

• 综述 •

# 高分子基柔性电容式压力传感材料的研究进展

李岚霆<sup>1</sup>, 陈建闻<sup>2</sup>, 赵桂艳<sup>1\*</sup>, 韩媛媛<sup>1</sup>, 朱雨田<sup>2\*</sup>

(1. 辽宁石油化工大学石油化工学院, 抚顺 113001; 2. 杭州师范大学材料与化学化工学院 有机硅化学及材料技术教育部重点实验室 浙江省有机硅材料技术重点实验室, 杭州 311121)

**摘要:** 高分子基柔性电容式压力传感器具有机械柔韧性、高灵敏度、优异的可重复性、功耗低、空间分辨率高等优点, 在可穿戴电子器件、电子皮肤等领域的应用越来越广泛, 引起了人们的广泛关注。本文首先对不同传感机理的压力传感材料进行简要介绍, 然后重点论述了高分子基柔性电容式压力传感材料的研究进展, 并对其传感机理、优缺点以及优化策略进行了详细讨论。最后, 本论文还对电容式压力传感材料目前存在的问题及未来发展趋势进行了展望。

**关键词:** 高分子基柔性传感材料; 电容式压力传感; 离子式压力传感; 传感机理; 可穿戴电子器件

## Progress in Polymer-based Flexible Capacitive Pressure Sensing Materials

LI Lan-ting<sup>1</sup>, CHEN Jian-wen<sup>2</sup>, ZHAO Gui-yan<sup>1\*</sup>, HAN Yuan-yuan<sup>1</sup>, ZHU Yu-tian<sup>2\*</sup>

(1. School of Petrochemical Engineering, Liaoning Petrochemical University, Fushun 113001, China;  
2. College of Material, Chemistry and Chemical Engineering, Key Laboratory of Organosilicon Chemistry and Material Technology, Ministry of Education, Key Laboratory of Organosilicon Material Technology, Hangzhou Normal University, Hangzhou 311121, China)

**Abstract:** Attributed to the advantages of mechanical flexibility, high sensitivity, excellent repeatability, low power consumption, and high spatial resolution, polymer-based flexible capacitive pressure sensors have attracted widespread attention, which are widely used in wearable electronic devices, electronic skin, and other fields. In this review, we briefly introduce various pressure sensing materials with different sensing mechanisms. Subsequently, we systemically summarize the recent progress of polymer-based flexible capacitive pressure sensing materials, including their sensing mechanisms, advantages and disadvantages as well as optimization strategies. Finally, the current challenges and future development trends of capacitive pressure sensing materials are also discussed in this paper.

**Keywords:** Polymer-based flexible sensing materials; Capacitive pressure sensor; Iontronic pressure sensor; Sensing mechanism; Wearable electronics

近年来, 随着健康监测、电子皮肤以及可穿戴电子器件等领域的迅速发展, 作为其核心传感部件的高分子基柔性传感器因其可对各种外界刺激进行实时监测, 受到了人们的广泛关注<sup>[1~4]</sup>。高分子基柔性传感材料是通过在天然或合成高分子柔

性基体中添加功能填料复合制备而成的, 可将外界信号, 如压力、温度、湿度等, 转换为仪器可测量的电阻、电压、电容、电流等电信号, 从而对外界环境信息进行实时监测。

目前存在的高分子基柔性压力传感材料, 根

收稿: 2022-11-22; 修回: 2023-01-15

基金项目: 国家自然科学基金 (52273070, 52073078)

\* 通讯联系人: 赵桂艳 (1979-), 女, 副教授, 主要从事聚合物共混改性研究。E-mail: gyzhao@lnpu.edu.cn;  
朱雨田 (1979-), 男, 教授, 主要从事高分子材料的结构和性能研究。E-mail: ytzhu@hznu.edu.cn

doi:10.14028/j.cnki.1003-3726.2023.10.005

据检测外界压力时不同的传感机理,主要分为以下四种:电阻式压力传感材料、压电式压力传感材料、摩擦电式压力传感材料以及电容式压力传感材料。本文在对其他压力传感材料进行简要介绍后,着重讨论具有高灵敏、良好重复性与稳定性的电容式压力传感材料的研究进展,并对电容式压力传感材料进行总结与展望。

## 1 电阻式压力传感材料

传统的电阻式压力传感材料是在绝缘的高分子弹性基体材料中添加导电填料,使其兼顾高分子基体可压缩性和填料导电性的一类复合材料<sup>[5~11]</sup>。在受到外界压力刺激时,材料由于发生压缩形变,内部的导电通路增加、输出电阻数值减小,从而将压力刺激转换为电阻信号进行检测。

最初制备的电阻式压力传感材料一般是经过简单混合填料后得到的薄膜状材料,其可压缩性较差,因此在应用中存在灵敏度低,响应时间慢并且滞后性严重的问题。随后,研究人员发现可以通过在传感材料的表面引入微纳结构来解决上述问题。例如,Zhang 等<sup>[12]</sup>通过在聚二甲硅氧烷

(PDMS)薄膜表面引入微锥阵列,并涂覆还原氧化石墨烯(rGO)得到粗糙结构,然后与叉指电极组装制备得到柔性压力传感器。该电阻式压力传感器在 0~300 kPa 压力检测范围内灵敏度高达  $133.003 \text{ kPa}^{-1}$ ,且响应快速(27 ms),可用于监测微弱的生理信号,如心跳以及声带振动等,为医疗监测设备以及运动监控器件领域的发展提供了有效策略。

虽然微结构的设计策略在一定程度上优化了电阻式压力传感材料的灵敏度、响应时间以及检测范围等性能,但是结构设计的有限性和转印过程的复杂性还是限制了其发展。科研人员发现,相对于通过复杂的模板转印引入微结构的设计策略,将高分子传感材料制备成具有多孔结构的薄膜也可以在一定程度上提高压力传感性能。例如,Yin 等<sup>[13]</sup>将 MXene 与聚苯胺 (polyaniline, PANI) 超声混合均匀,使其与聚苯胺交联成键,并通过真空抽滤形成薄膜,然后在水合肼中经过热处理,制备得到具有多孔泡沫结构的电阻式压力传感器,制备流程如图 1 所示。得益于多孔泡沫结构,该传感器具有  $690.91 \text{ kPa}^{-1}$  的高灵敏度、优

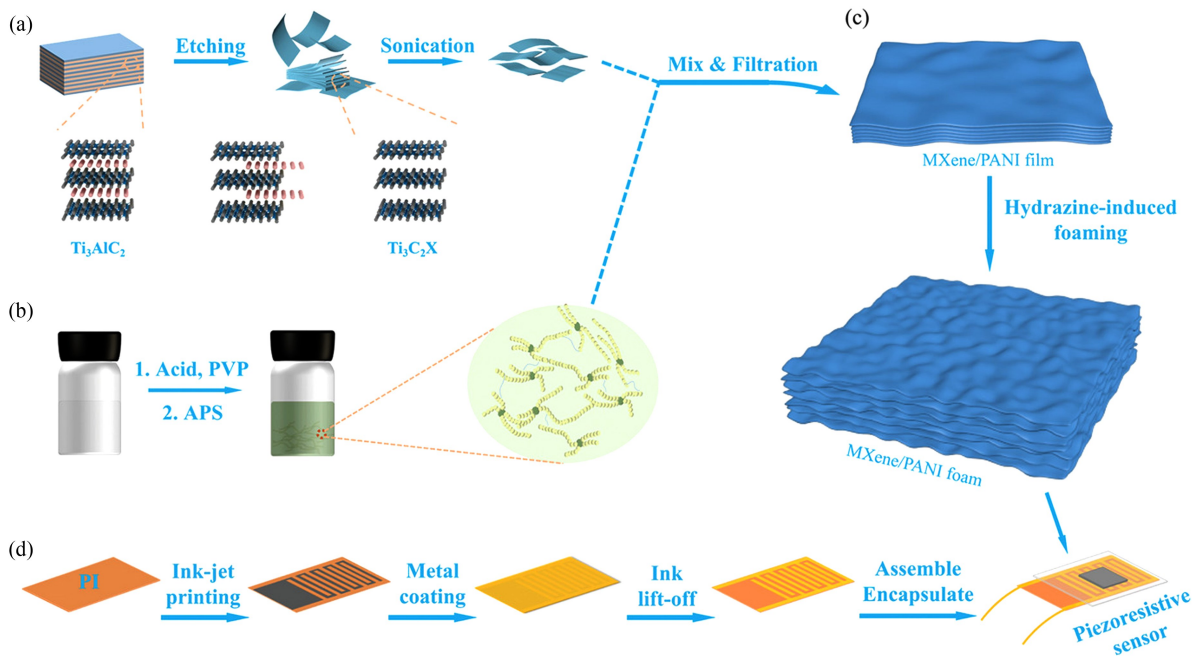


图 1 基于 MXene/PANI 泡沫制备具有 3D 多孔结构的压阻式传感器:(a)MXene 胶体溶液的制备过程;(b)聚苯胺溶液的合成过程;(c)MXene/PANI 泡沫的制备工艺;(d)叉指电极的制备及传感器的组装过程<sup>[13]</sup>(2012 Wiley-VCH GmbH 版权许可)

**Figure 1** Design and assembly of piezoresistive sensor based on MXene/PANI foam with 3D porous structure. (a) The synthesis process of MXene ( $\text{Ti}_3\text{C}_2\text{T}_x$ ) colloidal solution; (b) Synthesis procedures of PANI solution; (c) Preparation process of MXene/PANI foam; (d) The fabrication steps of interdigital electrode and sensor assembly (Reprinted with permission from Ref. [13]; Copyright 2012 Wiley-VCH GmbH)

良的耐疲劳性能(10000 次压缩循环)以及相对快的响应时间和恢复时间(106 ms/95 ms)。另外,通过演示实验,表明该传感器可以用来检测微弱的生理活动,如脉搏等,并且有可能应用于便携式传感设备,为可穿戴电子设备提供了新思路。相比多孔泡沫而言,还有另外一种更为简易地引入多孔结构的策略——通过制备纺丝薄膜来优化性能。Liu 等<sup>[14]</sup>利用静电逐层组装的方法在高弹的 Venetian 织物上涂覆水性聚氨酯(WPU)和碳纳米管(CNT)制备电阻式传感层,然后通过缝纫的方式与印刷导电碳油墨的柔性织物基电极组装在一起得到全织物基电阻式压力传感器。经过系统测试,该传感器具有  $3.42 \text{ kPa}^{-1}$  的压力灵敏度, 32 ms/4 ms 的快速响应/恢复时间,10000 次的循环耐久性与抗弯折性,以及可以耐受化学试剂清洗的特性,并且该传感器可以缝制在不同的衣物上来检测关节弯曲、肌肉活动以及物体抓取等生理活动,为智能服装等领域的发展提供了新的机会。

尽管电阻式压力传感材料在制备过程中具有简单高效的优点,在应用时却存在固有缺陷,如电阻变化和施加的压力之间的非线性响应会导致压力增加时传感器的灵敏度大幅降低。此外,在动态测量和噪声环境中,电阻式测量原理所产生的热噪声会对最终信号质量产生实质性影响。

## 2 压电式压力传感材料

压电式压力传感材料是利用某些具有偶极矩特性的晶体材料在受到外界压力刺激后诱导晶体结构发生机械变形,导致材料内部电子发生极化,在材料两侧内表面发生电荷聚集形成电压的一类材料,压力移除后又恢复初始状态,从而能够将外界压力信号转换为电压信号进行检测。最初压电式压力传感领域主要利用陶瓷、石英以及锆钛酸铅(PZT)等无机材料,相对而言,高分子压电传感材料通常拥有较低的压电系数,而其所具有的低模量和优良的生物相容性使其在可穿戴电子器件领域有着更大的优势。

传统的高分子压电传感材料主要是聚偏氟乙烯(poly(vinylidene fluoride), PVDF)、聚偏氟乙烯三氟乙烯共聚物(poly(vinylidene fluoride trifluoroethylene) copolymer, P(VDF-TrFE))以及氟化乙烯丙烯共聚物(fluorinated ethylene propylene copolymer, FEP)等。为了提高压电输出

性能,通过将无机压电材料与有机高分子基体复合,制备出高分子基柔性压电传感材料。例如,Yu 等<sup>[15]</sup>利用多力混合技术和硫化工艺,将钛酸钡( $\text{BaTiO}_3$ )、聚丙烯腈(polyacrylonitrile, PAN)和生硅胶均匀混合热压后,制备出一体化、可拉伸、自供电的高灵敏度压电式压力传感材料。通过利用  $\text{BaTiO}_3$  和 PAN 对复合材料压电性的协同增强作用,使其拥有  $0.93 \text{ V}/10^4 \text{ Pa}$  的高灵敏度( $10 \sim 200 \text{ kPa}$ ),高达  $900 \text{ kPa}$  的宽测量范围以及优异的循环耐久性(10000 次),并且具有线性度好、响应时间快、频率响应稳定的优点,可用来检测日常生活中的一些基础生理活动,如关节弯曲、走路跑步等。由于具有优异的传感性能和力学性能,该压电式压力传感材料在可穿戴电子器件领域具有极大的应用潜力。

此外,也可以通过设计引入多孔结构来提高压电输出性能。例如,Jiang 等<sup>[16]</sup>利用盐模板法将 PVDF、 $\text{BaTiO}_3$  和氯化钠( $\text{NaCl}$ )共混后,析出  $\text{NaCl}$ ,设计出了具有分层多孔结构的泡沫材料。通过  $\text{BaTiO}_3$  和孔隙形成的带电驻极体的协同作用,对材料的压电和铁电性能进行增强,使该压电传感材料的性能得以提高,拓宽了在可穿戴电子器件领域的应用,提出了分层纳米多孔材料可以提高压电输出性能的新观点。

最近,为了适应绿色可降解的发展理念,Sohn 等<sup>[17]</sup>提出了利用具有生物可降解性的纳米纤维素静电纺丝膜来设计制备高分子基柔性压电传感材料。利用溶液诱导极化的原理,将丝素纳米纤维膜用乙醇处理后,提高了  $\beta$  相结晶的比例,促使输出电压提高了 14 倍(7 V),并通过演示实验证明,该装置不仅可以作为一个能量收集设备,还可以作为传感器检测人体关节弯曲的行为,为高分子压电传感材料的设计制备提出了新思路。

然而,基于传感检测时的工作机理,尽管压电式压力传感器可以对动态压力变化具有极高的灵敏度,但并不能在负载静态压力时产生刺激响应,从而限制了其在绝对压力检测领域的应用。

## 3 摩擦电式压力传感材料

自从 2012 年王中林团队<sup>[18]</sup>首次提出摩擦电纳米发电机的概念后,近几年科学家们又开始将其应用于压力传感领域。摩擦电纳米发电机的工作原理是利用接触带电效应和静电感应效应来实

现的,当在外界压力作用下,两种极性相反的摩擦层材料接触后,其表面会发生电荷剥夺,从而在表面分别带有等量的正负两种电荷。在外力移除后,正负摩擦层分离的过程中,由于存在静电感应效应,外电路中发生电子流动,在摩擦层背面的电极上形成感应电荷,来平衡正负摩擦层表面带有的电荷;再次受到压力作用的接触过程中,电子又会反向流动,回到初始状态。

虽然任何两种不同的材料都可以产生摩擦起电现象,但是由于电负性的差异,可供选择的具有较高输出性能的材料却很少。为了进一步提高摩擦电输出性能,一般通过添加一些填料来调节正负摩擦层材料的电负性差值。例如,Zhao 等<sup>[19]</sup>将离子液体涂覆的单壁碳纳米管(single-walled carbon nanotube, SWCNT)嵌入到 PDMS 中用作摩擦正极材料,通过调节配比发现,当 SWCNT 含量为 0.1% 时输出性能达到最佳。因此可以认为,SWCNT 具有调节材料电负性的能力,通过添加 SWCNT 使 PDMS 的电负性向更正一侧转移,从而提高了正负极摩擦材料的电负性差值;同理,离子液体的添加进一步增强了这种效果,使该摩擦电纳米发电机具有更高的输出性能。

此外,在摩擦层表面引入微纳结构来改变有效接触面积也可以改善输出性能。Feng 等<sup>[20]</sup>采用无掩模直接图像光刻法在聚氨酯(PU)表面引入微锥结构来提高有效带电接触面积,然后经过三氯(1H,1H,2H,2H-全氟辛基)硅烷蒸汽化学修饰后,微观表面进一步粗糙化,有效带电面积进一步增加,同时氟化作用使正负摩擦层材料电负性差值增加,从而提高摩擦电输出性能。

最近,为了摆脱传统金属电极刚性大、生物相容性差的缺点,高分子基柔性电极的出现为摩擦电纳米发电机领域提供了新的理念。Luo 等<sup>[21]</sup>制备了全物理交联的 PVA/P(AM-co-AA)-Fe<sup>3+</sup> 双网络水凝胶(dual network, DN 凝胶)。独特的 DN 凝胶结构赋予了优异的力学性能,在应用于摩擦电测试时,将 DN 凝胶封装在 Ecoflex 中充当电极,利用聚酰亚胺(polyimide, PI)与 Ecoflex 的摩擦带电效应,产生优异的电压输出,为电子皮肤以及柔性可穿戴元器件领域提供了新的策略。

与压电传感材料类似,受限于工作原理,摩擦电式压力传感器也只能对动态压力变化实现高灵敏检测,不能检测任何静态机械负载,因此限制了

在静态压力检测领域的应用。

## 4 电容式压力传感材料

相较于电阻式压力传感器灵敏度低、响应时间慢且滞后,压电式与摩擦电式压力传感器无法检测静态压力的缺陷,电容式压力传感器因具有机械灵活性、高灵敏度、优异的可重复性、功耗低、空间分辨率高等优点而备受关注<sup>[22]</sup>。

### 4.1 传统电容式压力传感材料

传统的电容式压力传感器一般由绝缘的介电层和两个平行板电极组装而成,在受到外界压力刺激时,通过改变平行板电极的间距,使电容值发生变化来检测压力。电容值可以由等式(1)计算:

$$C = k\epsilon_0 \frac{A}{d} \quad (1)$$

其中, $C$  为电容, $k$  为介电常数, $\epsilon_0$  为真空介电常数, $A$  为接触面积, $d$  为平行板电极之间的距离。假设介电层为线性弹性的介质材料,电容式压力传感器的初始灵敏度可推导为:

$$S = \frac{d\left(\frac{\Delta C}{C_0}\right)}{dP} = \frac{1}{k_0} \left( \frac{k}{E} + \frac{\partial k}{\partial P} \right) \quad (2)$$

式中  $P$  是施加的压力, $E$  是介质材料的压缩模量。该公式中,只有当施加的压力远远小于介质材料的模量时,即当  $P \ll E$ ,灵敏度等式成立。从等式(2)可以明显看出,提高灵敏度可以通过使用软介电层材料来降低压缩模量  $E$  和利用介电伸缩效应,即提高介电常数  $k$  两种方式来实现。

为了提高电容式压力传感器的灵敏度,可以通过引入多孔结构降低材料的弹性模量来实现。Wan 等<sup>[23]</sup>利用冷冻干燥的方法设计了具有低模量和高介电常数的氧化石墨烯(graphene oxide, GO)泡沫材料作为介电层,将 GO 还原后得到的石墨烯(graphene, Gr)作为电极制备电容式压力传感器。经过测试,基于 GO 泡沫材料的传感器可以在 100 ms 的时间内快速检测出 0.24 Pa 的微小压力,并且具备 0.8 kPa<sup>-1</sup> 的高灵敏度。除此以外,该传感器还具有远小于 1 s 的快速恢复时间以及超过 1000 次的耐负载和耐弯曲测试,该泡沫型电容式压力传感器为检测微小压力的应用场景提供了新策略。此外,Hwang 团队<sup>[24]</sup>为了获得高灵敏度和宽测量范围,利用粒子模板法和乳液模板法,制备了具有分层多孔结构的 PDMS 介电层来应用于电容式压力传感器。通过使用糖颗粒和油

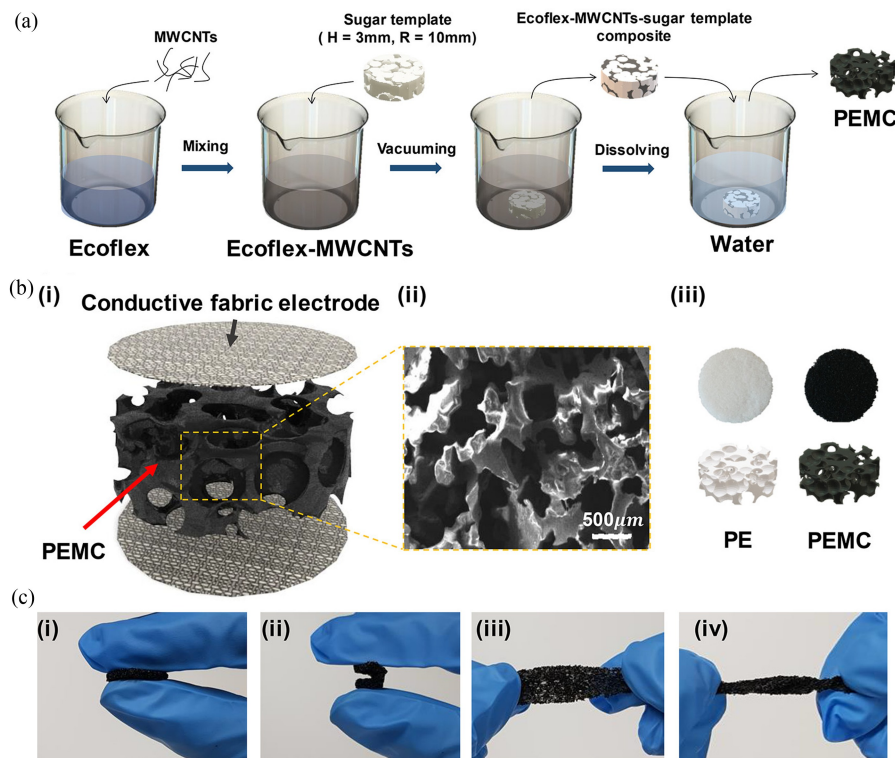


**图 2** PEMC 基多孔材料与导电织物电极组装的高性能电容式压力传感器:(a)PEMC 制备工艺示意图;(b-i)利用导电织物电极的 PEMC 基压力传感器示意图;(b-ii)PEMC 结构的 SEM 图;(b-iii)PE(白色)和 PEMC(黑色)的照片(俯视图)和 3D 模型图;(c)能够(i)压缩,(ii)弯曲,(iii)拉伸和(iv)拉伸-扭转耦合的 PEMC 结构<sup>[25]</sup>(2019 American Chemical Society 版权许可)

**Figure 2** The PEMC-based high performance capacitive pressure sensor using conductive fabric electrodes. (a) Schematic illustration of the PEMC fabrication process; (b-i) schematic diagram of the PEMC-based pressure sensor using conductive fabric electrodes; (b-ii) SEM image of the PEMC structure; (b-iii) Photographic images (top view) and 3D modeling images of PE (white) and the PEMC (dark); (c) PEMC structures capable of (i) compression, (ii) bending, (iii) stretching, and (iv) stretch-twist coupling (Reprinted with permission from Ref. [25]; Copyright 2019 American Chemical Society)

包水乳液同时构造宏观和微观孔径,使其相比于实心 PDMS 介电层灵敏度提高了 22.5 倍,并且具有 400 kPa 的宽测量范围。同样地,Choi 等<sup>[25]</sup>利用糖模板法制备出具有多孔结构的 Ecoflex-多壁碳纳米管复合材料(porous ecoflex multi-walled carbon nanotubes,PEMC)作为介电层的电容式压力传感器,并且 PEMC 结构表现出优异的形变能力和顺应性,展现了在可穿戴电子设备上的应用,传感器结构如图 2 所示。利用多孔弹性体和 CNT 填料渗透的协同作用,该电容式压力传感器在动态加载下具有高灵敏度(在 0~2 kPa 和 2~10 kPa 压力范围内的灵敏度分别为  $6.42 \text{ kPa}^{-1}$  和  $1.72 \text{ kPa}^{-1}$ ),并具有长期稳定、低迟滞和快速响应等特点,该工作为实现低压力范围下的精确探测和实时监测提供了一种实用的方案。

通过在介电层或电极表面引入凸起结构,使电容式压力传感器在外部压力作用下,电极接触面积变化显著增加,电极间距离大幅缩短,也可以提高传感器的灵敏度。例如,利用胶体自组装和二次转印的方法,Xiong 等<sup>[26]</sup>在 PDMS 表面引入半球状微结构阵列并经过喷金处理后制备电极,然后与旋涂制备的超薄 PVDF 薄膜组装得到电容式压力传感器。该传感器在低于 130 Pa 的压力范围内具有  $30.2 \text{ kPa}^{-1}$  的高灵敏度,并且还有 0.7 Pa 的低检测下限和 10 万次的高循环耐久性。另外, Lee 等<sup>[27]</sup>提出了一种利用纸张固有的表面粗糙度来制备电容式压力传感器的新概念。如图 3 所示,利用 8B 铅笔在纸张上涂覆引入石墨制备电极后,浇铸 PDMS 薄膜来充当介电层,制备平行板电极,然后将两个平行板电极叠加后组装得到纸基

电容式压力传感器。通过引入纸张表面微结构,纸基电容式压力传感器具有  $0.62 \text{ kPa}^{-1}$  的高灵敏度、极快的响应和恢复时间、低检测极限 ( $6 \text{ Pa}$ ) 和良好的循环稳定性。此外,受人类皮肤毛发的启发,Zhou 等<sup>[28]</sup>通过对掺杂羰基铁颗粒的 PDMS 在磁场作用下进行固化,设计了一种具有毛发状微纤毛阵列结构的介电层来制备电容式压力传感器。经过结构优化,证明了微纤毛阵列结构具有优异的柔韧性、稳定性和可重复压缩性,得到的压力传感器具有  $0.28 \text{ kPa}^{-1}$  的高灵敏度 ( $0 \sim 10 \text{ kPa}$ ),高达  $200 \text{ kPa}$  的宽检测范围以及  $2 \text{ Pa}$  的低检测下限。基于该方法设计的电容式压力传感器,制造过程简单、经济、可控,且传感能力强,在可穿戴电子设备、人体健康监测、人机界面交互等领域有巨大的应用潜力。

为了更好地应用于可穿戴电子设备领域,科研人员提出了利用纤维膜全微孔结构来制备电容式压力传感器的新思路。例如,Chen 等<sup>[29]</sup>利用钯离子( $\text{Pd}^{2+}$ )/聚丙烯腈(PAN)溶液静电纺丝后通过化学镀银的方法制备了柔性电极,与尼龙网组装得到全微孔结构电容式压力传感器。得益于电极接触面积的急剧变化和尼龙网良好的介电性,传感器具有  $1.49 \text{ kPa}^{-1}$  的高灵敏度,  $48 \text{ ms}$  的快速响应时间,  $7.55\%$  的低滞后性和超过  $1000$  次循环的耐久性。该项目制备方法简便、成本低、金属

污染少,为提高传感器性能的微结构设计提供了新思路。另外,如图 4 所示,Uzun 等<sup>[30]</sup>将 MXene 包覆在竹纱线上,使其具有高导电性、高电化学活性,经过编织制备出导电纤维电极后,与丁腈橡胶介电层组装得到一种织物基电容式压力传感器。该传感器具有高灵敏度(衡量因子  $\approx 6.02$ ),宽压缩范围( $\approx 20\%$ ),  $2000$  次的良好循环稳定性。这项工作为下一代可穿戴电子设备的发展提供了新颖实用的解决方案。

然而,电容式压力传感材料在进行优化的过程中依然存在一些问题,如介电层有限的介电常数和极板间有限的物理分离距离,使得传感器在测量时每平方厘米面积的电容值变化范围只有数十到数百皮法( $\text{pF}$ ),这非常容易受到寄生电荷和环境电磁噪声的影响。此外,除需关注灵敏度之外,电容式压力传感材料走向实际应用还有诸多问题需要系统、综合考虑,如检测范围、长期服役稳定性及规模制备成本等。

## 4.2 离电式压力传感材料

为了进一步优化电容式压力传感材料,Pan 团队<sup>[31]</sup>在 2011 年提出了一种被称为界面超级电容式传感的全新压力传感模式。该类传感器是利用在弹性电解质-电子界面上形成双电层(electric double layer,EDL)的超级电容器特性来进行传感测试,这种传感机理的实现主要依赖于界面上

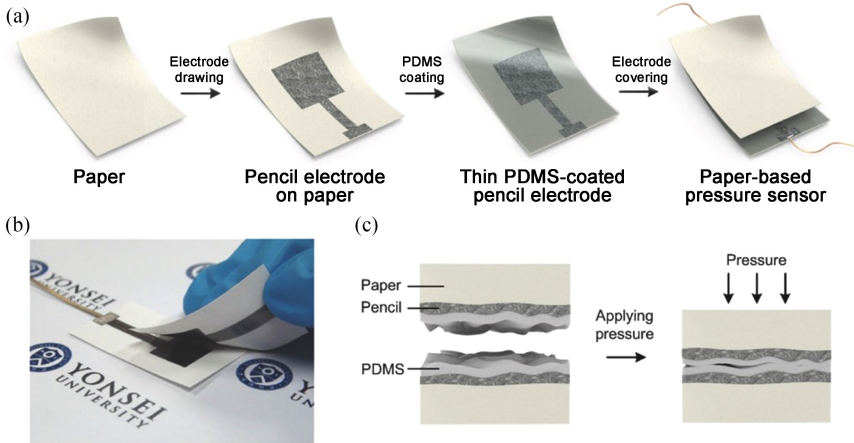


图 3 利用纸张表面粗糙度设计电容式压力传感器的新策略:(a)纸基电容式压力传感器的制备原理图;(b)制备的压力传感器的照片;(c)压力传感器在压力作用下的原理图<sup>[27]</sup>(2017 WILEY-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, Weinheim 版权许可)

**Figure 3** A novel strategy to fabricate capacitive pressure sensor utilizing the inartificial design of the surface roughness of paper. (a) Schematic process for the fabrication of the paper-based capacitive pressure sensor; (b) Photograph of the fabricated pressure sensor; (c) Schematic depiction of the pressure sensor under applied pressure (Reprinted with permission from Ref. [27]; Copyright 2017 WILEY-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, Weinheim)

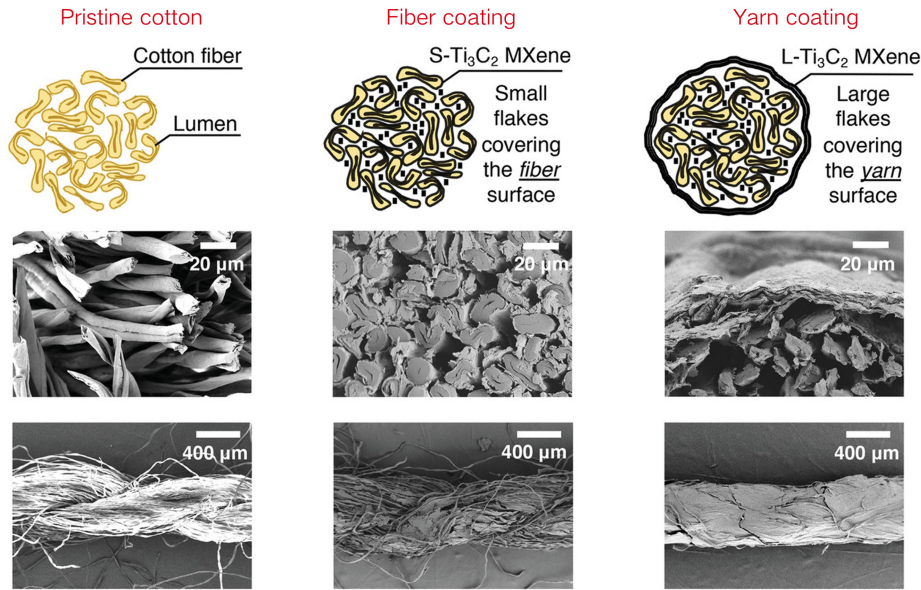


图 4 制备传感器使用的原始棉纱、涂覆小片  $\text{Ti}_3\text{C}_2$  MXene 的棉纱、涂覆小片和大片  $\text{Ti}_3\text{C}_2$  MXene 的棉纱的结构示意图及相应的 SEM 图<sup>[30]</sup> (2019 WILEY-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, Weinheim 版权许可)

**Figure 4** The schematic illustration and the SEM images of pristine cotton yarn, cotton yarn coated with small  $\text{Ti}_3\text{C}_2$  MXene flakes, cotton yarn coated with small and large  $\text{Ti}_3\text{C}_2$  MXene flakes, respectively (Reprinted with permission from Ref. [30]; Copyright 2019 WILEY-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, Weinheim)

EDL 的形成以及界面在压力变化过程中的可逆形变。由于接触界面的两侧分别聚集了离子和电子,界面超级电容式传感后来被命名为离电式传感,并且自 2014 年“离电式”命名正式引入柔性压力传感器领域以来,该定义逐渐被越来越多的研究人员所接受<sup>[32]</sup>。

值得注意的是,离电式压力传感材料表现出超高的单位面积电容 (unit area capacitance, UAC),电容值在亚 MHz 频谱上能够达到每平方厘米数微法( $\mu\text{F}$ )的数量级,比传统的平行板电容传感器大 1000 倍以上,因此它克服了传统电容式传感器所面临的主要技术挑战,即对寄生噪声和环境电磁场的敏感性。并且从测试的角度来看,传感界面 UAC 的显著提高与检测分辨率以及整体设备灵敏度直接相关。此外,该类传感器还具有高抗干扰性、高空间分辨率以及对静态和动态刺激均可响应监测等优势。

众所周知,EDL 可以将极性相反的电荷载流子(即电极表面的电子和介电层中的离子)保持在纳米尺寸范围内,因而具有极高的 UAC。基于电荷载流子的静电相互作用和热运动的原理,建立了界面物理和 EDL 性质的物理原理模型,即 Gouy-Chapman-Stern 模型。一般情况下,电极表面负载的多余电子会与介电层内界面处的电解质

离子发生强静电相互作用,导致带有相反电荷的离子被吸引到介电层内表面,在介电层-电极界面上产生一个称为 EDL 的区域。介电层中邻近电极的界面层保持并固定了大多数带有相反电荷的离子,称为亥姆霍兹层,其厚度被假设为单个溶剂化离子的半径,一般在纳米尺寸范围内,因此,亥姆霍兹层固定了由层间距分隔的相反电荷,其电子模型类似于传统的平行板电容器。与此同时,与亥姆霍兹层相邻的界面层通常称为扩散层,在扩散层中,反离子的静电相互作用和扩散效应均遵循泊松-玻尔兹曼关系达到平衡,这种扩散层的电学行为可以被认为是一个附加的电容元件,用电解质的德拜长度来描述。因此,根据经典的 EDL 模型,亥姆霍兹层和扩散层都可以简单地作为单独的电容元件模型,即  $C_H$  和  $C_D$ 。总的来说,界面 EDL 的等效模型可以表示为串联的两个界面电容器。考虑到  $C_H$  和  $C_D$  都与接触面积( $A$ )变化成正比,EDL 电容值可以由等式(3)推导得到:

$$C_{\text{EDL}} = \left( \frac{1}{C_H} + \frac{1}{C_D} \right)^{-1} = \eta_A \cdot \varphi(d, \epsilon, c, \phi, T) \cdot A$$
$$= \text{UAC} \cdot A \tag{3}$$

其中  $\varphi(d, \epsilon, c, \phi, T)$  是一个组合参数,理论上可以受到以下因素的影响:(1)电解质的性质,包括介电常数( $\epsilon$ )和亥姆霍兹层厚度( $d$ ),以及离子种

类和浓度( $c$ )的影响;(2)与电解质和电极相关的界面特性,如表面电位( $\phi$ );(3)环境因素,即温度( $T$ )。此外, $\eta_A$  被定义为实际光滑表面积与理想光滑表面积之间的粗糙度比值。值得注意的是, $\eta_A$  和  $\varphi$  的乘积表示每单位表面积的 EDL 电容值,即前面提到的 UAC,根据文献报道,UAC 可由恒流充放电曲线计算<sup>[33~36]</sup>。

如前所述,离电式压力传感工作机理的关键是离子-电子接触之间 EDL 层的形成和接触面积随压力的变化。为了获得高性能离电式压力传感器,有必要在对介电层表面与柔性电极表面进行微观结构一体化设计,使得它们之间的接触面积更易随压力变化而改变,进而显著提升其传感性能。因此,具有机械弹性和可逆性的离子电子界面的结构设计一直是离电式压力传感器性能提升的关键问题,下面将分别从均一结构、无规结构以及多孔结构三种设计思路来对研究进展进行叙述。

4.2.1 均一结构设计

Lu 团队<sup>[37]</sup>设计了一种利用离子凝胶介电层和引入微柱结构的电极组装离电式压力传感器。该传感器具有高度线性的电容-压力响应( $R^2 \approx 0.999$ )

和在宽压力范围内的高灵敏度( $33.16 \text{ kPa}^{-1}$ )。高线性度是由于电极与凝胶之间杨氏模量匹配所引起的界面接触面积的微妙变化,很好地补偿了微观结构的硬化效应。除了高线性度和高灵敏度外,该传感器还表现出较低的检测限( $0.9 \text{ Pa}$ ),  $9 \text{ ms}$  的快速响应时间,以及高稳定性( $80 \text{ kPa}$  压力下循环压缩/释放 6000 次)。

Bai 等<sup>[38]</sup>利用二次转印的方法在聚乙烯醇(PVA)/磷酸( $\text{H}_3\text{PO}_4$ )薄膜介电层上引入带有微柱的半球阵列,进而获得分级互锁微结构,设计出在宽压力范围内具有高灵敏度和高线性度的离电式压力传感器,转印过程如图 5 所示。该离电式压力传感器在高达  $485 \text{ kPa}$  的宽压力范围内具有  $49.1 \text{ kPa}^{-1}$  的高灵敏度以及  $R^2 > 0.995$  的高线性度。高线性度的实现是通过具有梯度互锁的介电层界面结构的互补性提高了压缩性能,并通过致密微尺寸的变形补偿了结构刚度来实现的。这项工作为制造具有高灵敏度、高线性度和宽压力响应范围的柔性压力传感器提供了一种新策略。此外,将该传感器集成在一个软夹持器上,使机器人能够通过机器学习识别被抓物体的质量,其识别

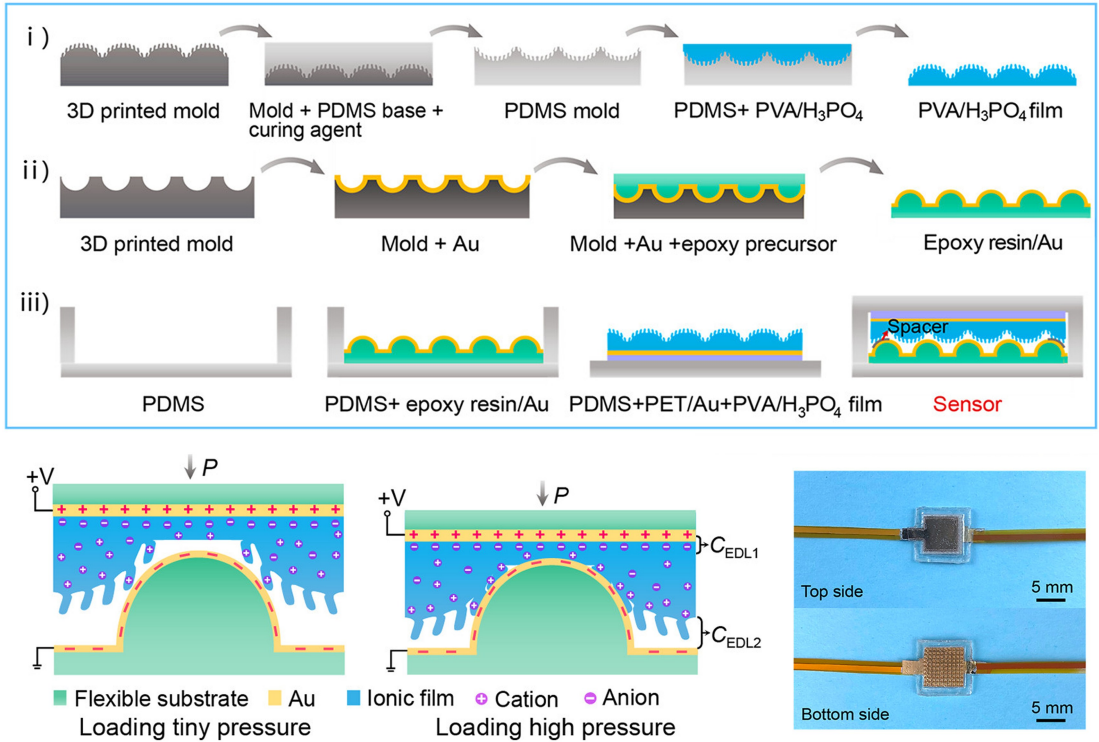


图 5 通过离子层表面带有细小支柱的半球形阵列的梯度互锁结构实现的高性能离电式柔性压力传感器<sup>[38]</sup> (2022 American Chemical Society 版权许可)

Figure 5 An iontronic flexible pressure sensor enabled by graded interlocks of an array of hemispheres with fine pillars in the ionic layer (Reprinted with permission from Ref. [38]; Copyright 2022 American Chemical Society)

精度  $>88\%$ ，体现出其在机器人触觉学的潜在应用。

4.2.2 无规结构设计

Li 等<sup>[39]</sup>受到皮肤中突触结构的启发,设计了具有类突触结构的 PVA/H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> 离子凝胶介电层与单面指状电极组成的新型离电式压力传感器。在该传感器的检测过程中,离子凝胶中的离子迁移过程被视为受到刺激后,离子从介电层中释放的过程,与皮肤中突触结构的工作原理相同。这种新型离电式压力传感器具有出乎意料的高灵敏度( $365\text{ kPa}^{-1}$ )、超宽检测范围( $1000\text{ kPa}$ ),低检测下限( $1.7\text{ Pa}$ )和显著的可重复性( $10000$  次循环),并且可以监测人体足底压力分布,在生理信号监测方面具有巨大潜力。

Bai 等<sup>[40]</sup>提出了一种离电式柔性压力传感器,结构如图 6 所示。该传感器引入了分级内充式结构,由不同高度的不稳定突出微结构组成,即

在压缩时容易弯曲的突起,通过调节压缩过程中突起的互补凹口和凹槽而提供额外压缩性。这种内充性在提高结构压缩性的同时,与电极形成充分接触方面起着至关重要的作用,从而使传感器在高达  $360\text{ kPa}$  的宽压力范围内获得高灵敏度( $220\sim3300\text{ kPa}^{-1}$ )和高分辨率(约  $10\text{ Pa}$ )。该传感器还表现出优异的机械稳定性,在  $300\text{ kPa}$  的高压下超过  $5000$  次压缩/释放循环,或在弯曲半径( $R$ )为  $6.5\text{ mm}$  的情况下超过  $2000$  次弯曲恢复循环,均没有发现明显的结构损坏。为了在宽压力范围内实现高灵敏度,这种内充式结构为其他类型的触觉传感器提供了一种创新性策略。

4.2.3 多孔结构设计

Wang 等<sup>[41]</sup>设计制备了以静电纺丝热塑性聚氨酯纳米纤维为基底的柔性离电式压力传感器,该传感器由嵌入银纳米线(AgNWs)的两个导电织物电极与复合离子液体的织物介电层组成。通

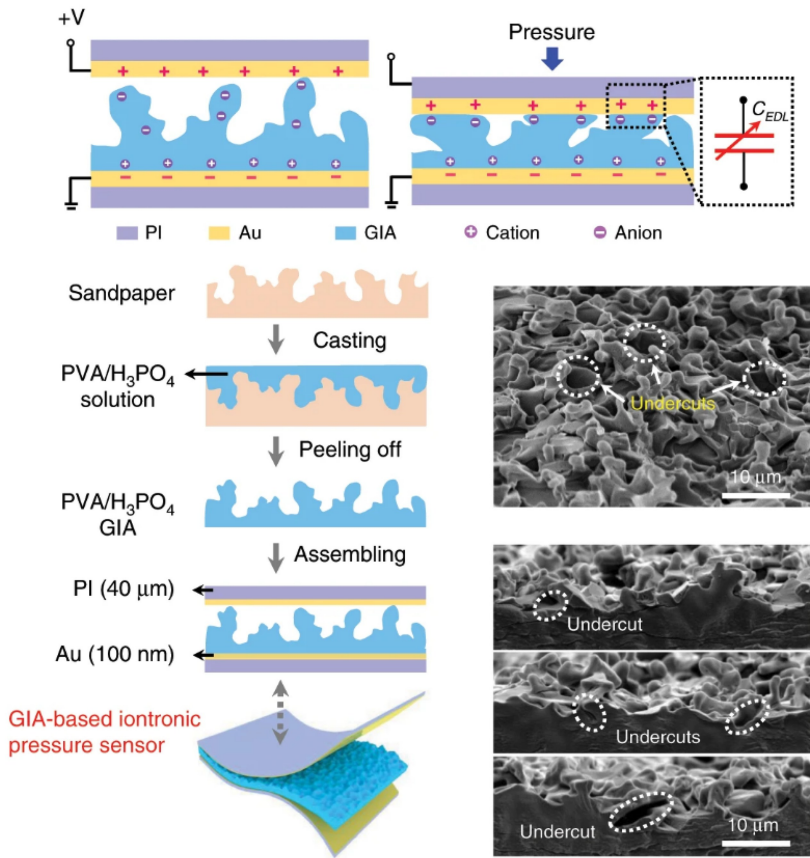


图 6 通过引入人为设计的微结构,实现超宽范围高灵敏度的离电式压力传感器的策略<sup>[40]</sup>  
(2020 The Author(s) 版权许可)

**Figure 6** A strategy for iontronic pressure sensor with ultra-broad-range high sensitivity by introducing engineering intrafillable microstructures (Reprinted with permission from Ref. [40]; Copyright 2020 The Author(s))

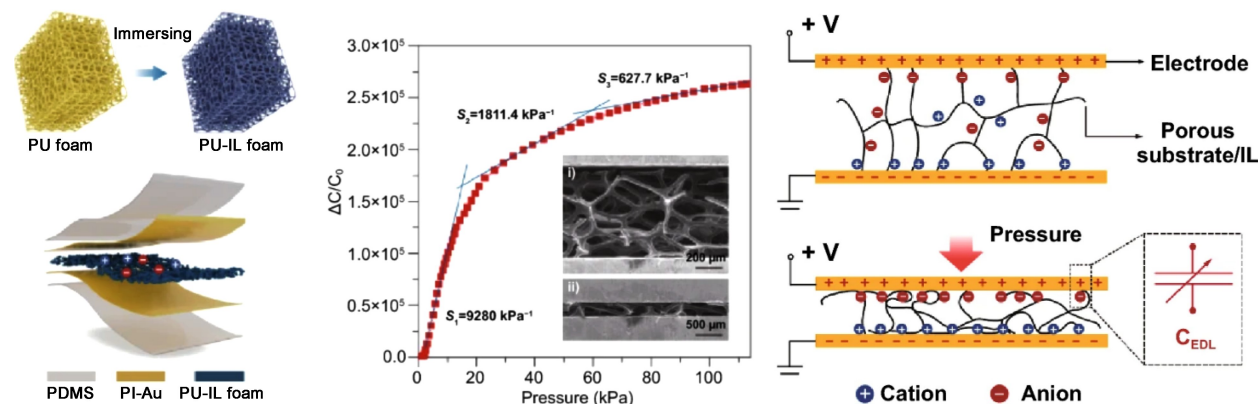


图7 使用具有高孔隙率的开孔聚氨酯泡沫制备离电式压力传感器的简单策略<sup>[42]</sup> (2021 The Author(s) 版权许可)

**Figure 7** A simple strategy for iontronic pressure sensor using open-cell polyurethane foams with high porosity (Reprinted with permission from Ref. [42]; Copyright 2021 The Author(s))

过利用静电纺丝纳米纤维的多孔粗糙结构与离电式传感机制,可以实现  $8.14 \text{ kPa}^{-1}$  的高灵敏度 ( $0 \sim 22.4 \text{ kPa}$  的低压力范围)、高达  $280 \text{ kPa}$  的宽检测范围、 $25 \text{ ms}$  的快速响应时间以及高稳定性和可重复性的传感性能。此外,由微孔/通道组成的交错纳米纤维网络还赋予传感器良好的透气性、透湿性、散热能力以及生物相容性等优点,确保了长时间舒适的皮肤附着佩戴。并且通过演示实验证明该传感器可以根据收集到的数据来监测膝关节在行走和跑步过程中的状态,从而可以纠正跑步姿势或帮助患者进行适当的康复运动。

Liu 等<sup>[42]</sup> 使用高孔隙率的开孔 PU 泡沫作为连续的三维网络骨架,然后通过一步浸泡过程使其负载离子液体后,作为离电式压力传感器中的离子介电层,装置结构如图 7 所示。制备得到的 PU-IL 复合泡沫具有较低的杨氏模量 ( $3.4 \text{ kPa}$ ) 和良好的压缩性能,并且孔隙率能够达到  $95.4\%$ 。该泡沫型压力传感器具有  $9280 \text{ kPa}^{-1}$  的超高灵敏度、 $0.125\%$  的高压力分辨率以及  $10 \text{ ms}$  的快速响应时间。此外,该传感器还表现出显著的机械稳定性 ( $5000$  次压缩释放或弯曲释放循环),并且通过演示实验表明该传感器在水下波浪波动和振动检测以及机器健康诊断方面具有很大的潜力。这项工作为低成本和大规模制造超高灵敏度的离电式压力传感器打开了一扇门。

## 5 总结与展望

高分子基柔性传感材料,尤其是柔性压力传感材料,在人机交互、健康监测以及可穿戴电子设备领域中具有良好的应用前景,近年来获得了

越来越多的关注。本文针对高分子基柔性压力传感材料的分类及研究进展做了简要综述,包括电阻式压力传感、压电式压力传感、摩擦电式压力传感以及电容式压力传感四种模式,并着重叙述了电容式压力传感和以电容式传感为基础的离电式传感的工作机理、优化策略及研究进展。相较于响应时间慢、灵敏度低、热噪声影响大的电阻式压力传感,以及不能检测静态压力刺激的压电式和摩擦电式压力传感,电容式压力传感具有高灵敏度、可重复性好、功耗低、空间分辨率高等优点,然而,电容式传感容易受到寄生电荷和环境电磁噪声的影响。为了解决这个问题,研究人员根据 EDL 原理设计了离电式压力传感器,使得电容输出信号具有高抗干扰性、高空间分辨率,以及能够对静态和动态刺激进行高灵敏度响应的优点。然而,目前对离电式压力传感器的研究还仅仅处于实验室阶段,仍有很多问题亟待解决,如结构设计复杂、传感材料的使用寿命短和电化学稳定性差,以及其他环境因素导致的信号干扰,例如温度和湿度变化等。相信在不久的将来,通过不断地研究来解决这些问题后,离电式压力传感器将能广泛应用于人们的日常生活,为人们的生活提供更多的便利。

## 参考文献:

- [1] Huang, Y.; Fan, X. Y.; Chen, S.; Zhao, N. Emerging technologies of flexible pressure sensors: materials, modeling, devices, and manufacturing. *Adv. Funct. Mater.*, **2019**, 29(12), 1808509.
- [2] Wu, W. W.; Haick, H. Materials and wearable devices for autonomous monitoring of physiological markers. *Adv. Mater.*, **2018**, 30(41), 1705024.

- [3] Chen, J. W.; Zhu, Y. T.; Chang, X. H.; Pan, D.; Song, G.; Guo, Z. H.; Naik, N. Recent progress in essential functions of soft electronic skin. *Adv. Funct. Mater.*, **2021**, 31 (42), 2104686.
- [4] Wang, X. W.; Liu, Z.; Zhang, T. Flexible sensing electronics for wearable/attachable health monitoring. *Small*, **2017**, 13(25), 1602790.
- [5] 田可, 邓华, 傅强. 镍/聚氨酯复合材料的导电网络在拉伸中的演变. *高分子学报*, **2020**, 51(5), 559-568.
- [6] Tian, K.; Pan, Q. J.; Deng, H.; Fu, Q. Shear induced formation and destruction behavior of conductive networks in nickel/polyurethane composites during strain sensing. *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, **2020**, 130, 105757.
- [7] Xiao, S. H.; Zhou, X.; Deng, H.; Fu, Q. Preparation of elastic conductor with high stretchability and stable conductivity under strain *via* pre-stretching and spraying approach. *Compos. Commun.*, **2021**, 24, 100641.
- [8] Tian, K.; Sui, G. P.; Yang, P.; Deng, H.; Fu, Q. Ultrasensitive thin-film pressure sensors with a broad dynamic response range and excellent versatility toward pressure, vibration, bending, and temperature. *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **2020**, 12(18), 20998-21008.
- [9] Yang, Y.; Zhao, G. J.; Cheng, X.; Deng, H.; Fu, Q. Stretchable and healable conductive elastomer based on PEDOT; PSS/natural rubber for self-powered temperature and strain sensing. *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **2021**, 13 (12), 14599-14611.
- [10] Zhou, X.; Zhu, L.; Fan, L.; Deng, H.; Fu, Q. Fabrication of highly stretchable, washable, wearable, water-repellent strain sensors with multi-stimuli sensing ability. *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **2018**, 10(37), 31655-31663.
- [11] Shi, Q. W.; Tian, K.; Zhu, H. F.; Li, Z. R.; Zhu, L. G.; Deng, H.; Huang, W. X.; Fu, Q. Flexible and giant terahertz modulation based on ultra-strain-sensitive conductive polymer composites. *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **2020**, 12 (8), 9790-9796.
- [12] Zhang, Y. J.; Wang, Y. H.; Wang, C. Y.; Zhao, Y. F.; Jing, W. X.; Wang, S.; Zhang, Y. X.; Xu, X. Y.; Zhang, F. Z.; Yu, K. G.; Mao, Q.; Lin, Q. J.; Han, F.; Tian, B.; Zhou, Z. Y.; Zhao, L. B.; Ren, W.; Liu, M.; Jiang, Z. D. Superior performances *via* designed multiple embossments within interfaces for flexible pressure sensors. *Chem. Eng. J.*, **2023**, 454, 139990.
- [13] Yin, T. T.; Cheng, Y. F.; Hou, Y. X.; Sun, L.; Ma, Y. N.; Su, J.; Zhang, Z.; Liu, N. S.; Li, L. Y.; Gao, Y. H. 3D porous structure in MXene/PANI foam for a high-performance flexible pressure sensor. *Small*, **2022**, 18(48), 2204806.
- [14] Liu, Q.; Zhang, Y. Q.; Sun, X. W.; Liang, C.; Han, Y. Y.; Wu, X. D.; Wang, Z. Q. All textile-based robust pressure sensors for smart garments. *Chem. Eng. J.*, **2023**, 454, 140302.
- [15] Yu, J. B.; Xian, S.; Zhang, Z. P.; Hou, X. J.; He, J.; Mu, J. L.; Geng, W. P.; Qiao, X. J.; Zhang, L.; Chou, X. J. Synergistic piezoelectricity enhanced BaTiO<sub>3</sub>/polyacrylonitrile elastomer-based highly sensitive pressure sensor for intelligent sensing and posture recognition applications. *Nano Res.*, **2023**, 16(4), 5490-5502.
- [16] Jiang, H. W.; Song, L.; Huang, Z. X.; Liu, M. J.; Zhao, Y. F.; Zhang, S. H.; Guo, J. J.; Li, Y. J.; Wang, Q.; Qu, J. P. A novel concept of hierarchical porous structural design on enhancing output performance of piezoelectric nanogenerator. *Nano Energy*, **2022**, 104, 107921.
- [17] Sohn, C.; Kim, H.; Han, J.; Lee, K. T.; Šutka, A.; Jeong, C. K. Generating electricity from molecular bonding-correlated piezoresponse of biodegradable silk nanofibers. *Nano Energy*, **2022**, 103, 107844.
- [18] Fan, F. R.; Tian, Z. Q.; Wang, Z. L. Flexible triboelectric generator. *Nano Energy*, **2012**, 1(2), 328-334.
- [19] Zhao, X. Y.; Ounaies, Z. A facile method to enhance the flexibility and triboelectric output of PDMS using ionic liquid-coated single-wall carbon nanotubes. *Nano Energy*, **2022**, 94, 106908.
- [20] Feng, H. F.; Li, H. Y.; Xu, J.; Yin, Y. M.; Cao, J. W.; Yu, R. X.; Wang, B. X.; Li, R. W.; Zhu, G. Triboelectric nanogenerator based on direct image lithography and surface fluorination for biomechanical energy harvesting and self-powered sterilization. *Nano Energy*, **2022**, 98, 107279.
- [21] Luo, Y. C.; Yu, M. L.; Zhang, Y. T.; Wang, Y. Y.; Long, L.; Tan, H. H.; Li, N.; Xu, L. J.; Xu, J. X. Highly sensitive strain sensor and self-powered triboelectric nanogenerator using a fully physical crosslinked double-network conductive hydrogel. *Nano Energy*, **2022**, 104, 107955.
- [22] Chortos, A.; Liu, J.; Bao, Z. N. Pursuing prosthetic electronic skin. *Nat. Mater.*, **2016**, 15(9), 937-950.
- [23] Wan, S.; Bi, H. C.; Zhou, Y. L.; Xie, X.; Su, S.; Yin, K. B.; Sun, L. T. Graphene oxide as high-performance dielectric materials for capacitive pressure sensors. *Carbon*, **2017**, 114, 209-216.
- [24] Hwang, J.; Kim, Y.; Yang, H.; Oh, J. H.

- Fabrication of hierarchically porous structured PDMS composites and their application as a flexible capacitive pressure sensor. *Compos. Part B Eng.*, **2021**, 211, 108607.
- [25] Choi, J.; Kwon, D.; Kim, K.; Park, J.; Del Orbe, D.; Gu, J. M.; Ahn, J.; Cho, I.; Jeong, Y.; Oh, Y.; Park, I. Synergetic effect of porous elastomer and percolation of carbon nanotube filler toward high performance capacitive pressure sensors. *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **2020**, 12 (1), 1698-1706.
- [26] Xiong, Y. X.; Shen, Y. K.; Tian, L.; Hu, Y. G.; Zhu, P. L.; Sun, R.; Wong, C. P. A flexible, ultra-highly sensitive and stable capacitive pressure sensor with convex microarrays for motion and health monitoring. *Nano Energy*, **2020**, 70, 104436.
- [27] Lee, K.; Lee, J.; Kim, G.; Kim, Y.; Kang, S. B.; Cho, S.; Kim, S.; Kim, J. K.; Lee, W.; Kim, D. E.; Kang, S.; Kim, D.; Lee, T.; Shim, W. Rough-surface-enabled capacitive pressure sensors with 3D touch capability. *Small*, **2017**, 13(43), 1700368.
- [28] Zhou, Q.; Ji, B.; Wei, Y. Z.; Hu, B.; Gao, Y. B.; Xu, Q. S.; Zhou, J.; Zhou, B. P. A bio-inspired cilia array as the dielectric layer for flexible capacitive pressure sensors with high sensitivity and a broad detection range. *J. Mater. Chem. A*, **2019**, 7(48), 27334-27346.
- [29] Chen, Y. X.; Wang, Z. H.; Xu, R.; Wang, W.; Yu, D. A highly sensitive and wearable pressure sensor based on conductive polyacrylonitrile nanofibrous membrane *via* electroless silver plating. *Chem. Eng. J.*, **2020**, 394, 124960.
- [30] Uzun, S.; Seyedin, S.; Stoltzfus, A. L.; Levitt, A. S.; Alhabeb, M.; Anayee, M.; Strobel, C. J.; Razal, J. M.; Dion, G.; Gogotsi, Y. Knittable and washable multifunctional MXene-coated cellulose yarns. *Adv. Funct. Mater.*, **2019**, 29(45), 1905015.
- [31] Nie, B. Q.; Xing, S. Y.; Brandt, J. D.; Pan, T. R. Droplet-based interfacial capacitive sensing. *Lab Chip*, **2012**, 12(6), 1110-1118.
- [32] Nie, B. Q.; Li, R. Y.; Brandt, J. D.; Pan, T. R. Iontronic microdroplet array for flexible ultra-sensitive tactile sensing. *Lab Chip*, **2014**, 14(6), 1107-1116.
- [33] Zhong, Y.; Liang, J. H.; Zhang, B. L.; Wang, F. M.; Huang, W. Q.; Cai, G. F.; Zhang, C.; Xin, Y.; Chen, B. H.; He, X. Highly stable, stretchable, and versatile electrodes by coupling of NiCoS nanosheets with metallic networks for flexible electronics. *Nanoscale*, **2022**, 14(22), 8172-8182.
- [34] Zhang, G. H.; Zhao, Y. L.; Hu, J.; Liu, H. Z.; Chen, T. W.; Yu, H. H.; Duan, H. G. Freestanding ultralight metallic micromesh for high-energy density flexible transparent supercapacitors. *J. Mater. Chem. A*, **2022**, 10(41), 22182-22193.
- [35] Zhang, H. X.; Wang, L.; Xing, X. X.; Zhao, S.; Wang, K.; Liu, S. Z. High-energy-density supercapacitors based on high-area-specific-capacity  $\text{Ti}_3\text{C}_2\text{T}_x$  and a redox-active organic-molecule hybrid electrode. *Adv. Funct. Mater.*, **2022**, 32(48), 2208403.
- [36] Islam, M. R.; Afroj, S.; Novoselov, K. S.; Karim, N. Smart electronic textile-based wearable supercapacitors. *Adv. Sci.*, **2022**, 9(31), 2203856.
- [37] Lu, P.; Wang, L.; Zhu, P.; Huang, J.; Wang, Y. J.; Bai, N. N.; Wang, Y.; Li, G.; Yang, J. L.; Xie, K. W.; Zhang, J. M.; Yu, B.; Dai, Y.; Guo, C. F. Iontronic pressure sensor with high sensitivity and linear response over a wide pressure range based on soft micropillared electrodes. *Sci. Bull.*, **2021**, 66(11), 1091-1100.
- [38] Bai, N. N.; Wang, L.; Xue, Y. H.; Wang, Y.; Hou, X. Y.; Li, G.; Zhang, Y.; Cai, M. K.; Zhao, L. Y.; Guan, F. Y.; Wei, X. Y.; Guo, C. F. Graded interlocks for iontronic pressure sensors with high sensitivity and high linearity over a broad range. *ACS Nano*, **2022**, 16(3), 4338-4347.
- [39] Li, P.; Xie, L.; Su, M.; Wang, P. S.; Yuan, W.; Dong, C. H.; Yang, J. Skin-inspired large area iontronic pressure sensor with ultra-broad range and high sensitivity. *Nano Energy*, **2022**, 101, 107571.
- [40] Bai, N. N.; Wang, L.; Wang, Q.; Deng, J.; Wang, Y.; Lu, P.; Huang, J.; Li, G.; Zhang, Y.; Yang, J. L.; Xie, K. W.; Zhao, X. H.; Guo, C. F. Graded intrafillable architecture-based iontronic pressure sensor with ultra-broad-range high sensitivity. *Nat. Commun.*, **2020**, 11(1), 209.
- [41] Wang, P.; Liu, J.; Yu, W.; Li, G. X.; Meng, C. Z.; Guo, S. J. Flexible, stretchable, breathable and sweatproof all-nanofiber iontronic tactile sensor for continuous and comfortable knee joint motion monitoring. *Nano Energy*, **2022**, 103, 107768.
- [42] Liu, Q. X.; Liu, Y.; Shi, J. L.; Liu, Z. G.; Wang, Q.; Guo, C. F. High-porosity foam-based iontronic pressure sensor with superhigh sensitivity of 9280 kPa<sup>-1</sup>. *Nanomicro Lett.*, **2021**, 14(1), 21.