



Caracterización mecánica de hidrogeles mediante ensayos de nanoindentación

Jesús Rodríguez^{1,2}, Carlos Reinhards¹, Mario Martínez¹, Alicia Salazar^{1,2}, Álvaro Rico¹

¹ Grupo de Durabilidad e Integridad Mecánica de Materiales Estructurales.

Universidad Rey Juan Carlos. Tulipán s/n, 28933, Móstoles, Madrid.

² Instituto de Investigación en Tecnologías para la Sostenibilidad.

Universidad Rey Juan Carlos. Tulipán s/n, 28933, Móstoles, Madrid.

Los materiales blandos se caracterizan por presentar comportamientos mecánicos complejos, en muchas ocasiones asociados a no linealidad y dependencia del tiempo. Los ensayos de indentación son una técnica experimental que permite caracterizar mecánicamente un material a diferentes escalas, lo que hace posible identificar mecanismos físicos asociados al comportamiento de los materiales blandos. Cuando la escala del ensayo es muy pequeña y entra en el rango de los nanómetros, los fenómenos de adhesión pueden ser muy relevantes y deben ser tenidos en cuenta para extraer las propiedades mecánicas del material. Los modelos mecánicos del continuo más conocidos (Hertz, Johnson-Kendall-Roberts, etc.) suelen estar basados en las hipótesis de elasticidad, linealidad e independencia del tiempo. Para poder aplicar estos modelos a materiales blandos es necesario combinarlos con análisis viscoelásticos.

En este trabajo se presenta una metodología de análisis de los resultados de ensayos de nanoindentación en materiales blandos que utiliza el principio de correspondencia para determinar la función de relajación viscoelástica y la energía de adhesión. A partir de las curvas fuerza-desplazamiento medidas en ensayos de nanoindentación se aplica la transformada de Laplace-Carson para convertir el problema viscoelástico real en un problema elástico equivalente. En el espacio transformado se aplican los modelos de contacto de continuo y se extraen las propiedades objetivo al deshacer la transformada de Laplace-Carson.

Esta metodología se ha utilizado para caracterizar diversos hidrogeles con aplicaciones en la ingeniería biomédica y en la ingeniería de tejidos.

1. Introducción

Los hidrogeles están conquistando gradualmente sectores tecnológicos de vanguardia, más allá de aquellos tradicionalmente utilizados hasta la fecha en los sectores biomédico y/o sanitario (curación de heridas, administración de medicamentos, lentes de contacto, etc.). El gran número de tipos de hidrogeles y el descubrimiento en 2003 [1] de los hidrogeles de doble red (DN) con propiedades mecánicas y de fractura sobresalientes está permitiendo la creación de nuevas aplicaciones en los campos de la electrónica flexible [2] o la robótica blanda [3], entre otros. En estas aplicaciones, las prestaciones mecánicas tienen suma importancia para asegurar la longevidad y durabilidad de los componentes. Los hidrogeles están formados por una estructura polimérica llena de un gran contenido de agua (puede alcanzar porcentajes superiores al 90% en peso) con un comportamiento mecánico complejo causado por dos fenómenos de diferente naturaleza vinculados a su composición: viscoelasticidad y poroelasticidad. El primero es un comportamiento dependiente del tiempo causado por la reorganización de la red polimérica y el segundo es un comportamiento dependiente del tamaño y del tiempo promovido por la migración del solvente bajo deformación. Por lo tanto, abordar la caracterización mecánica de los hidrogeles es un desafío ya que se deben enfrentar varias dificultades desde el punto de vista metodológico y experimental. La respuesta mecánica de estos materiales puede ser hiperelástica, viscoelástica, poroelástica o una combinación de estos comportamientos, lo que aumenta considerablemente la dificultad del problema. El segundo problema está relacionado con la realización de los experimentos. Los hidrogeles son materiales blandos con una rigidez muy baja (del orden de los kPa) y pequeñas cargas de rotura, en combinación con una gran extensibilidad. Esto dificulta el manejo, el agarre y la fijación al tren de carga siendo a veces complicado no introducir daño en las muestras al manipularlas. Esto obliga a utilizar equipamiento no convencional, como células de carga de muy bajo rango, sistemas de sujeción especiales, extensómetros sin contacto, etc. En muchas ocasiones, el ensayo debe realizarse en inmersión en agua (o solvente) para evitar una deshidratación importante que alteraría considerablemente las propiedades. En resumen, la caracterización mecánica de hidrogeles no es sencilla, presentando una serie de dificultades que pueden cuestionar la calidad y consistencia de los resultados.

En ese sentido, la nanoindentación instrumentada se presenta como una alternativa interesante para la caracterización mecánica de los hidrogeles por diversos motivos, entre los que hay que destacar la facilidad de preparación de las muestras, la posibilidad de utilizar pequeños volúmenes de material, un montaje experimental relativamente sencillo, tiempos de ejecución del ensayo razonables y la flexibilidad para realizar ensayos a diferentes escalas, desde nanómetros hasta milímetros [4]. Adicionalmente, los ensayos de indentación pueden utilizarse para analizar el comportamiento dependiente del tiempo de los hidrogeles, realizando por ejemplo ensayos de relajación. Los fenómenos de relajación son una consecuencia de los comportamientos viscoelástico y poroelástico del material. Estos fenómenos dependientes del tiempo suelen estar acoplados, dificultando la interpretación de los resultados. Existen numerosos trabajos en la literatura que describen el comportamiento solo mediante un análisis visco(hiper)elástico [5-7] o solo mediante modelos poroelástico lineales [8-10]. Recientemente, los autores [11-12] han desarrollado una metodología para separar las contribuciones viscoelásticas y poroelásticas en ensayos de indentación de relajación realizados a diferentes escalas.

En todos estos trabajos de indentación a múltiples escalas, el punto de partida para el análisis del comportamiento mecánico de los hidrogeles son los modelos de mecánica de contacto dentro del marco de la mecánica del continuo, como el modelo de contacto hertziano [13]. Esta teoría, desarrollada inicialmente para dos esferas elásticas en contacto, asume un comportamiento completamente elástico y establece relaciones entre la fuerza de indentación, F , la profundidad de indentación, δ , y el radio de contacto, a , incluyendo constantes elásticas y parámetros geométricos tanto del indentador como de la muestra. La principal limitación de esta metodología es que no considera la posible adhesión entre el indentador y la muestra, una interacción que juega un papel importante a micro/nanoescala pero es insignificante a macroescala. Johnson, Kendall y Roberts (JKR) modificaron las ecuaciones clásicas de Hertz introduciendo términos dependientes de la energía de adhesión [14]. El modelo JKR también es completamente elástico y proporciona resultados adecuados para materiales blandos, radios de contacto grandes en términos relativos y alta energía de adhesión. El modelo JKR no se puede aplicar directamente a los hidrogeles ya que estos materiales muestran comportamientos mecánicos no lineales causados por la viscoelasticidad y/o la poroelasticidad. En el caso de comportamiento viscoelástico, puede solventarse esta dificultad utilizando el principio de correspondencia, que convierte un problema viscoelástico en uno elástico equivalente a través de la transformada de Laplace-Carlson [15]. Las ecuaciones elásticas que definen el modelo JKR son válidas en el espacio transformado. El objetivo de esta investigación es desarrollar una metodología que permita la aplicación del modelo JKR para extraer las propiedades mecánicas y la energía de adhesión de hidrogeles a partir de los registros fuerza desplazamiento obtenidos en ensayo de relajación de nanoindentación. La metodología se aplica en particular a hidrogeles de poliacrilamida-alginato.

2. Fundamentos teóricos

2.1. El modelo de Hertz: contacto elástico sin adhesión

Este modelo, desarrollado inicialmente para dos esferas elásticas en contacto, puede aplicarse al caso particular en el que una de las dos esferas tiene un radio infinito, es decir, una indentación esférica en un semiespacio elástico homogéneo (Figura 1). Se aplica una carga normal F al indentador rígido esférico de radio R_i lo que induce una profundidad de penetración δ , y una radio de contacto a . La penetración está relacionada con el radio de contacto a través de la siguiente expresión:

$$\delta = \frac{a^2}{R^*} \quad (1)$$

Y el radio de contacto a , entendiéndolo como el radio de la proyección del área de contacto entre los dos sólidos, se puede relacionar con la fuerza aplicada F mediante la ecuación 2:

$$a = \left[\frac{FR^*}{K} \right]^{\frac{1}{3}} \quad (2)$$

donde R^* es el radio efectivo del contacto, calculado como:

$$R^* = \left[\frac{1}{R_i} - \frac{1}{R} \right]^{-1} \xrightarrow{R \rightarrow \infty} R_i \quad (3)$$

siendo R el radio de la muestra (infinito en el caso de una probeta plana), R_i el radio del indentador y K es una constante elástica igual a:

$$K = \frac{4}{3} E^* \quad (4)$$

donde finalmente E^* es el módulo reducido que combina módulo elástico y coeficiente de Poisson de muestra (E y ν) y de indentador (E_i y ν_i). Si el indentador es mucho más rígido que la muestra, el módulo reducido coincide con el de la muestra

$$E^* = \left[\frac{(1 - \nu^2)}{E} + \frac{(1 - \nu_i^2)}{E_i} \right]^{-1} \xrightarrow{E_i \rightarrow \infty} \frac{E}{(1 - \nu^2)} \quad (5)$$

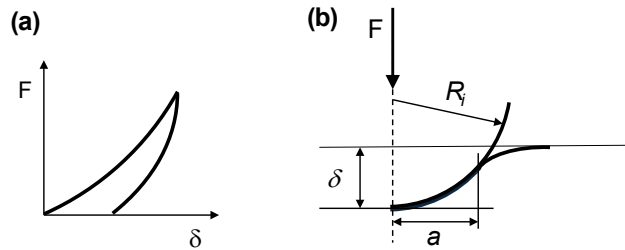


Figura 1: a) curva fuerza – penetración en un ensayo de indentación; b) esquema de una indentación esférica.

La presión media de contacto se define como la relación entre la fuerza aplicada y el área de contacto proyectada:

$$P = \frac{F}{\pi a^2} \quad (6)$$

Como la fuerza y la penetración se miden experimentalmente, puede encontrarse una relación entre ellas utilizando el modelo de contacto de Hertz definido por las ecuaciones (1), (2), (3), (5) y (6):

$$F = \frac{4}{3} E^* R^{\frac{1}{2}} \delta^{\frac{2}{3}} \quad (7)$$

2.2. El modelo JKR: contacto elástico con adhesión

El modelo de Hertz no considera la adhesión entre los cuerpos en contacto, lo cual puede ser relevante a micro/nanoescala. Además de las fuerzas que mantienen la cohesión de un material, pueden aparecer fuerzas de atracción entre las superficies de dos cuerpos cercanos entre sí, que condicionan las dimensiones del área de contacto y el estado tensional en esa región. El modelo desarrollado por Johnson, Kendall y Roberts (JKR) modifica las ecuaciones de Hertz para tener en cuenta los fenómenos de adhesión. La hipótesis principal de este modelo de contacto elástico es considerar las fuerzas de adhesión solo del área de contacto, ignorando aquellas que pudieran generarse fuera del contacto entre los dos sólidos. El modelo JKR utiliza un criterio energético para establecer un equilibrio entre el trabajo realizado por la fuerza aplicada, F , la energía elástica almacenada y la energía de adhesión, ω . El modelo JKR permite determinar el radio de contacto, a , y la profundidad de penetración, δ , de acuerdo con las expresiones:

$$a = \left[\frac{R^*}{K} \left(\sqrt{\frac{3}{2} \pi \omega R^*} + \sqrt{F + \frac{3}{2} \pi \omega R^*} \right)^2 \right]^{\frac{1}{3}} \quad (8)$$

$$\delta = \frac{a^2}{R^*} - \sqrt{\frac{8}{3} \frac{a \pi \omega}{K}} \quad (9)$$

3. Procedimiento experimental

3.1. Materiales

En este trabajo se han analizado hidrogeles de poliacrilamida (PAAM) y de doble red de alginato/poliacrilamida con contenidos de alginato del 10% en peso (PAAM-10ALG) y del 14% en peso (PAAM-14ALG). La ruta de procesamiento se describe en [12, 16]. Las propiedades mecánicas y de fractura fueron determinadas por Reinhardt et al. [12, 16] y los parámetros de tracción como el módulo de Young, E , la resistencia a la tracción, s_T , el alargamiento a rotura, λ_R , y el valor de la energía de fractura en la iniciación del crecimiento de la grieta, J_{IC} , se muestran en la Tabla 1. Como ya ha quedado recogido en la bibliografía [12, 16], la adición de alginato mejora la rigidez, la resistencia mecánica y la resistencia a la fractura con un aumento mínimo en la extensibilidad.

Tabla 1: Propiedades mecánicas y energía de fractura de los hidrogeles estudiados [12, 16]

	Propiedades mecánicas			Energía de fractura
	E (kPa)	s_T (kPa)	λ_R	J_{IC} (J/m ²)
PAAM	13.0 ± 0.9	12 ± 2	1.98 ± 0.15	4.5 ± 1.0
PAAM-10ALG	40 ± 6	33 ± 9	1.8 ± 0.1	17 ± 3
PAAM-14ALG	54 ± 8	67 ± 15	2.4 ± 0.3	49 ± 6

3.2. Caracterización experimental

3.2.1 Ensayos de relajación de carga por nanoindentación

Los ensayos de nanoindentación se han realizado en un nanoindentador (modelo Piuma, marca OPTICS 11, Países Bajos) con un rango de carga entre 20 pN y 2 mN y una resolución de desplazamiento de 0.5 nm. Se empleó una punta esférica de sílice con un radio de 107.5 μm unida a un *cantilever* con una rigidez de 0.46 N/m. Las muestras de hidrogel se han pegado a un soporte y se han sumergido en agua ultra pura para evitar el secado durante los ensayos. Se realizaron diez repeticiones por material a temperatura ambiente. La punta esférica penetró en las muestras hasta una profundidad objetivo de 1 μm, buscando un radio de contacto hertziano de aproximadamente 10 μm, y se mantuvo constante durante 10 s antes de retirar la punta, mientras se registraba continuamente la carga. Durante los ensayos de relajación se pueden distinguir tres etapas que se esquematizan en la Figura 2 para los

registros de profundidad de penetración frente al tiempo, carga frente al tiempo y carga frente a profundidad de penetración.

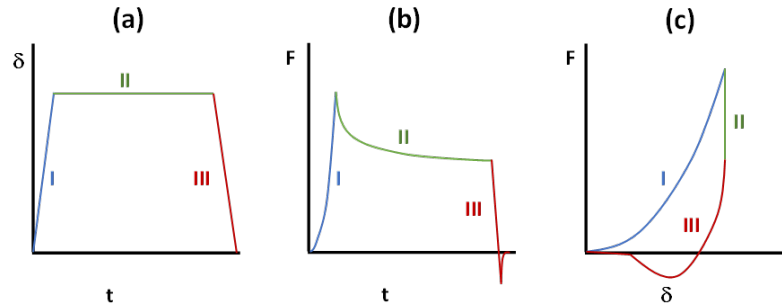


Figura 2: Esquema de los ensayos de relajación mediante nanoindentación: a) registro penetración-tiempo; b) registro fuerza-tiempo; c) registro fuerza-penetración.

En la etapa I la punta se introduce en el material hasta la penetración objetivo durante un tiempo de 0,2 s. Durante la etapa II el desplazamiento de la punta se mantiene constante un tiempo de 10 s mientras se registra continuamente la respuesta de carga. Finalmente, en la etapa III la punta se retira del material con un tiempo de descarga idéntico al de la etapa inicial de 0,2 s.

3.2.2 Procedimiento para la determinación de la energía de adhesión.

El procedimiento utilizado para la determinación de la energía de adhesión se basa en el conocido principio de correspondencia que permite transformar un problema viscoelástico en uno elástico equivalente utilizando la transformada de Laplace-Carson. Un esquema de la metodología se muestra en la Figura 3. En el dominio de la variable tiempo, t , se aplica una profundidad de penetración constante y se registra la evolución de la carga necesaria para mantenerla. Al aplicar la transformada de Laplace-Carson, se calculan las funciones transformadas de profundidad de penetración y de carga como funciones de la variable en el espacio transformado, p . Estas funciones describen en este espacio transformado el comportamiento de un material elástico equivalente, para el que es aplicable el modelo JKR (ecuaciones (8) y (9)) que proporciona las funciones transformadas del módulo elástico, del radio de contacto y de la energía de adhesión. Para obtener finalmente la función de relajación y la variación temporal de la energía de adhesión y del radio de contacto basta con aplicar la transformada inversa de Laplace-Carson. Para trabajar con la función $G(t)$ en lugar de la función $E(t)$ debe hacerse la hipótesis de que el coeficiente de Poisson es constante y en los materiales de este trabajo cercano a la condición de incompresibilidad.

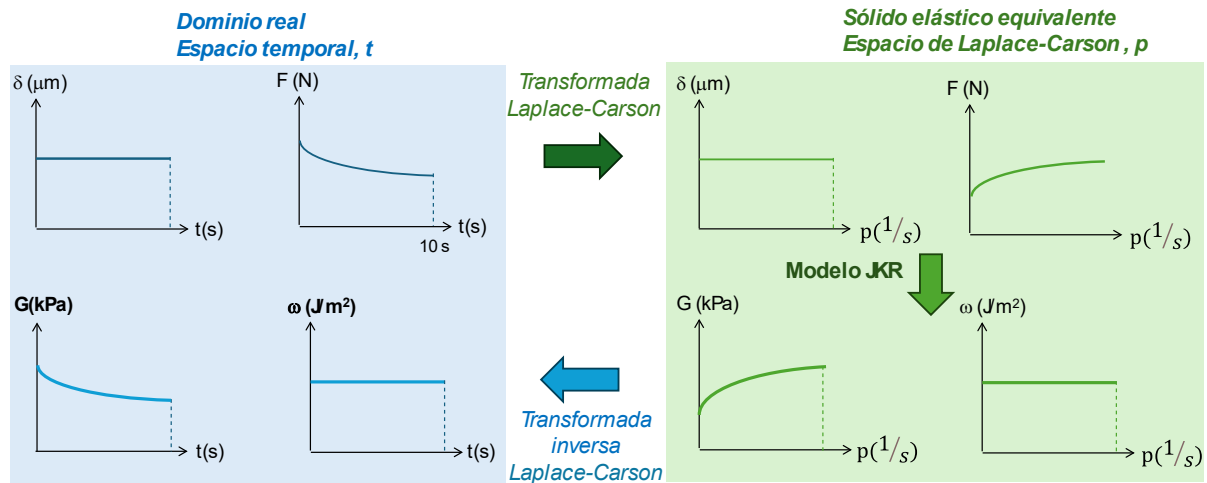


Figura 3: Esquema del procedimiento desarrollado para determinar la energía de adhesión.

4. Resultados y discusión

En la Figura 4 se muestra una curva media característica de la evolución de la carga con el tiempo registrada en los ensayos de nanoindentación para los hidrogeles estudiados. Mientras el indentador va penetrando en el material (etapa I), la carga aumenta rápidamente, a diferencia de lo que sucede en la etapa de mantenimiento (etapa II) donde la carga disminuye hasta alcanzar una meseta correspondiente a la respuesta relajada. En la etapa final de descarga (etapa III), el indentador retrocede y la carga de compresión se va reduciendo. Para conseguir una

separación completa entre el indentador y la muestra es necesario superar un valor crítico de fuerza de tracción que está asociado a la adhesión. Es importante enfatizar los bajos valores del rango de carga para las profundidades de penetración de 1 μm .

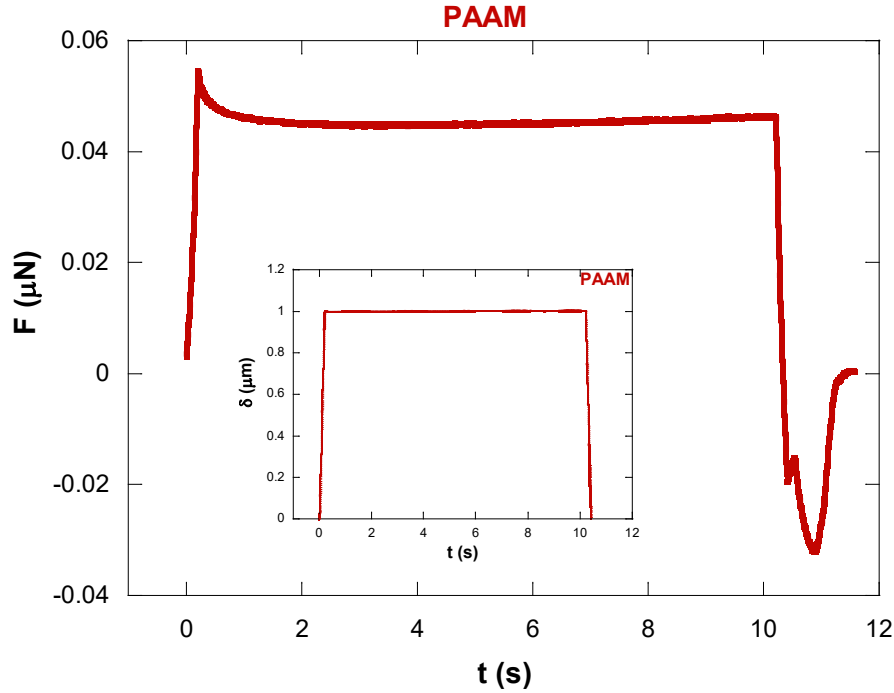


Figura 4: Curva característica de penetración impuesta-tiempo y fuerza-tiempo.

La aplicación del procedimiento descrito en el apartado de metodología conduce a la obtención de las funciones de relajación de los hidrogeles estudiados y la evolución de la energía de adhesión y del radio de contacto. La Figura 5 muestra las funciones de relajación de los materiales objeto de estudio, así como su ajuste a una serie de Prony de dos términos descrita por:

$$G(t) = G_{\infty} + (G_0 - G_{\infty}) \left[A e^{-t/\tau_{v1}} + (1 - A) e^{-t/\tau_{v2}} \right] \quad (10)$$

siendo G_{∞} el módulo de relajación en el equilibrio, G_0 es el módulo instantáneo (a tiempo igual a cero), τ_{vi} es tiempo de relajación instantáneo del elemento i^{th} de Maxwell y A es un factor viscoelástico. Los valores concretos de la serie de Prony para cada material se recogen en la Tabla 2.

Tabla 2: Función de relajación de los materiales objeto de estudio (ecuación (10)).

Material	G_{∞} (kPa)	$(G_0 - G_{\infty})$ (kPa)	A	τ_{v1} (s)	τ_{v2} (s)
PAAM	13.2	1.9	0.3	1.6	110
PAAM-10ALG	18	1.4	0.3	1.0	104
PAAM-14ALG	22	4.6	0.4	1.0	115

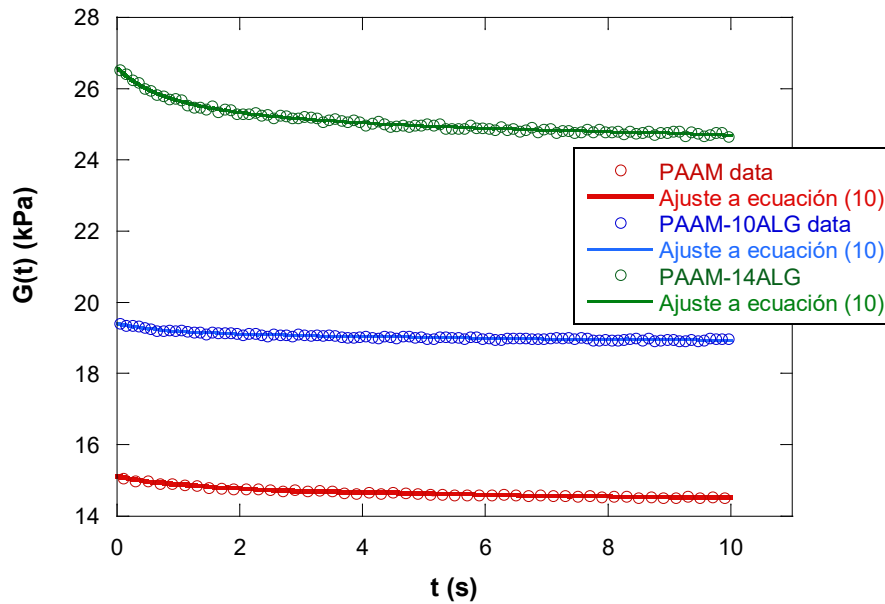


Figura 5: Funciones de relajación en el dominio del tiempo, $G(t)$. Se ha incluido el ajuste de los datos experimentales a una serie de Prony de dos términos (tabla 2 y ecuación (10)).

Los resultados muestran porcentajes de relajación pequeños en las funciones de relajación (Figura 5), pero aun así se aprecia con claridad como el radio de contacto aumenta en función del tiempo partiendo del radio de contacto predicho por el modelo de Hertz (Figura 6). Al relajarse, el material pierde rigidez y el área de contacto entre indentador y muestra aumenta.

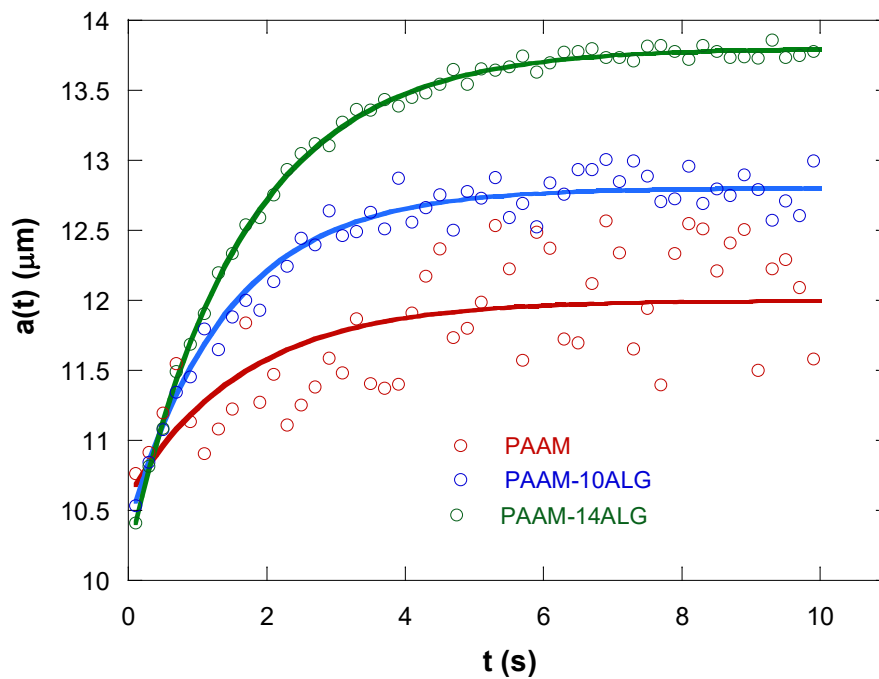
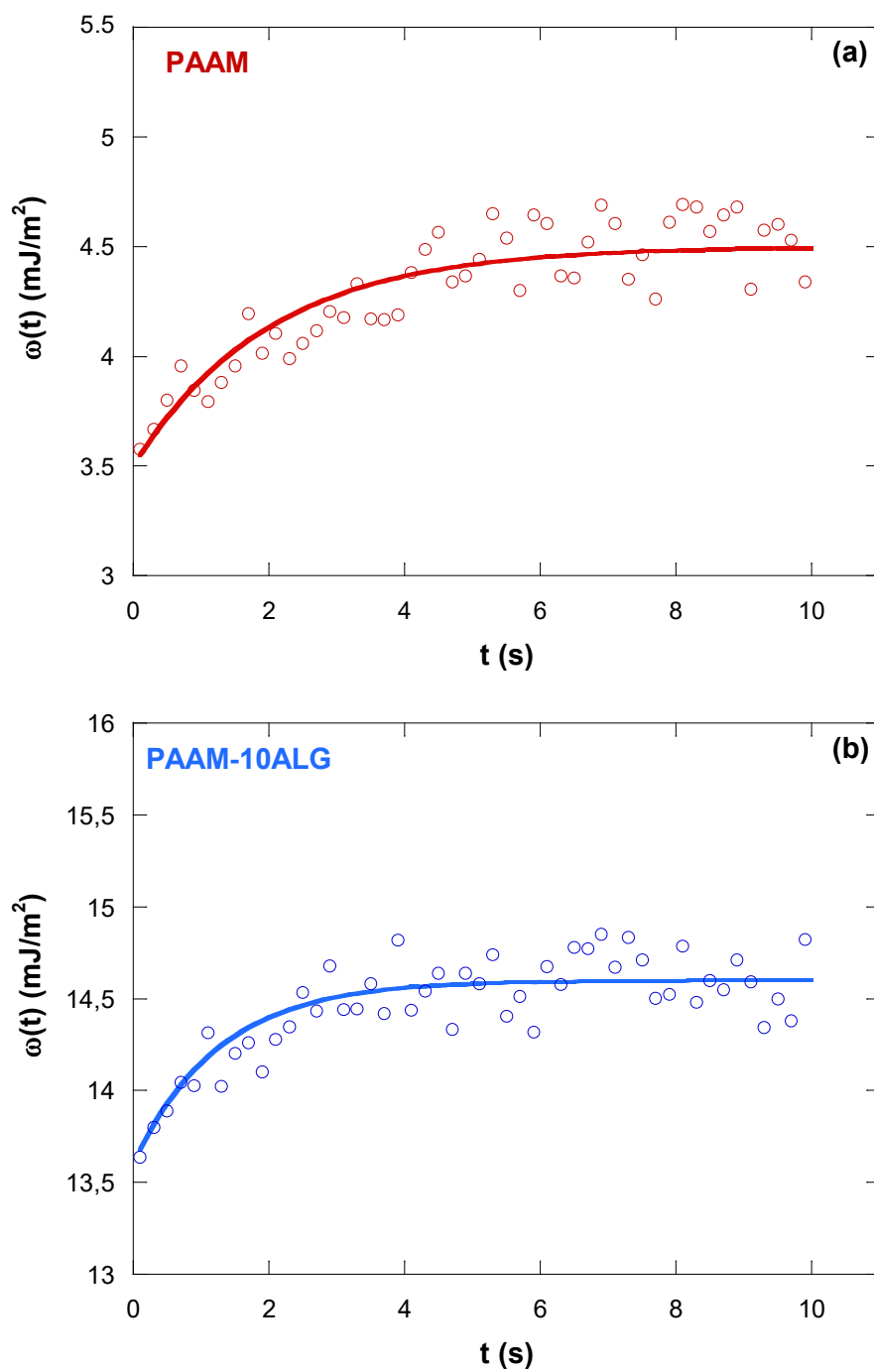


Figura 6: Evolución del radio de contacto con el tiempo de los hidrogeles objeto de estudio.

En cuanto a la energía de adhesión, la variación con el tiempo es detectable (Figura 7), si bien el mecanismo físico que podría justificar esa variación es más incierto. La presencia de alginato, como es conocido aumenta la rigidez de los hidrogeles de poliacrilamida.



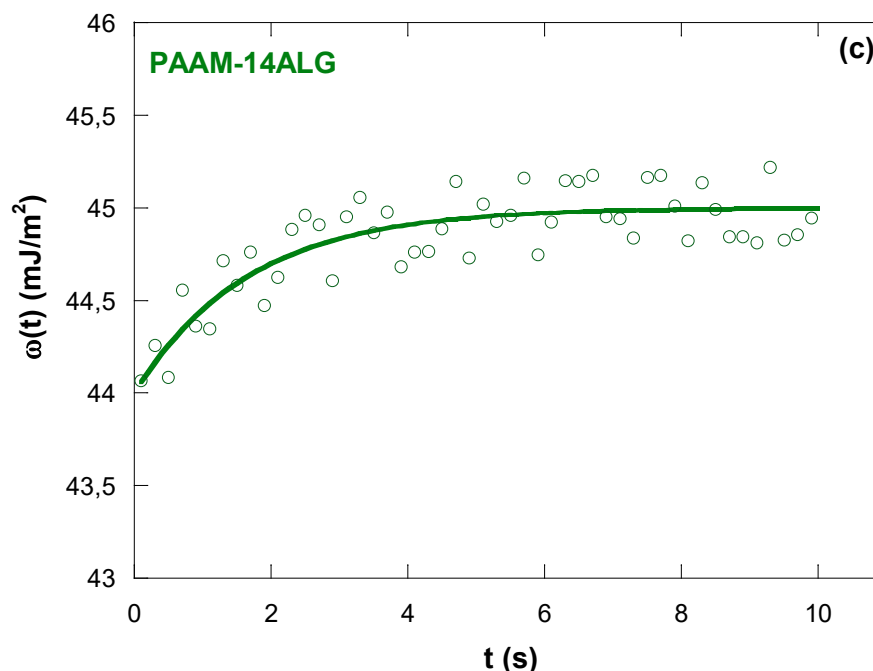


Figura 7: Evolución de la energía de adhesión con el tiempo para los tres materiales estudiados: a) PAAM; b) PAAA-10ALG; c) PAAM-14ALG

El modelo JKR es un modelo puramente elástico y su aplicación solo es aceptable una vez que se restan las energías disipativas. Por lo tanto, los ensayos de relajación por nanoindentación se han diseñado para evitar fenómenos de disipación poroelástica, ya que se sabe que el comportamiento poroelástico depende del tamaño y puede considerarse insignificante a pequeñas escalas [23]. Esa es la razón de haber realizado los ensayos de indentación con profundidades de penetración tan pequeñas como $1\ \mu\text{m}$ utilizando un indentador rígido hecho de sílice. Bajo esta pequeña escala, el mecanismo de disipación dominante se debe a la viscoelasticidad.

5. Conclusiones

En este trabajo, se han realizado ensayos de relajación mediante la técnica de nanoindentación para caracterizar el comportamiento de hidrogeles de poliacrilamida alginato. Los resultados obtenidos permiten extraer las siguientes conclusiones:

- Se ha desarrollado un procedimiento de cálculo utilizando la transformación de Laplace-Carson para calcular los valores de los parámetros característicos del modelo de contacto con adhesión JKR.
- Se ha determinado la función de relajación de tres hidrogeles de poliacrilamida con diferentes contenidos de alginato.
- Se ha determinado la evolución temporal del radio de contacto y de la energía de adhesión. Esta magnitud aumenta sustancialmente con el contenido de alginato en los hidrogeles de doble red, pasando de $4,5\ \text{mJ/m}^2$ en la poliacrilamida a $45\ \text{mJ/m}^2$ en el hidrogel de doble red con un 14% de alginato.

Agradecimientos.

Los autores agradecen al Ministerio de Ciencia, Innovación y Universidades la financiación recibida a través de los proyectos PID2019-108968RB-I00 y PID2022-140868OB-I00 y a la Comunidad de Madrid por el proyecto Hydrosize.

6. Referencias

- [1] Gong JP, Katsuyama Y, Kurokawa T, Osada Y. Double-network hydrogels with extremely high mechanical strength, *Adv Mater* 2003; 15: 1155–8. <https://doi.org/10.1002/adma.200304907>
- [2] Chen RS, Gao M, Chu D, Cheng W, Lu Y. Self-powered hydrogel wearable bioelectronics, *Nano Energy* 2024; 128 Part B: 109960. <https://doi.org/10.1016/j.nanoen.2024.109960>

- [3] Park CS, Kang YW, Na H, Sun JY. Hydrogels for bioinspired soft robots. *Progress in Polymer Science* 2024; 150: 101791. <https://doi.org/10.1016/j.progpolymsci.2024.101791>
- [4] The mechanics of hydrogels. Mechanical properties, testing and applications. H Li and V Silberschmidt editors. Elsevier, 2022.
- [5] Selby A, Maldonado-Codina C, Derby B. Influence of specimen thickness on the nanoindentation of hydrogels: Measuring the mechanical properties of soft contact lenses. *Journal of the Mechanical Behavior of Biomedical Materials* 2014; 35: 144 – 156. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jmbbm.2013.11.023>
- [6] Toohey KS, Kalyanam S, Palaniappan J, Insana MF. Indentation analysis of biphasic viscoelastic hydrogels. *Mechanics of materials* 2016; 92: 175-184. <http://dx.doi.org/10.1016/j.mechmat.2015.09.010>
- [7] Cabeza-Gil I, Calvo B, Rico A, Reinhards-Hervás C, Rodríguez J. Mechanical characterisation of hydrophobic and hydrophilic acrylates used in intraocular lenses through depth sensing indentation. *Journal of the Mechanical Behavior of Biomedical Materials* 2022; 126: 104997. <https://doi.org/10.1016/j.jmbbm.2021.104997>
- [8] Cuenot S, Gélébart P, Sinquin C, Collicec-Jouault S, Zykwin A. Mechanical relaxations of hydrogels governed by their physical or chemical crosslinks. *Journal of the Mechanical Behavior of Biomedical Materials* 2022; 133: 105343. <https://doi.org/10.1016/j.jmbbm.2022.105343>
- [9] Pragnere S, Courtial EJ, Dubreuil F, Errazuriz-Cerda E, Marquette C, Petiot E, Pailler-Mattei C. Tuning viscoelasticity and stiffness in bioprinted hydrogels for enhanced 3D cell culture: a multi-scale mechanical analysis. *Journal of the Mechanical Behavior of Biomedical Materials* 2024; 159: 106696. <https://doi.org/10.1016/j.jmbbm.2024.1056696>
- [10] Esteki MH, Alemrajabi AA, Hall CM, Sheridan GK, Azadi M, Moeendarbary E. A new framework for characterization of poroelastic materials using indentation, *Acta Biomaterialia* 2020; 102: 138-148. <https://doi.org/10.1016/j.actbio.2019.11.010>
- [11] Reinhards-Hervás C, Rico A, Rodríguez J. Crosslinker concentration effect on the poroviscoelastic relaxation of polyacrylamide hydrogels using depth-sensing indentation. *Polym Test* 2021; 100: 107265. <https://doi.org/10.1016/j.polymertesting.2021.107265>
- [12] Reinhards-Hervás, C. Hidrogeles de poliacrilamida: comportamiento mecánico y fractura. PhD thesis, 2024. Universidad Rey Juan Carlos.
- [13] Hertz H. Über die berührung fester elastischer körper (on the contact of elastic solids). *Journal für die reine und angewandte mathematic* 1881; 92: 156–171.
- [14] Johnson KL, Kendall K, Roberts A. Surface energy and the contact of elastic solids, *Proceedings of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences* 1971; 324 (1558): 301-313. <https://doi.org/10.1098/rspa.1971.0141>
- [15] Christensen R. *Theory of Viscoelasticity, An Introduction*. 2nd Edition - November 12, 2012.
- [16] C. Reinhards, A.J. Cano, A. Rico, A. Salazar, J. Rodríguez, Fracture resistance of polyacrylamide-alginate hydrogels. *Eng Fract Mech* 295 (2024): 109812. <https://doi.org/10.1016/j.engfracmech.2023.109812>
- [17] B. Davies, B. Martin, Numerical inversion of the laplace transform: a survey and comparison of methods, *Journal of Computational Physics* 33 [1] (1979): 1-32. [https://doi.org/10.1016/0021-9991\(79\)90025-1](https://doi.org/10.1016/0021-9991(79)90025-1)
- [18] C. Donolato, Analytical and numerical inversion of the Laplace–Carson transform by a differential method, *Computer Physics Communications* 145 (2002) 298–309. [https://doi.org/10.1016/S0010-4655\(02\)00281-3](https://doi.org/10.1016/S0010-4655(02)00281-3)
- [19] Yang Lai, Y. Hu, The relation between adhesion properties and network properties of hydrogels: A study based on an indentation adhesion method. *Mechanics of Materials* 159 (2021): 103877. <https://doi.org/10.1016/j.mechmat.2021.103877>
- [20] Y. Lai, D. He, Y. Hu, Indentation adhesion of hydrogels over a wide range of length and time scales. *Extreme Mechanics Letters* 31 (2019): 100540. <https://doi.org/10.1016/j.eml.2019.100540>
- [21] Z. Zhou, J. Lei, Z. Liu, Effect of water content on physical adhesion of polyacrylamide hydrogels. *Polymer* 246 (2022): 124730. <https://doi.org/10.1016/j.polymer.2022.124730>
- [22] X. Ni, Z. Yang, J. Li, Scaling Behavior of Fracture Properties of Tough Adhesive Hydrogels. *ACS Macro Lett.* 2021, 10, 180–185. <https://dx.doi.org/10.1021/acsmacrolett.0c00854>.
- [23] Y. Hu, Z. Suo, Viscoelasticity and poroelasticity in elastomeric gels. *Acta Mechanica Solida Sinica*, Vol. 25, No. 5, October, 2012. [https://doi.org/10.1016/S0894-9166\(12\)60039-1](https://doi.org/10.1016/S0894-9166(12)60039-1).