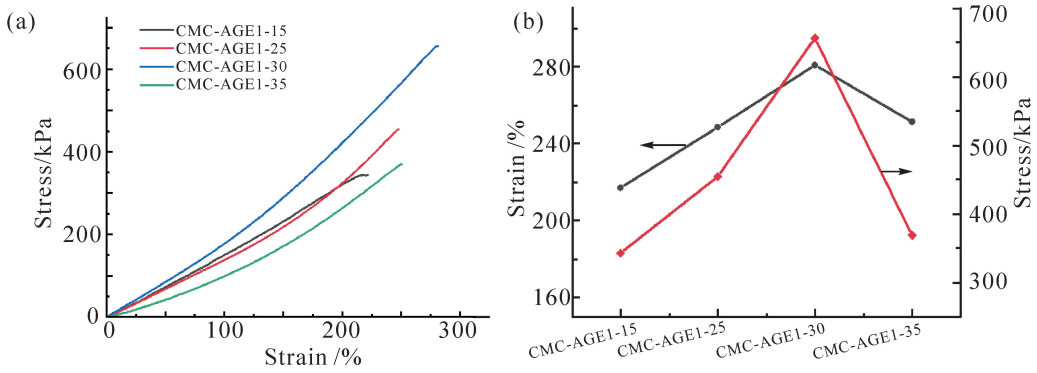


Fig. 4　(a) Stress-strain curves and (b) dual-*Y* axis stress-strain response of hydrogels fabricated with CMC-AGE formulations of varying compositions

以羧甲基纤维素钠和烯丙基缩水甘油醚投料比为 1∶30 制备大分子交联剂后,考察了交联剂用量对水凝胶力学性能的影响,结果如 Fig.5 所示。随着交联剂用量的增加,水凝胶的断裂伸长率先增大后减小,当交联剂用量为 1 g 时,水凝胶的断裂伸长率可达到最大值 360%。这可能是由于在交联剂用量较小时,随着交联剂用量的增加,水凝胶网络中物理缠结网络增加导致的;但当交联剂用量较大时,水凝胶中化学交联网络的交联密度随之上升,导致水凝胶的断裂伸长率降低。与之类似的,当交联剂用量较小时,水凝胶的拉伸强度变化不大,当交联剂用量超过 1 g 时,水凝胶的拉伸强度大幅降低。

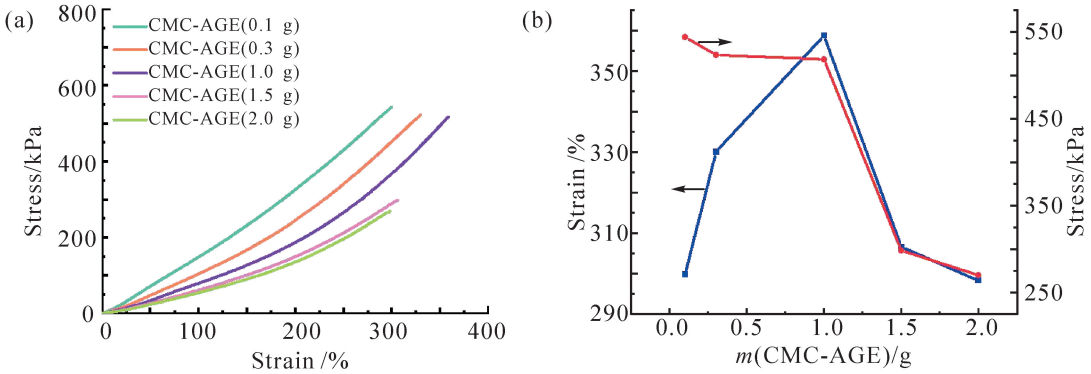


Fig. 5　(a) Stress-strain curves and (b) dual-*Y* axis stress-strain response of hydrogels fabricated with varying CMC-AGE dosages

物理缠结网络的存在有望赋予水凝胶一定的能量耗散能力。通过不同最大应变的循环拉伸加载-卸载实验,考察了水凝胶的能量耗散能力,结果如 Fig.6 所示。随着最大拉伸应变从 50% 上升至 300%,水凝胶的应力-应变滞后回线面积逐渐增大,耗散能从 0.002 MJ/m^3 上升至 0.41 MJ/m^3,表明该水凝胶在受力过程中可以有效耗散能量。

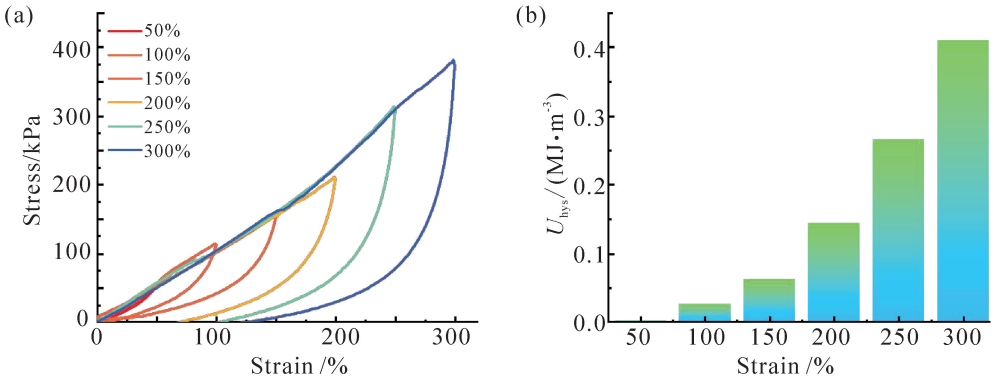


Fig. 6 (a) Loading-unloading curves of the hydrogel at different maximum strain; (b) corresponding U_{hys} at different maximum strain

通过在 200% 的最大拉伸应变下进行循环拉伸试验来考察水凝胶的抗疲劳性能,结果如 Fig.7 所示。水凝胶在连续的 6 个循环的拉伸加载-卸载测试中表现出了明显的“Mullins 效应”,即第 1 个周期的应力-应变滞后回线明显大于后 5 个周期,而后 5 个周期的应力-应变滞后回线大小基本一致。同时,从水凝胶的应力-时间曲线(Fig.7(b))可以发现,水凝胶的拉伸强度在 200% 最大应变下的衰减几乎可以忽略不计,表明该水凝胶具有优异的抗疲劳性能。

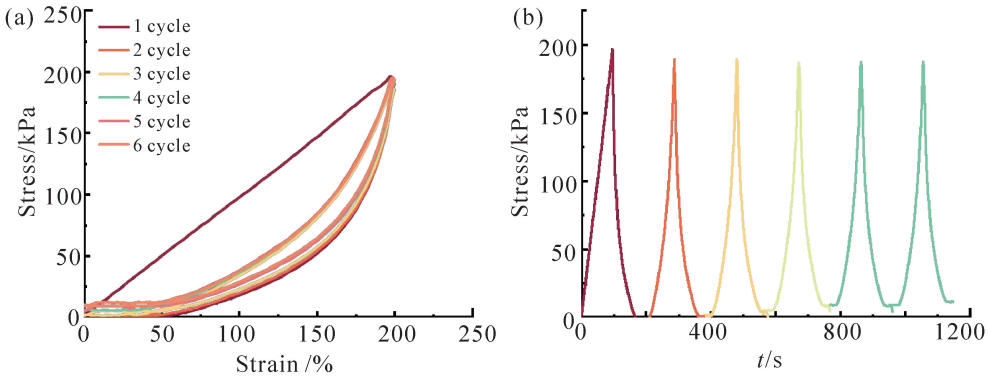


Fig. 7 (a) Stress-strain curves of the hydrogel under loading-unloading test at a consecutive strain of 200%; (b) stress-time curve of the hydrogel under tensile loading-unloading test at a consecutive strain of 200%

将拉伸至 200% 应变的水凝胶样条分别静置 5 min,10 min,20 min 和 60 min 后,再次对水凝胶样条进行循环拉伸试验,以研究水凝胶的自恢复能力,结果如 Fig.8 所示。第 1 个加载-卸载循环曲线显示出较大的滞后回线,随着静置时间从 0 min 增加至 60 min,水凝胶的滞回线逐渐变大,这表明,经过一段时间的静置之后,水凝胶的网络部分恢复。定量地,可以通过计算不同加载循环下的耗散能与第 1 个加载循环的比值来定义耗散能的恢复率。随着静置时间由 5 min 逐渐延长至 60 min,水凝胶的耗散能恢复率由 22% 上升至 36%。以上结果表明,水凝胶具有一定的自恢复能力,这一能力源于水凝胶网络中大量“悬链”形成的物理缠结网络,受到外力作用时,这些物理缠结网络很容易被破坏,但受力结束后,它们又可以重新恢复缠结,起到恢复水凝胶网络的作用。

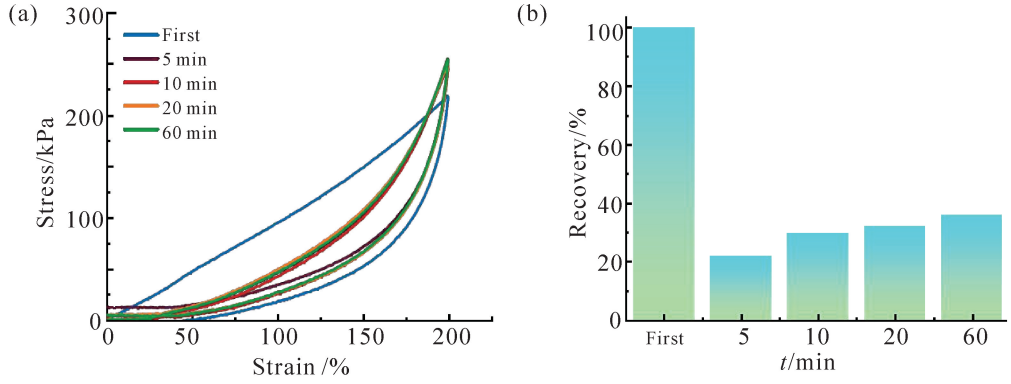


Fig. 8　(a) Cyclic tensile curves of the hydrogel at the strain of 200% with different resting time; (b) dissipated energy recoveries of the hydrogel

2.2.3　水凝胶的导电性能:如 Fig.9(a)所示,将水凝胶接入电路后,可以点亮 LED 灯泡,这表明水凝胶具有一定的导电能力。定量地,利用电化学工作站考察了由不同组成的大分子交联剂构成的水凝胶的电导率,如 Fig.9(b)所示。结果表明,交联剂的组成对水凝胶的电导率影响不大。

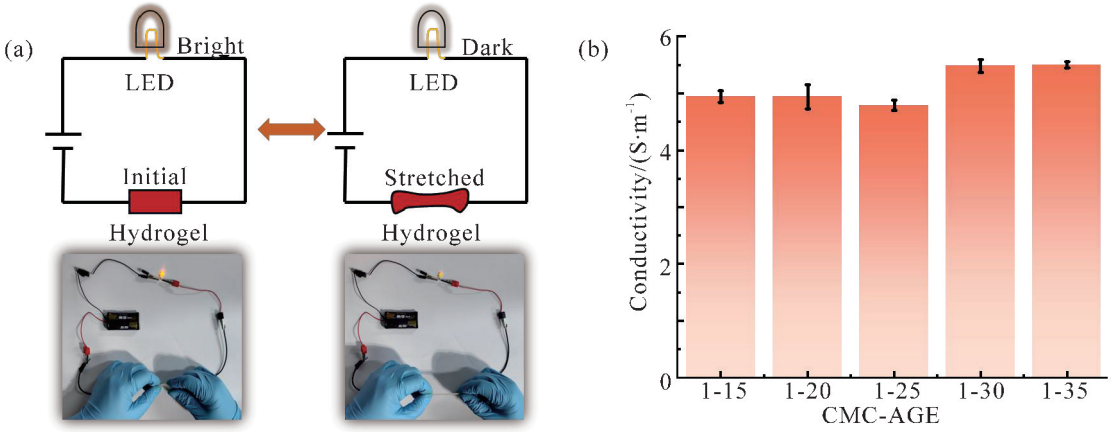


Fig. 9　(a) Photograph of the hydrogel integrated into a circuit successfully illuminating an LED bulb; (b) conductivity of the hydrogel fabricated with CMC-AGE formulations of varying compositions

2.2.4　水凝胶的应变传感性能:为了评估水凝胶的应变传感能力,测定了其在不同拉伸应变下的相对电阻。如 Fig.10(a)所示,相对电阻随拉伸应变由 0%增加到 350%逐渐增大。应变系数为相对电阻与所施加应变的比值,可用于评估应变敏感性。Fig.10(a)中显示,相对电阻可分为 0~100%,100%~250%和 250%~350% 3 个线性区域,对应的 GF 值分别为 0.51,0.6 和 0.77,表现出在较宽应变范围内,其具有较高的应变敏感性。Fig.10(b, c)的结果表明,水凝胶的传感在 25%~300%应变范围内灵敏度稳定,响应快速(<1 s),经 100 次循环仍能保持信号一致性($\Delta R/R_0$ 波动<5%)。Fig.11 展示了分别在手指、手腕、手肘和膝盖部署应变传感器进行运动检测时的电信号,可观察到,关节弯曲(无论位置)均会引起传感器电阻增加,关节复位则电阻恢复。所有动作均产生规律且相似的特征波形。以上现象证明该水凝胶材料具有良好的应变响应性能——快速、稳定、可重复,是监测人体活动的理想选择。

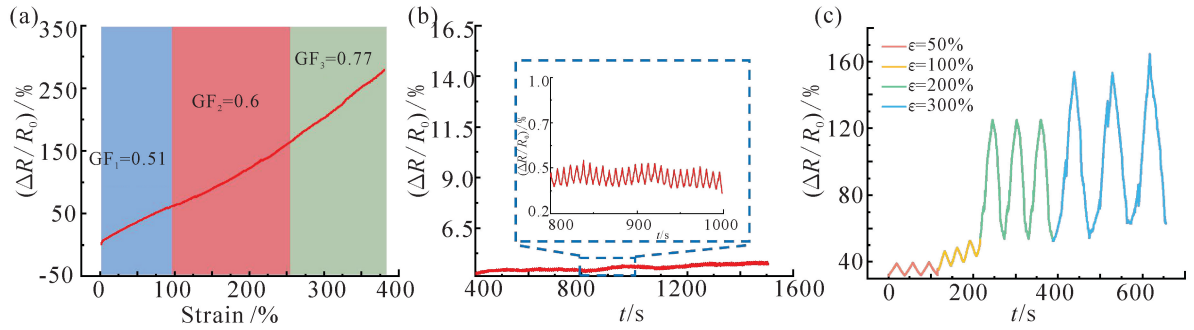


Fig. 10 (a) Relative resistance change-strain curve of the hydrogel; (b) relative resistance-time curve at the strain of 25% over 100 cycles; (c) relative resistance change-strain curve of the hydrogel at different strains

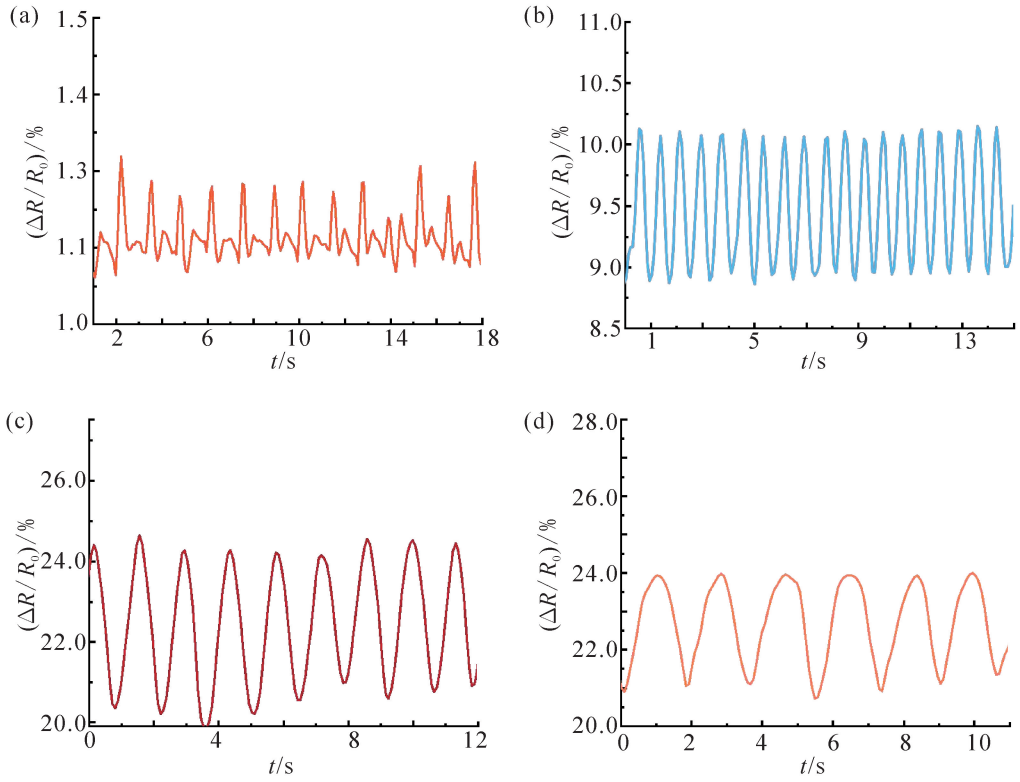


Fig. 11 Electrical signals of the hydrogel during monitoring of joint movements at (a) fingers, (b) wrists, (c) elbows and (d) knees

2.2.5 水凝胶的温敏性能(健康监测):由 Fig.12(a, b)可知,当温度为 34 ℃时,水凝胶透光率较高,而当温度上升到 40 ℃时,水凝胶的透光率明显下降。这一现象表明,该水凝胶具有 LCST 型温敏行为。为了进一步研究水凝胶的 LCST 行为,利用紫外可见分光光度计测定了其在不同温度的透光率,以确定临界温度。由 Fig.12(c)可以看出,水凝胶在 36~38 ℃时,透光率明显降低。众所周知,NIPAAm 的低临界温度(LCST)在 32~34 ℃,可能是由于亲水性单体 AMPS 的加入改变了共聚物的亲疏水性,导致聚合物的低临界温度升高到 36~38 ℃。这一临界温度与人体正常体温接近,因此,可以利用该水凝胶作为温度监测传感器,实现可视化监测人体发烧等体温异常情况。

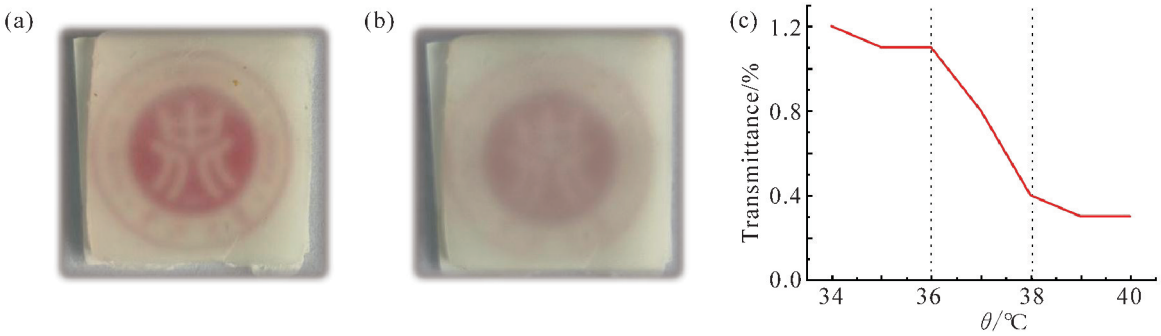


Fig. 12　Photos of hydrogel at (a) 34 ℃ and (b) 40 ℃; (c) transmittance-temperature curve of the hydrogel

3　结论

(1)通过一步碱催化接枝反应,制得了具有大量乙烯基官能团的新型大分子交联剂 CMC-AGE。通过调整羧甲基纤维素钠和烯丙基缩水甘油酯的投料比,灵活调节 CMC-AGE 分子链上的双键含量。

(2)CMC-AGE 可以将化学交联网络和物理缠结网络同时整合到水凝胶中,赋予了水凝胶出色的力学性能。

(3)水凝胶具有一定的电导率,且受交联剂组成影响较小,在 25%~300%应变范围内,灵敏度因子分 3 段线性增长(0.51~0.77),响应时间<1 s,100 次循环后 $\Delta R/R_0$ 波动<5%;关节运动监测实验中,电信号与弯曲动作高度对应,证实其作为柔性应变传感器的潜力。

(4)AMPS 单体引入使水凝胶 LCST 升至 36~38 ℃(接近人体体温),为实时监测体温异常(如发热)提供了可视化手段。

参考文献:

[1] Choi S, Han S I, Jung D, *et al*. Highly conductive, stretchable and biocompatible Ag-Au core-sheath nanowire composite for wearable and implantable bioelectronics[J]. Nature Nanotechnology, 2018, 13: 1048-1056.

[2] Lai Y C, Lu H W, Wu H M, *et al*. Elastic multifunctional liquid-metal fibers for harvesting mechanical and electromagnetic energy and as self-powered sensors[J]. Advanced Energy Materials, 2021, 11: 2100411.

[3] Wang C, Pei Z, Meng Q, *et al*. Toward flexible zinc-ion hybrid capacitors with superhigh energy density and ultralong cycling life: the pivotal role of $ZnCl_2$ salt-based electrolytes[J]. Angewandte Chemie International Edition, 2021, 60: 990-997.

[4] Ma J, Lee J, Han S S, *et al*. Highly stretchable and notch-insensitive hydrogel based on polyacrylamide and milk protein[J]. ACS Applied Materials & Interfaces, 2016, 8: 29220-29226.

[5] Ohm Y, Pan C, Ford M J, *et al*. An electrically conductive silver-polyacrylamide-alginate hydrogel composite for soft electronics[J]. Nature Electronics, 2021, 4: 185-192.

[6] Han L, Liu K, Wang M, *et al*. Mussel-inspired adhesive and conductive hydrogel with long-lasting moisture and extreme temperature tolerance[J]. Advanced Functional Materials, 2018, 28: 1704195.

[7] He H, Li H, Pu A, *et al*. Hybrid assembly of polymeric nanofiber network for robust and electronically conductive hydrogels[J]. Nature Communications, 2023, 14: 759.

[8] Wang S, Yu L, Wang S, *et al*. Strong, tough, ionic conductive, and freezing-tolerant all-natural hydrogel enabled by cellulose-bentonite coordination interactions[J]. Nature Communications, 2022, 13: 3408.

[9] Li W, Li L, Zheng S, *et al*. Recyclable, healable, and tough ionogels insensitive to crack propagation[J]. Advanced Materials, 2022, 34: 2203049.

[10] Huang H, Han L, Fu X, *et al*. Multiple stimuli responsive and identifiable zwitterionic ionic conductive hydrogel for bionic electronic skin[J]. Advanced Electronic Materials, 2020, 6: 2000239.

Fabrication and Performance of Strain and Temperature Sensors Based on Dynamic Entanglement Networks

Wenhao Du[1], Shuaicheng Li[1], Zhixin Zhao[2], Xi Zhang[3]

(*1. School of Chemistry and Chemical Engineering, North University of China, Taiyuan 030051, China;*

2. School of Materials Science and Engineering, Xihua University, Chengdu 610039, China;

3. Institute of Polymer Science, Sichuan University, Chengdu 610065, China)

ABSTRACT: Addressing the urgent demand in the field of flexible sensors for materials that combine excellent mechanical properties with multimodal sensing capabilities, in this study, a thermoresponsive conductive hydrogel based on sodium carboxymethyl cellulose (CMC)-derived macromolecular crosslinker was designed and synthesized. The synthesis process was systematically optimized, and the structure-property relationships were thoroughly analyzed to validate its bimodal sensing potential in human motion monitoring and health management. A novel crosslinking agent was prepared via one-step grafting reaction, enabling the simultaneous integration of chemically crosslinked networks and dynamically entangled networks within the hydrogel. The resulting material exhibits outstanding mechanical performance and electrical conductivity. In the strain range of 25% ~ 300%, the response time is less than 1 s, with a relative resistance change ($\Delta R/R_0$) fluctuation below 5% after 100 cycles, demonstrating its capability for real-time monitoring of joint bending motions. Furthermore, the lower critical solution temperature of the hydrogel is consistent with the range of human body temperature, enabling visualized early warning of fever anomalies.

Keywords: conductive hydrogel; flexible sensor; thermoresponsive; dynamic entanglement network; macromolecular crosslinker