

基于多向冷冻法制备的高灵敏度柔性电容式压力传感器

王菲菲 彭海益 姚晓刚

High-sensitive flexible capacitive pressure sensor based on multi-directional freezing method

WANG Feifei, PENG Haiyi, YAO Xiaogang

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.13801/j.cnki.fhclxb.20220705.004>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

基于可膨胀微球/聚二甲基硅氧烷复合介电层的柔性电容式压力传感器

Flexible capacitive pressure sensor based on expandable microsphere/ polydimethylsiloxane composite dielectric layer
复合材料学报. 2021, 38(7): 2152–2161 <https://doi.org/10.13801/j.cnki.fhclxb.20201110.005>

基于膨胀石墨/聚二甲基硅氧烷复合材料的柔性压力传感器及加热除冰的应用

Flexible piezoresistive sensor and heating de-icing performance based on expanded graphite/polydimethylsiloxane composite
复合材料学报. 2021, 38(2): 461–469 <https://doi.org/10.13801/j.cnki.fhclxb.20200603.002>

新型三明治结构聚二甲基硅氧烷/聚偏氟乙烯-纳米Ag线/聚二甲基硅氧烷柔性应变传感器的制备与性能

Preparation and properties of a novel sandwich structure polydimethylsiloxane/polyvinylidene fluoride-Ag nanowires/polydimethylsiloxane flexible strain sensor
复合材料学报. 2020, 37(5): 1024–1032 <https://doi.org/10.13801/j.cnki.fhclxb.20190923.001>

柔性可拉伸硅橡胶@多壁碳纳米管/硅橡胶可穿戴应变传感纤维

Flexible stretchable and highly sensitive silicone rubber@multiwalled carbon nanotubes/silicone rubber wearable strain sensing fibers
复合材料学报. 2020, 37(8): 2045–2054 <https://doi.org/10.13801/j.cnki.fhclxb.20200103.002>

基于微结构的柔性压力传感器设计、制备及性能

Design, fabrication and performance of flexible pressure sensors based on microstructures
复合材料学报. 2021, 38(10): 3133–3150 <https://doi.org/10.13801/j.cnki.fhclxb.20210520.004>

基于空间限域强制组装法制备短切碳纤维-碳纳米管/聚二甲基硅氧烷导电复合材料性能

Properties of short carbon fiber-carbon nanotubes/polydimethylsiloxane conductive composites prepared by spatial confining forced network assembly method
复合材料学报. 2019, 36(11): 2552–2560 <https://doi.org/10.13801/j.cnki.fhclxb.20190320.002>



扫码关注微信公众号，获得更多资讯信息

DOI: 10.13801/j.cnki.fhclxb.20220705.004

基于多向冷冻法制备的高灵敏度柔性电容式
压力传感器



分享本文

王菲菲^{1,2}, 彭海益^{*1}, 姚晓刚^{*1}

(1. 中国科学院 上海硅酸盐研究所, 上海 200050; 2. 重庆理工大学 材料科学与工程学院, 重庆 400054)

摘要: 近年来柔性电容压力传感器因兼具优异的力学性能和良好的灵敏性, 广泛应用于医学诊断、电子皮肤、人工智能等重要领域。本文围绕提升电容式柔性传感器的灵敏度为目标, 设计了一种基于多向冷冻工艺构筑的三维交联网络结构多壁碳纳米管(MWCNTs)/聚二甲基硅烷(PDMS)海绵为介质层的柔性电容式压力传感器, 并对该传感器的制造过程、传感机制、响应性能和人体适用性进行表征。结果表明: 通过多向冷冻法可成功构建三维网络结构 MWCNTs/PDMS 海绵介质层, 且此介质层组装的柔性电容式压力传感器具有较高灵敏度($\sim 1.94\text{ kPa}^{-1}$)、低检测限($\sim 4\text{ Pa}$)、快响应时间($\sim 250\text{ ms}$)、良好稳定性及人体适用性。该柔性传感器在可穿戴电子产品中具有良好的应用前景。

关键词: 电容式柔性传感器; 多向冷冻法; 介质层; 多壁碳纳米管; 聚二甲基硅氧烷

中图分类号: TB332 **文献标志码:** A **文章编号:** 1000-3851(2023)05-2680-08

High-sensitive flexible capacitive pressure sensor based on
multi-directional freezing method

WANG Feifei^{1,2}, PENG Haiyi^{*1}, YAO Xiaogang^{*1}

(1. Shanghai Institute of Ceramics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China; 2. College of Materials Science and Engineering, Chongqing University of Technology, Chongqing 400054, China)

Abstract: In recent years, flexible capacitive pressure sensors have been widely used in medical diagnosis, electronic skin, artificial intelligence and other important fields due to their excellent mechanical properties and good sensitivity. In order to improve the sensitivity of the capacitive flexible sensor, a flexible capacitive pressure sensor with a three-dimensional network cross-linked multi-wall carbon nanotubes (MWCNTs)/polydimethylsilane (PDMS) sponge as the dielectric layer was designed based on multi-directional freezing process. The manufacturing process, sensing mechanism, response performance and human suitability of the sensor were characterized. The results show that: The three-dimensional network structure of MWCNTs/PDMS sponge dielectric layer is successfully constructed by multi-direction freezing method, and the flexible capacitive is assembled by this dielectric layer. It has high sensitivity ($\sim 1.94\text{ kPa}^{-1}$), low detection limit ($\sim 4\text{ Pa}$), fast response time ($\sim 250\text{ ms}$), good stability and human suitability. The flexible sensor has a good application prospect in wearable electronic products.

Keywords: capacitive flexible sensor; multidirectional freezing method; dielectric layer; MWCNTs; PDMS

近年来, 柔性压力传感器由于其在生物医学诊断^[1]、电子皮肤^[2]、柔性触摸显示屏^[3]等领域的广泛应用而备受关注。在各种传感机制的柔性压力传感器中(目前柔性压力传感器主要种类有压

阻式压力传感器^[4]、电容式压力传感器^[5]、压电式压力传感器^[6])。电容式压力传感器因其结构简单、制备成本低等特点成为研究的热点之一。此外, 传感器的主要评估指标包括灵敏度、测量范围、

收稿日期: 2022-05-05; 修回日期: 2022-06-23; 录用日期: 2022-06-26; 网络首发时间: 2022-07-07 13:05:59
网络首发地址: <https://doi.org/10.13801/j.cnki.fhclxb.20220705.004>
通信作者: 彭海益, 博士, 研究方向为高性能微波介质陶瓷、新型有机/无机功能复合材料及器件 E-mail: penghaiyi@mail.sic.ac.cn;
姚晓刚, 博士, 副研究员, 研究方向为高性能微波介质陶瓷、新型有机/无机功能复合材料及器件 E-mail: yaoxiaogang@mail.sic.ac.cn
引用格式: 王菲菲, 彭海益, 姚晓刚. 基于多向冷冻法制备的高灵敏度柔性电容式压力传感器 [J]. 复合材料学报, 2023, 40(5): 2680-2687.
WANG Feifei, PENG Haiyi, YAO Xiaogang. High-sensitive flexible capacitive pressure sensor based on multi-directional freezing method[J]. Acta Materiae Compositae Sinica, 2023, 40(5): 2680-2687(in Chinese).

响应性、迟滞性、分辨率等^[7-9]，其中灵敏度是最重要的参数，因此现阶段研究主要集中在提升电容式压力传感器的灵敏度。

提高柔性电容式传感器介质层的有效介电常数是一种提高传感器灵敏度的常用方法。此方法通常是在柔性介质层基底材料如聚偏氟乙烯(PVDF)^[10]、聚二甲基硅烷(PDMS)^[11]等中填充高介电陶瓷填料(TiO₂)^[12]和钛酸铜钙(CCTO)^[13]等)或导电填料(石墨烯氧化物(GO)^[14]、碳纳米管(CNTs)^[15]、银纳米线(AgNws)^[16]等)。另一种提高灵敏度的方法则是构建电容式传感器介质层的微观结构。微观结构包括三角形^[17]、微孔^[18]、金字塔^[19]等。此外，三维结构(3D)材料因其具有很好的柔韧性、高的孔隙率和大的比表面积，也可用于柔性电容式压力传感器介质层的制备^[20]。制备三维结构材料的主要方法包括光刻^[4]、3D打印^[21]、静电纺丝^[22]等。这些工艺虽然能将材料构造出各式各样的结构，但构图工艺复杂，且制造费用昂贵，限制了这些结构材料的普遍应用。现阶段模板法因具有可扩展、低成本和实用性强等优点，已经被大量应用于三维结构介质层的制作中。

模板法也分为多种类型，冰模板法作为模板法中的一种，是新型的微孔结构材料制备方法之一^[23]。其原理是将颗粒(陶瓷、金属、高分子)分散于水中制备成浆料。将浆料倒入模具中，并置于低温环境下。此时，水沿温度梯度方向定向结晶，冷冻产生的冰晶柱将胶体粒子挤压、排开至冰晶柱之间，在水完全凝固后，通过冷冻干燥的方式升华去除，最终获得空隙为冰晶直接复制品的样品。与普通模板法相比，冰模板法易将模板去除^[24]，具有简单性、高效性、普适性、环保性和适应面广等诸多优势。近些年发展中，传统的单向冷冻法，因只有一个垂直方向上的温度梯度，易造成冰晶在其冷冻基面水平方向上的生长不可控，产生结构缺陷，影响器件性能。相比之下，多向冷冻冰模板法可以通过同时构建多个方向上的温度梯度，灵活控制冷冻方向，实现多孔材料的可控制备，获得具有层状或网络交联状的骨架结构^[25-26]，从而大幅度提高材料力学性能，拓宽器件的应用范围。

本文针对制作成本和高灵敏度不能兼顾的问题，提出了一种制备多孔介质层电容式压力传感器的解决方案。利用液氮作为冷源，采用多向冷

冻冰模板法将多壁碳纳米管(MWCNTs)制作成3D交联网络结构骨架，并选择PDMS作为柔性基底浸渍到3D骨架，制备成具有高柔性的MWCNTs/PDMS海绵体，以此为介质层组装得电容式柔性压力传感器。同时，本文对该压力传感器的响应性能、人体适用性等进行了深入研究。

1 实验材料及方法

1.1 基于MWCNTs/PDMS海绵柔性力敏单元的压力传感器制备

采用多向冷冻的方法合成MWCNTs骨架：首先，将3 mg/mL MWCNTs加入0.5wt%羧甲基纤维素(CMC，阿拉丁集团)溶液中超声30 min至溶液均匀。再将溶液转移到自制的不锈钢模具中，并浸没于液氮中快速冷冻10 min。将冷冻的样品从模具中取出再0.1 Pa的压力下冷冻干燥48 h得到MWCNTs骨架。将骨架置于PDMS(道康宁184)稀释液中浸渍15 min，并于100℃下干燥30 min得到MWCNTs/PDMS多孔海绵介质层。将海绵介质层切成(Φ7 mm×5 mm)后作为传感器的力敏单元。随后将导电胶作为电极贴附在介质层的两侧，组装得到海绵柔性电容式压力传感器。具体制备流程如图1所示。

1.2 表征方法

用扫描电子显微镜(SEM，S-4800，HITACHI日本)对MWCNTs/PDMS复合材料的形貌进行了表征。利用阻抗分析仪(LCR，Keysight E4980 A/AL)测量材料在100 Hz~1 MHz下的介电常数。基于数显压力计(HP-5，智取仪器有限公司)建立了压力响应平台，用LCR监测了柔性电容压力传感器的电容响应特性。

2 结果与讨论

2.1 基于MWCNTs/PDMS海绵柔性力敏单元的压力传感器工作原理

柔性电容式压力传感器可以视为是一个平行板电容器^[27]，其电容变化主要受两极板相对距离和介质层有效介电常数影响。传感器的电容C可表示为

$$C = \frac{\epsilon_0 \epsilon_e A}{d} = \frac{(\epsilon_e + \Delta \epsilon_e) \epsilon_0 A}{d - \Delta d}$$
 (1)

其中： $\epsilon_0=8.85\times10^{-12}$ ，为真空的介电常数； ϵ_e 为材料的有效介电常数； $\Delta \epsilon_e$ 为有效介电常数的变化量；A为电极的重叠表面积；d为两极板间的相对距离； Δd 为两极板相对距离的变化。

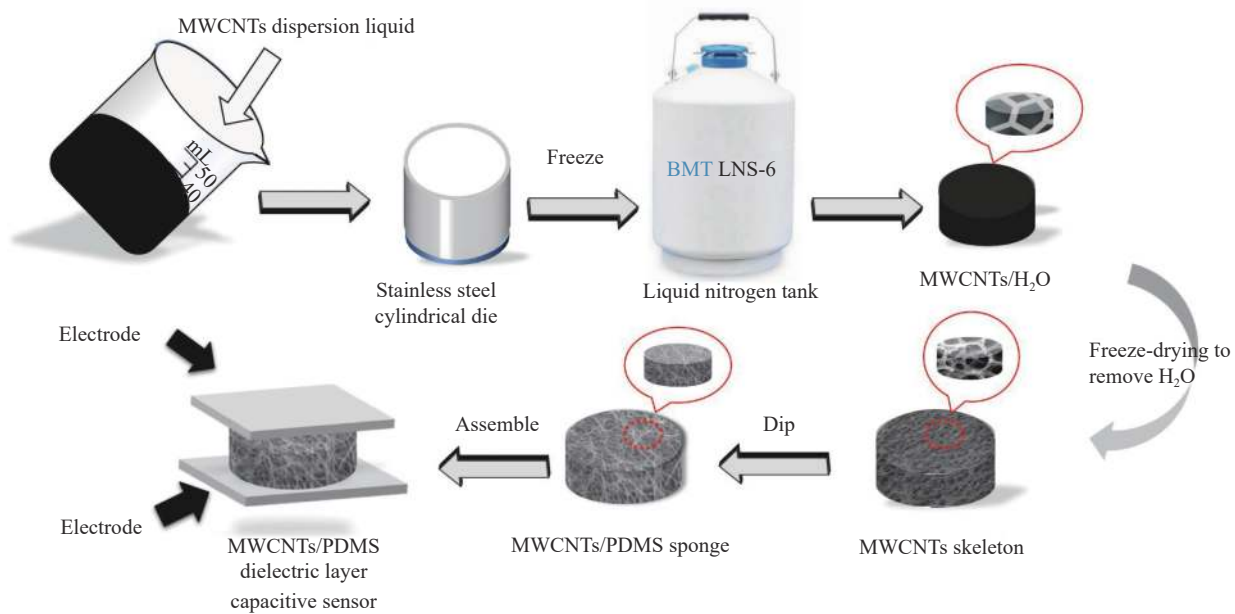


图 1 多壁碳纳米管 (MWCNTs)/聚二甲硅烷 (PDMS) 海绵介质层电容式压力传感器制备流程图

Fig. 1 Preparation of capacitive pressure sensor with multi-wall carbon nanotubes (MWCNTs)/polydimethylsilane (PDMS) spongy dielectric layer

电容式传感器的灵敏度定义为

$$S = d \left(\frac{\Delta C}{C_0} \right) = d \left[\left(\frac{\Delta \epsilon_e d}{\epsilon_e} + \Delta d \right) \frac{1}{d - \Delta d} \frac{1}{p} \right] \tag{2}$$

其中： S 表示灵敏度 (kPa^{-1})； ΔC 为电容的变化量； C_0 为不施加压力时的初始电容 (pF)； p 表示施加的压力 (kPa)。通过上式可以得知，电容式传感器的灵敏度提高主要得益于介质层有效介电常数的增加与两极板间相对距离的增加。

对于 MWCNTs/PDMS 海绵介质层来说，当施加外力时，介质层会发生变形，电容会发生变化。根据一般的 Lichtenecker 混合规则^[28]，该方程给出了有效相对介电常数 (ϵ_e) 公式为

$$\ln \epsilon_e = V_{\text{air}} \ln \epsilon_{\text{air}} + V_{\text{MWCNTs}} \ln \epsilon_{\text{MWCNTs}} + V_{\text{CMC}} \ln \epsilon_{\text{CMC}} + V_{\text{PDMS}} \ln \epsilon_{\text{PDMS}} \tag{3}$$

其中： V_{air} 、 V_{MWCNTs} 、 V_{CMC} 与 V_{PDMS} 分别为复合材料中气孔、MWCNTs、CMC 与 PDMS 所占体积比； ϵ_{air} 、 ϵ_{MWCNTs} 、 ϵ_{CMC} 与 ϵ_{PDMS} 分别为空气、MWCNTs、CMC 与 PDMS 的介电常数。由上式可知，当多孔结构被压缩并排出大量空气 ($V_{\text{air}}=0$) 时，剩余三相的体积分数大大增加时，材料的有效介电常数也将大大增加。因此电容传感器的灵敏度得到提高。

2.2 MWCNTs/PDMS 海绵柔性力敏单元的形貌表征
本实验采用 CMC 作为分散稳定剂。图 2 为 MWCNTs 粉末在 CMC 溶液中不同时间的分散稳

定情况。可以看到，经过 10 min、30 min、2 h、24 h 不同时长的观测，MWCNTs 在 CMC 溶液中依旧保持分散稳定状态且不沉降。经分析得知 CMC 具有含氧官能团 ($-\text{OH}$ 、 $-\text{COOH}$ 和 $=\text{O}$) 可以通过与碳纳米管基团形成氢键来阻止碳纳米管在水中的聚集^[28]，因此 MWCNTs 在 CMC 溶液中可稳定分散且不发生沉降。

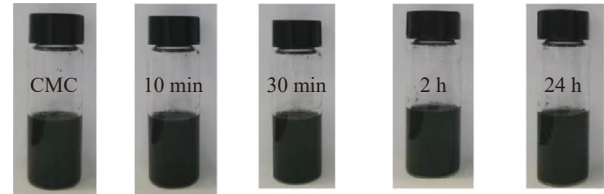


图 2 MWCNTs 在羧甲基纤维素 (CMC) 溶液中的分散情况
Fig. 2 Dispersion of MWCNTs in carboxymethyl cellulose (CMC) solution

图 3 为 MWCNTs 骨架的断面 SEM 图像。可以看出，MWCNTs 形成交联网络结构。实验采用液氮作为冷源，水快速结晶，温度快速地降低导致 MWCNTs 分子链的尺寸收缩并且 MWCNTs 的分布状态得到保持，因此得到相互交错结构。且随着 MWCNTs 含量增加，分子链的交缠就越容易，因此得到的海绵中的交联网络就越紧密，孔径随之减小。

2.3 基于 MWCNTs/PDMS 海绵柔性力敏单元的压力传感器性能检测

图 4 为 MWCNTs/PDMS 海绵介质层介电常数

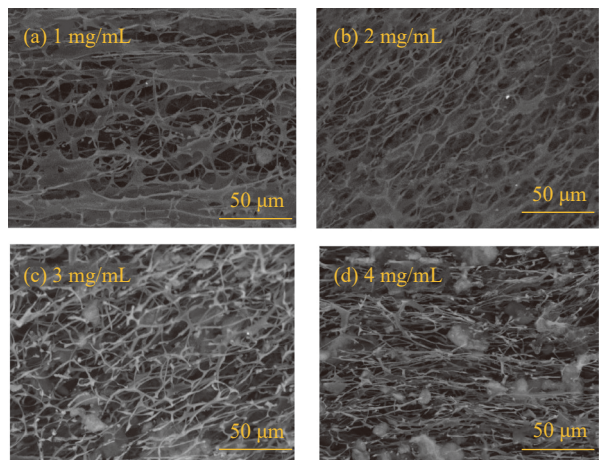


图3 不同浓度的MWCNTs骨架断面SEM图像
Fig. 3 SEM images of skeleton sections of MWCNTs at different concentrations

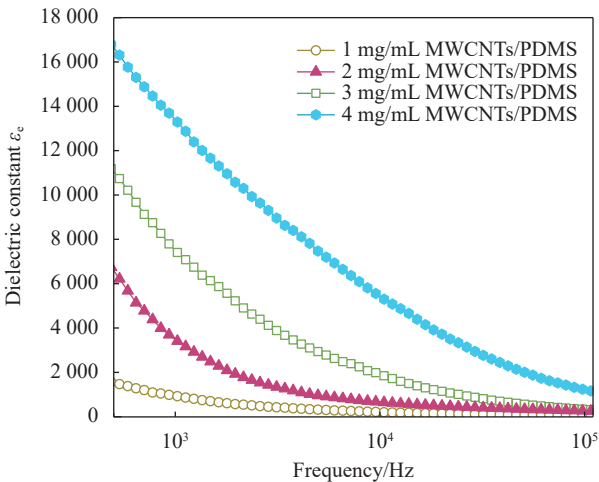
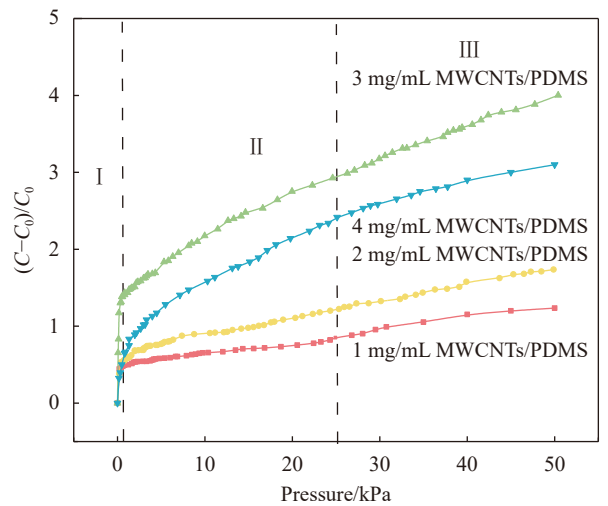


图4 不同MWCNTs添加量介质层介电常数随频率变化曲线
Fig. 4 Dielectric constant of the dielectric layer with different addition of MWCNTs varied with frequency

随频率变化曲线。介质层介电常数随着频率的增加而降低，而介电常数随着浓度的增加而明显增加。其中随频率降低归因于Maxwell-Wagner-Colum^[8]界面极化和空间电荷极化，此外介电常数将随着MWCNTs浓度的增加而单调增加。

图5为不同MWCNTs浓度介质层组装的传感器的压力-电容响应曲线。可以看出，由浓度为3 mg/mL MWCNTs制成的MWCNTs/PDMS海绵为介质层的传感器灵敏度最高，在0~1 kPa(区域 I)、1~25 kPa(区域 II)和25~50 kPa(区域 III)的灵敏度分别为1.94 kPa⁻¹、0.08 kPa⁻¹和0.04 kPa⁻¹。虽然加入较高含量的MWCNTs提高了介质层的介电常数，但此时MWCNTs海绵结构的密度增加，孔隙减少，导致介质层的刚性增加，使传感器的灵敏度

下降，因此添加3 mg/mL MWCNTs时传感器灵敏度最高。



C—Real-time capacitance value; C₀—Initial capacitance value
图5 MWCNTs/PDMS海绵介质层传感器的灵敏度
Fig. 5 Sensitivity of MWCNTs/PDMS sponge layer sensor

本文所制备传感器的灵敏度及压力响应范围相比于近年来的同型海绵传感器都有明显的提升。如Qiu等^[29]等用石墨烯纳米片/羧基功能化多壁碳纳米管/硅橡胶复合材料固定在聚氨酯(PU)海绵上，以此作为介质层组装成传感器，其灵敏度在0~5 kPa量程范围内为0.062 kPa⁻¹，本文传感器可在0~25 kPa范围灵敏度都达到0.04 kPa⁻¹，提高了灵敏度，还拓宽传感器量程。如与Chhetry等^[8]等研制的高介电PU海绵传电容式压力传感器比较，其传感器在0~1 kPa低压力范围内的灵敏度为0.73 kPa⁻¹，本文的传感器在0~1 kPa可达到1.94 kPa⁻¹，将传感器灵敏度提高近3倍。

图6(a)显示了海绵传感器在施加不同质量砝码200 mg(≈50 Pa)、500 mg(≈125 Pa)和1 000 mg(≈250 Pa)下的电容响应。结果表明，传感器具有良好的分辨率，对不同微小力加载呈现出不同的电容变化。且传感器加载响应时间小于0.25 s，卸载响应时间小于0.3 s(图6(b))，卸载时间变慢这归因于聚合物的黏弹性性质。通过不断降低对电容式传感器加载压力的大小进行电容响应测试，可以发现在小于4 Pa压力加载时电容响应不再出现，根据此可得出传感器的最低压力响应极限为4 Pa，如图6(c)所示。通过循环施加500 Pa的压力于传感器上，研究传感器的使用稳定性和耐久性。结果如图6(d)所示，即使在5 000次以上的加载和

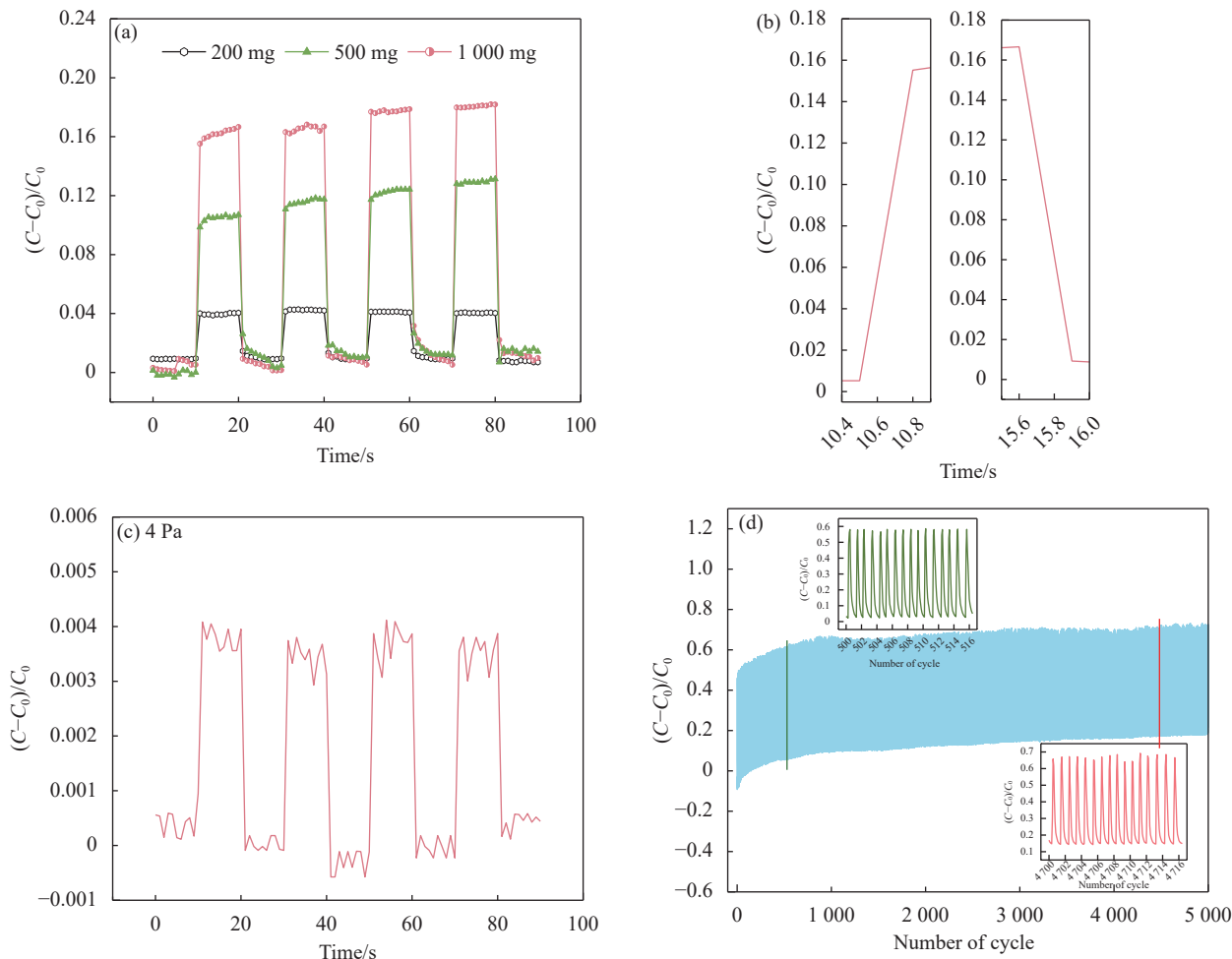


图6 MWCNTs/PDMS 传感器的响应性能: (a) 不同压力下的响应; (b) 响应时间; (c) 最低响应限度; (d) 循环稳定性

Fig. 6 MWCNTs/PDMS sensor response performance: (a) Response under different pressures; (b) Response time; (c) Minimum response limit; (d) Stability of the sensor

卸载循环后,传感器的相对电容变化前期有轻微上升,后续变化趋于稳定,整体上体现出传感器具有良好的稳定性。在实际应用中,高耐久性对传感器来说是非常重要的,这直接限定了传感器在应用中的使用寿命。因此本传感器具有良好的应用前景。

2.4 基于 MWCNTs/PDMS 海绵柔性力敏单元的压力传感器的应用研究

作为下一代传感设备,触觉传感器由于其先进的软机器人技术、人机交互、人工智能和电子皮肤上的潜在应用而受到广泛关注^[27,30]。海绵传感器作为触觉传感器可以应用在多个方面。首先,对传感器用手指进行按压,图 7(a) 为手指按压时传感器电容的相对变化情况。实验结果表明,电容峰值随手指压力的大小而实时变化。对传感器进行应用扩展实验。将传感器连接在鼠标上

(图 7(b)),用于检测鼠标在单击和双击时的电容变化。结果表明,随着鼠标点击力度不同,输出的信号峰值不同,双击鼠标,信号会连续输出,并且鼠标点击速度越快,得到的信号越密集。此外,通过抓放安装在杯子侧面的传感器来检测电容的变化,结果如图 7(c) 所示。随着杯中水质量的增加 (10.2 g、95.1 g、178.3 g),其电容响应幅值逐渐上升,且每次响应稳定性良好。以上测试结果均表明,传感器在受到外力作用的情况下,两极板间距及介质层有效介电常数都会发生变化,最终导致电容发生变化,因此可以作为触觉传感器使用。除了以上传感器在小压力范围内的应用外,也可将传感器安装在手套上,作为机器人的智能手套使用,用于分析抬起重物所需力量大小。

为了评估传感器监测小规模人类活动的能,用胶带将此传感器安装在人体的不同位置,手指

关节、肘关节、膝关节等，实时监测人体的运动状态。如图 8(a) 所示，将传感器用胶带固定在食指关节上，监测手指进行不同角度弯曲 (30°、45° 和 90°) 时电容的相对变化。指关节的弯曲对传感器有力地施加，导致传感器变形，当弯曲角度增大时，对传感器的挤压力也就越大，使电容器的两个电极板之间的距离不断减小，传感器所输出的电容值不断增加。另外，将传感器贴附在肘部

或膝盖上进行了类似的电容变化响应测试，结果如图 8(b)、图 8(c) 所示，此时传感器也可检测到清晰的电容响应信号，反映出肘关节或膝盖弯曲的实时运动状态。以上 3 种运动监测结果表明，多向冷冻法制备的 MWCNTs/PDMS 海绵介质层电容式柔性压力传感器具有良好的人体适用性，在未来的可穿戴电子产品和电子皮肤中具有重要的应用价值。

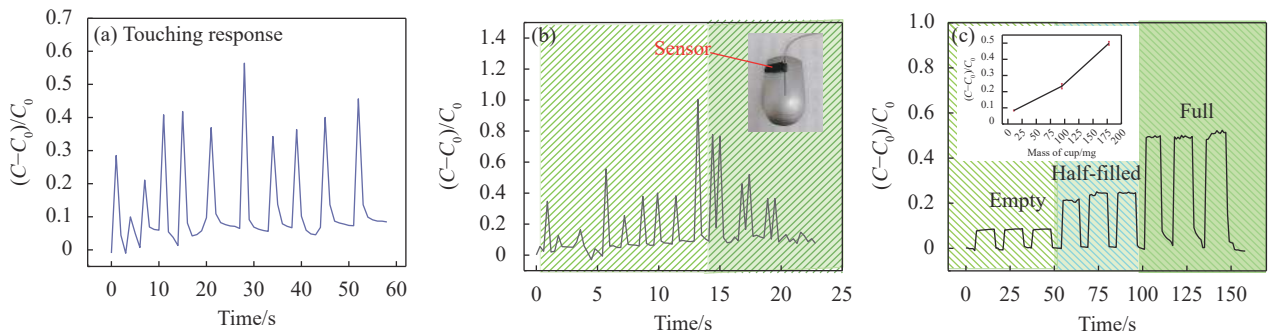


图 7 MWCNTs/PDMS 海绵传感器触觉传感性能: (a) 传感器的触摸响应; (b) 手指点击和按压鼠标上传感器响应; (c) 抓取不同质量纸杯的传感器响应

Fig. 7 Sensing performance of the MWCNTs/PDMS sensor in forms: (a) Touching response; (b) Finger clicking and pressing; (c) Grasping a paper cup filling with different mass

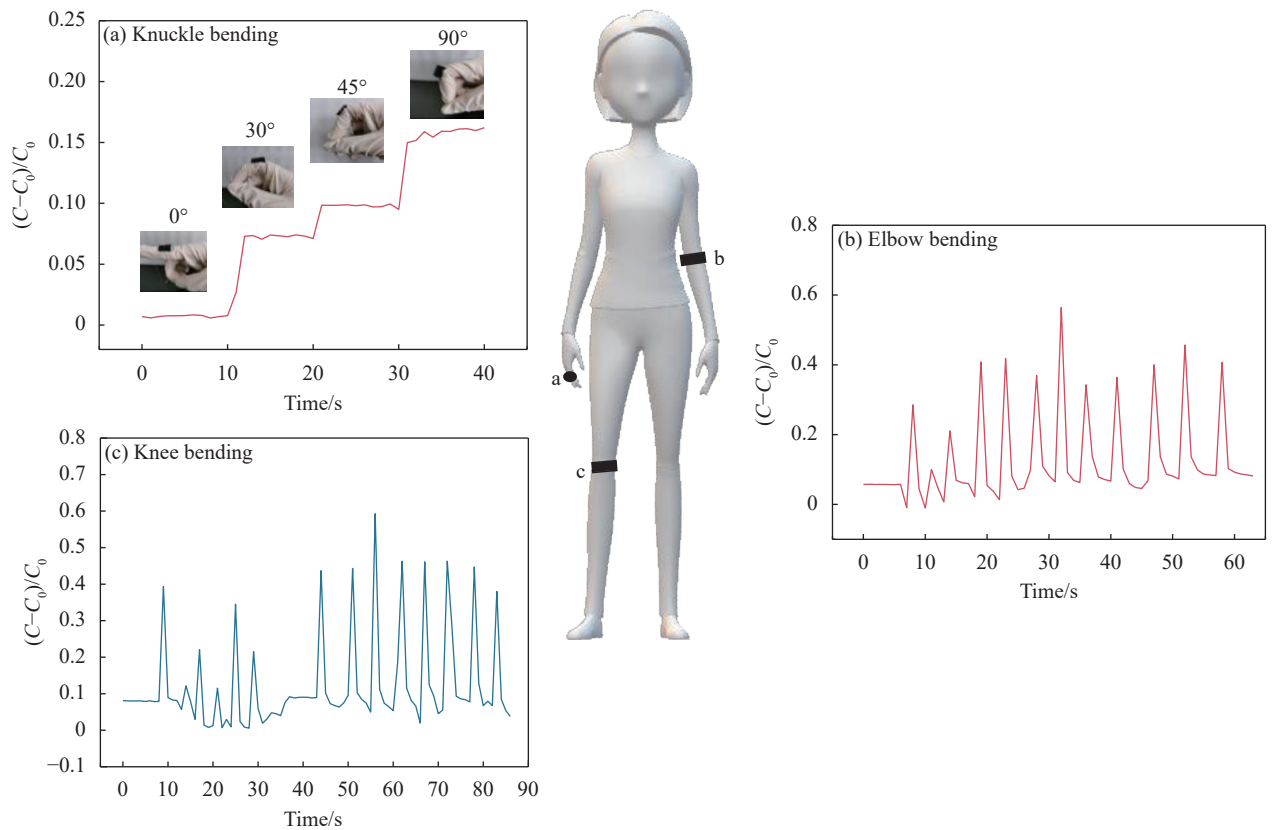


图 8 MWCNTs/PDMS 传感器的触觉传感性能: (a) 指关节弯曲; (b) 肘关节弯曲; (c) 膝盖弯曲

Fig. 8 Tactile sensing performance of the MWCNTs/PDMS sensor: (a) Knuckle bending; (b) Elbow bending; (c) Knee bending

3 结论

开发了一种基于多向冷冻冰模板方法制备的海绵型电容式柔性压力传感器。得出以下结论:

(1)通过对多向冷冻冰模板法制备的多壁碳纳米管(MWCNTs)海绵骨架进行SEM表征。实验结果表明,MWCNTs骨架具有高度交联的网络结构,且随着MWCNTs浓度的增加,交联网络的密度增大。并且在浸渍聚二甲基硅烷(PDMS)树脂之后,骨架具有回弹性,可作为传感器介质层用于电容式柔性传感器的组装;

(2)使用浓度为3 mg/mL MWCNTs制备的海绵为介质层的传感器,在0~1 kPa灵敏度最高为 1.94 kPa^{-1} ,且在1~25 kPa和25~50 kPa的灵敏度分别为 0.08 kPa^{-1} 和 0.04 kPa^{-1} 。传感器具有良好的分辨率及更低的检测极限(~4 Pa)、较快的响应时间(< 300 ms)和长久的使用寿命(> 5 000次),其应用范围最高可达50 kPa。

基于多向冷冻冰模板法制备的MWCNTs/PDMS海绵力敏单元具有优异的综合性能,可制成柔性压力传感器,实现触觉传感,以对人体运动进行监测。

参考文献:

- [1] KIM J, CHOU E F, LE J, et al. Soft wearable pressure sensors for beat-to-beat blood pressure monitoring[J]. *Advanced Healthcare Materials*, 2019, 8(13): 1900109.
- [2] NA C H, YUN K S. Capacitive force sensor with wide dynamic range using wrinkled micro structures as dielectric layer[J]. *Journal of Nanoscience and Nanotechnology*, 2019, 19(10): 6663-6667.
- [3] LI T, LUO H, QIN L, et al. Flexible capacitive tactile sensor based on micropatterned dielectric layer[J]. *Small*, 2016, 12(36): 5042-5048.
- [4] KIM Y, JANG S, OH J H. Fabrication of highly sensitive capacitive pressure sensors with porous PDMS dielectric layer via microwave treatment[J]. *Microelectronic Engineering*, 2019, 215: 111002.
- [5] LIU M, YU L Y, SINDHU V, et al. Incorporation of liquid fillers into silicone foams to enhance the electro-mechanical properties[J]. *International Journal of Smart and Nano Materials*, 2020, 11(1): 11-23.
- [6] CHEN Z, WANG Z, LI X, et al. Flexible piezoelectric-induced pressure sensors for static measurements based on nanowires/graphene heterostructures[J]. *ACS Nano*, 2017, 11(5): 4507-4513.
- [7] TRASE I, XU Z, CHEN Z, et al. Thin-film bidirectional transducers for haptic wearables[J]. *Sensors and Actuators A: Physical*, 2020, 303: 111655.
- [8] CHHETRY A, SHARMA S, YOON H, et al. Enhanced sensitivity of capacitive pressure and strain sensor based on $\text{CaCu}_3\text{Ti}_4\text{O}_{12}$ wrapped hybrid sponge for wearable applications[J]. *Advanced Functional Materials*, 2020, 30(31): 1910020.
- [9] 李瑞青, 李思明, 陈天骄, 等. 基于可膨胀微球/聚二甲基硅氧烷复合介电层的柔性电容式压力传感器[J]. *复合材料学报*, 2021, 38(7): 2152-2161.
- LI Ruiqing, LI Siming, CHEN Tianjiao, et al. Flexible capacitive pressure sensor based on expandable microsphere/polydimethylsiloxane composite dielectric layer[J]. *Acta Materiae Compositae Sinica*, 2021, 38(7): 2152-2161(in Chinese).
- [10] ZHAO Q, YANG L, CHEN K, et al. Ultra-high discharged energy density in PVDF based composites through inducing MnO_2 particles with optimized geometric structure[J]. *Nano Energy*, 2019, 65: 104007.
- [11] JUNG Y, LEE W, JUNG K, et al. A highly sensitive and flexible capacitive pressure sensor based on a porous three-dimensional PDMS/microsphere composite[J]. *Polymers*, 2020, 12(6): 1412.
- [12] FU M, ZHANG J, JIN Y, et al. A highly sensitive, reliable, and high-temperature-resistant flexible pressure sensor based on ceramic nanofibers[J]. *Advanced Science*, 2020, 7(17): 2000258.
- [13] PRAKASH B S, VARMA K B R. Dielectric behavior of CCTO/epoxy and Al-CCTO/epoxy composites[J]. *Composites Science and Technology*, 2007, 67(11-12): 2363-2368.
- [14] GE G, CAI Y, DONG Q, et al. A flexible pressure sensor based on rGO/polyaniline wrapped sponge with tunable sensitivity for human motion detection[J]. *Nanoscale*, 2018, 10(21): 10033-10040.
- [15] YOON S G, CHANG S T. Microfluidic capacitive sensors with ionic liquid electrodes and CNT/PDMS nanocomposites for simultaneous sensing of pressure and temperature[J]. *Journal of Materials Chemistry C*, 2017, 5(8): 1910-1919.
- [16] ZHANG Y L, GUO X, WANG W, et al. Highly sensitive, low hysteretic and flexible strain sensor based on ecoflex-AgNWs-MWCNTs flexible composite materials[J]. *Ieee Sensors Journal*, 2020, 20(23): 14118-14125.
- [17] MA L Q, SHUAI X T, HU Y G, et al. A highly sensitive and flexible capacitive pressure sensor based on a micro-arranged polydimethylsiloxane dielectric layer[J]. *Journal of Materials Chemistry C*, 2018, 6(48): 13232-13240.
- [18] ZHANG Y, LIU S, MIAO Y, et al. Highly stretchable and

- sensitive pressure sensor array based on icicle-shaped liquid metal film electrodes[J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2020, 12(25): 27961-27970.
- [19] LI M, LIANG J, WANG X, et al. Ultra-sensitive flexible pressure sensor based on microstructured electrode[J]. *Sensors*, 2020, 20(2): 371.
- [20] WEI P Q, GUO X L, QIU X B, et al. Flexible capacitive pressure sensor with sensitivity and linear measuring range enhanced based on porous composite of carbon conductive paste and polydimethylsiloxane[J]. *Nanotechnology*, 2019, 30(45): 455501.
- [21] HAN T, NAG A, SIMORANGKIR R B V B, et al. Multifunctional flexible sensor based on laser-induced graphene[J]. *Sensors*, 2019, 19(16): 3477.
- [22] JIN T, PAN Y, JEON G J, et al. Ultrathin nanofibrous membranes containing insulating microbeads for highly sensitive flexible pressure sensors[J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2020, 12(11): 13348-13359.
- [23] SUN X X, WANG K P, ZHANG B X, et al. Hierarchically porous cellulose monolith prepared by combination of ice-template method and non-solvent-induced phase separation method[J]. *Chemistry Letters*, 2017, 46(6): 792-794.
- [24] DEVILLE S, MEILLE S, SEUBA J. A meta-analysis of the mechanical properties of ice-templated ceramics and metals[J]. *Science & Technology of Advanced Materials*, 2015, 16(4): 43501.
- [25] XU Z, ZHANG Y, LI P. Strong, conductive, lightweight, neat graphene aerogel fibers with aligned pores[J]. *ACS Nano*, 2012, 6(8): 7103-7113.
- [26] LU Y, SUN Q, YANG D, et al. Fabrication of mesoporous lignocellulose aerogels from wood via cyclic liquid nitrogen freezing-thawing in ionic liquid solution[J]. *Journal of Materials Chemistry*, 2012, 22(27): 13548-13557.
- [27] HE Z, CHEN W, LIANG B, et al. Capacitive pressure sensor with high sensitivity and fast response to dynamic interaction based on graphene and porous nylon networks[J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2018, 10(15): 12816-12823.
- [28] MIAO P, WANG J, ZHANG C, et al. Graphene nanostructure-based tactile sensors for electronic skin applications[J]. *Nano-Micro Letters*, 2019, 11(1): 1-37.
- [29] QIU J, GUO X, CHU R, et al. Rapid-response, low detection limit, and high-sensitivity capacitive flexible tactile sensor based on three-dimensional porous dielectric layer for wearable electronic skin[J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2019, 11(43): 40716-40725.
- [30] KWON D, LEE T I, SHIM J, et al. Highly sensitive, flexible, and wearable pressure sensor based on a giant piezocapacitive effect of three-dimensional microporous elastomeric dielectric layer[J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2016, 8(26): 16912-16922.