

doi:10.3969/j.issn.1001-3539.2023.05.002

熔融混炼制备柔性TPU/rGO介电层及其压力传感性能

吴焕东, 肖书平, 徐百平, 黄嘉荣, 徐文华

(五邑大学智能制造学部江门市五邑大学高分子材料智能制造重点实验室, 广东江门 529030)

摘要: 为了探究熔融混炼制备弹性体/导电填料复合材料的压力传感性能及其应用价值, 对良好生物相容性的热塑性聚氨酯弹性体(TPU)和氧化石墨烯(GO)进行熔融混炼, 该过程中GO发生原位热还原, 从而制得柔性TPU/还原氧化石墨烯(rGO)纳米复合材料。以此为介电层组装电容式压力传感器, 并进行传感性能测试分析。结果表明, GO的掺杂可有效改善传感器的性能, 1.0% GO质量分数时传感器的灵敏度为 0.069 MPa^{-1} ($0.06 \sim 2 \text{ MPa}$), 明显高于未掺杂的(0.046 MPa^{-1}), 这与GO掺杂显著提高介电层的介电常数有关。当GO含量过高时, 传感器灵敏度反而降低, 这可能与材料内rGO渗流网络形成有关。所研制的传感器响应性较好, 以GO 1.0%质量分数为例, 其响应时间约110 ms、迟滞误差1.4%、稳定性良好。该传感器可成功应用于人体手指点击和弯曲运动监测, 在柔性可穿戴领域展现出良好的应用前景。

关键词: 熔融混炼; 柔性压力传感; 热塑性聚氨酯弹性体; 氧化石墨烯; 柔性可穿戴设备

中图分类号: TQ320.6 **文献标识码:** A **文章编号:** 1001-3539(2023)05-0008-06

Fabrication of Flexible TPU/rGO Dielectric Layer via Melt-mixing and Its Pressure Sensing Performance

Wu Huandong, Xiao Shuping, Xu Baiping, Huang Jiarong, Xu Wenhua

(Wuyi University Faculty of Intelligent Manufacturing, Jiangmen Key Laboratory of Polymer Intelligent Manufacturing at Wuyi University, Jiangmen 529030, China)

Abstract : In order to explore pressure sensing performance and application value of elastomer/electrically conductive filler composites prepared by melt-mixing, thermoplastic polyurethane elastomer (TPU) with good biocompatibility and graphene oxide (GO) were melt-mixing. In this process, the GO underwent in situ thermal reduction, thus flexible TPU/reduced graphene oxide (rGO) nanocomposites were prepared. The obtained flexible nanocomposite was used as dielectric layer for fabricating capacitive pressure sensors, and their sensing performance was tested and analyzed. The results show that sensor performance can be effectively improved by doping GO, the sensitivity of the sensor with 1.0 wt% GO content is 0.069 MPa^{-1} ($0.06 \sim 2 \text{ MPa}$), which is significantly higher than that of the undoped sensor (0.046 MPa^{-1}). The higher sensitivity of the former is related to the fact that GO doping significantly improves the dielectric permittivity of the dielectric layer. When the GO content is too high, the sensitivity of the sensor decreases, which may be related to the formation of rGO percolative network in the nanocomposite. The obtained sensors exhibit good response properties: for the sensor with 1.0 wt% GO, its response time and hysteresis error are about 110 ms and 1.4% respectively, and it exhibits good stability. The fabricated sensor can be successfully applied to monitoring human finger clicking and bending motion, which implies its good application prospect in flexible wearable field.

Keywords : melt-mixing ; flexible pressure sensing ; thermoplastic polyurethane elastomer ; graphene oxide ; flexible wearable device

基金项目: 国家自然科学基金项目(11972023, 12102306), 五邑大学博士基金项目(BSQD2006)

通信作者: 肖书平, 讲师, 博士, 主要研究方向为轻质高分子材料高效制备与高值化应用

收稿日期: 2023-03-03

引用格式: 吴焕东, 肖书平, 徐百平, 等. 熔融混炼制备柔性TPU/rGO介电层及其压力传感性能[J]. 工程塑料应用, 2023, 51(5): 8-13.

Wu Huandong, Xiao Shuping, Xu Baiping, et al. Fabrication of flexible TPU/rGO dielectric layer via melt-mixing and its pressure sensing performance[J]. Engineering Plastics Application, 2023, 51(5): 8-13.

随着可穿戴设备和电子皮肤的发展,高灵敏度和强适应性的柔性压力传感器受到了研究者的广泛关注^[1-2]。柔性压力传感器,打破了传统压力传感器刚性大的缺陷,具有柔韧性好、可延展的优点,扩大了其应用范围。根据传感原理的不同,柔性压力传感器主要可分为电阻式^[3-4]、电容式^[5-6]、压电式^[7-8]和摩擦起电式^[9]四大类。其中,柔性电容式压力传感器因其结构简单、能耗低和稳定性好而深受研究者的青睐。

柔性电容式压力传感器具有典型的电极层-介电层-电极层“三明治”结构。其中,为了保证该类传感器良好的柔韧性,介电层一般采用弹性体材料。目前,该类传感器研制所采用的弹性体材料有聚二甲基硅氧烷(PDMS)^[10-11]、聚氨酯(PUR)^[12-13]和热塑性聚氨酯(TPU)^[14-15]等。其中,TPU不仅具有良好的柔韧性、延展性和生物相容性等优点,且可热塑性加工,因此成为该类传感器研制的优选材料。但是,基于TPU介电层的柔性电容式压力传感器因其灵敏度较低成为了限制其实际应用的主要瓶颈。

与传统的平行板电容器类似,柔性电容式压力传感器的电容 C 与介电层厚度 d 的倒数和电极层/介电层接触面积 A 的乘积成正比,比例系数即为介电层的介电常数 ϵ 。外部压力作用下,传感器会发生延展和/或压缩变形,从而引起其 A , d 甚至 ϵ 的变化,最终导致其 C 发生变化。许多研究者通过在介电层内造孔^[15]、引入表面微结构^[16]或添加导电填料^[17-18]的方法来改善介电层的力学或介电性能,从而增强传感器 C 的变化,提高其灵敏度。其中,导电填料的引入可有效改善介电层的介电性能,提高其 ϵ 。然而,目前在这些研究中,导电填料的添加多是采用溶剂混炼法,该方法具有环境不友好且耗时较长的缺点。作为制备聚合物基复合材料常用加工方法之一的熔融混炼法可以有效避免上述缺点。然而,目前通过该方法在TPU中掺入导电填料以制备柔性电容式压力传感器的应用研究鲜有报道。

笔者通过熔融混炼在TPU中掺杂氧化石墨烯(GO)以制备TPU/还原氧化石墨烯(rGO)纳米复合材料,并以该材料作为电容式压力传感器的介电层,通过调控GO掺杂量以优化传感器的灵敏度。同时测试了所研制的传感器的响应时间、迟滞性和稳定性等关键传感性能。此外,该传感器被成功应用于人体手指点击和弯曲运动监测。

1 实验部分

1.1 主要原材料

TPU:WHT1185EC,密度 1.19 g/cm^3 ,烟台万华化学集团股份有限公司;

氧化石墨:XF003,南京先丰纳米材料科技有限公司;

去离子水(DH_2O):上海阿拉丁生化科技股份有限公司;

氧化铟锡/聚对苯二甲酸乙二酯(ITO/PET)导电膜:ITO-M0507,珠海凯为光电科技有限公司;

聚酰亚胺(PI)胶带:广州盈讯科技有限公司。

1.2 主要设备及仪器

真空烘箱:DZF-6090B型,常州恩培仪器制造有限公司;

真空冷冻干燥机:Biosafe-10B型,南京赛飞生物科技有限公司;

超声波仪:F-020SD型,深圳福洋科技集团有限公司;

平板硫化机:BL-6170-B型,东莞市宝轮精密检测仪器有限公司;

转矩流变仪:RTNI-55型,广州市普同实验分析仪器有限公司;

万能材料试验机:Instron 5966型,美国英斯特朗公司;

数字电桥(LCR)测试仪:Keysight E4980 A型,安捷伦科技有限公司。

1.3 TPU/rGO纳米复合材料片材制备

GO的制备:首先将氧化石墨粉末加入 DH_2O 中,并用超声波仪超声处理2 h,使氧化石墨粉末完全剥离分散,得GO/ DH_2O 悬浮液(10 mg/mL)。接着将GO/ DH_2O 悬浮液用真空冷冻干燥机干燥约60 h,得到GO絮状物。

TPU/rGO纳米复合材料片材的制备:第一步,将TPU粒料置于真空烘箱中 $80\text{ }^\circ\text{C}$ 干燥12 h,将GO絮状物和干燥后的TPU粒料按照表1的实验配比预混。第二步,将所得预混物加入转矩流变仪中在 $200\text{ }^\circ\text{C}$ 和 80 r/min 转速下混炼8 min,在该过程中GO会发生原位热还原^[19],从而得到TPU/rGO纳米复合材料。第三步,将制备的TPU/rGO纳米复合材料破碎后置于真空烘箱中在 $80\text{ }^\circ\text{C}$ 下干燥12 h,称取一定量干燥后的TPU/rGO纳米复合材料破碎料置于自制模具中,并用平板硫化机在温度和压力分别为

200 °C和 14 MPa 的条件下模压,得厚度约 0.95 mm 的柔韧 TPU/rGO 纳米复合材料片材,备用。为了作比较,在不添加 GO 的情况下,对 TPU 粒料也进行了上述第一步到第三步的操作,制备得到了柔性 TPU 片材,标记为 TPU/rGO0。

表1 GO与TPU熔融混炼实验配比

样品编号	GO 质量分数/%	TPU 质量分数/%
TPU/rGO0	0	100
TPU/rGO0.5	0.5	99.5
TPU/rGO1.0	1.0	99
TPU/rGO1.5	1.5	98.5
TPU/rGO2.0	2.0	98

1.4 传感器组装

所制备的基于 TPU/rGO 的电容式压力传感器结构如图 1 所示。组装过程为:首先将上述制备好的 TPU/rGO 纳米复合材料片材裁剪出 10 mm × 10 mm 的小片材作为传感器的介电层;然后将 ITO/PET 导电膜裁剪成 25 mm × 10 mm 的长方形条状作为电极层;紧接着将该介电层置于两个电极层之间,并用 PI 胶带将铜导线固定在导电膜的 ITO 侧;最后用 PI 胶带将该传感器进行封装以起到保护作用。至此,基于柔性 TPU/rGO 介电层的电容式压力传感器便组装完成。



图1 所制备的传感器结构示意图

1.5 传感器性能测试

通过自主搭建的传感器性能测试装置对传感器的传感性能进行表征。该测试装置由 LCR 测试仪、万能材料试验机和电脑组成。测试过程:首先在万能材料试验机的测试台上放置一片玻璃片,将传感器固定在玻璃片上,然后将传感器的导线与 LCR 测试仪相连,最后再将 LCR 测试仪、万能材料试验机与电脑连接。测试时,通过万能材料试验机对传感器施加不同的压力,使传感器发生形变,LCR 测试仪在 1 kHz 的工作频率和 1 V 的偏置电压下实时测量和显示传感器的电容值,最后通过电脑实现对数据的收集和存储。

2 结果与讨论

2.1 GO 含量对 TPU/rGO 介电层介电常数影响

为了测试 TPU 以及 TPU/rGO 介电层的介电性

能,用 LCR 测试仪对它们的介电常数(ϵ)进行了表征,如图 2 所示。由图 2 可知,随着频率增加,它们的 ϵ 呈下降趋势,这与 TPU 及其纳米复合材料内部不同极化(电子和原子的位移极化、极性基团的取向极化以及导电填料与聚合物基体间的界面极化)所需时间不同有关。随着 GO 含量的增加,介电层的 ϵ 先升高后降低。该现象可结合渗流理论^[20]进行解释:随着 GO 含量增加,材料内部的界面极化得到了增强,因此 ϵ 增加;然而过高的 GO 含量会导致渗流网络的形成,从而引起 ϵ 的下降。

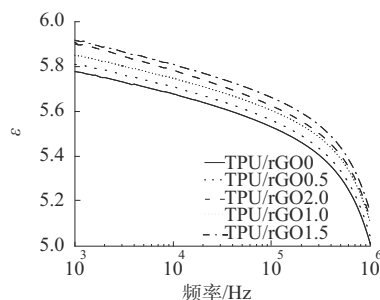


图2 不同GO含量下的TPU/rGO介电层 ϵ 随频率的变化曲线

2.2 GO 含量对传感器灵敏度影响

灵敏度(S)一直是评价传感器性能的最重要的指标,它通常由传感器的输出信号与输入信号的比值来定义,反映了传感器在实际应用场景中的有效性和准确性。其定义为^[21]:

$$S = \Delta(\Delta C/C_0)/\Delta P \quad (1)$$

式中: ΔC 为电容的变化量, $\Delta C = C - C_0$, C_0 和 C 分别为施加压力前、后的电容值; $\Delta C/C_0$ 为相对电容变化, P 为传感器所受压强值。

对所组装的传感器进行性能测试,其 $\Delta C/C_0$ - P 关系曲线如图 3 所示。对于 TPU/rGO 0,在较小 P 范围(0 ~ 0.06 MPa)内,该曲线较陡,即传感器 S 很高,这可能与初始阶段传感器被压实所导致的有效接触面积 A 的急剧增加有关。随着 P 的增加,曲线斜率减小并趋于稳定。通过对 0.06 ~ 2 MPa 范围内的数据点进行线性拟合,可得该范围内 TPU/rGO 0 传

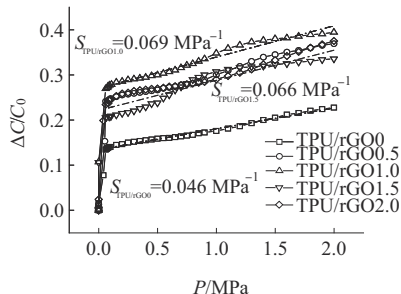


图3 不同GO含量下TPU/rGO传感器的 $\Delta C/C_0$ - P 曲线

传感器的 S 为 0.046 MPa^{-1} 。GO的添加对传感器的 S 有明显的提升作用, $0.06 \sim 2 \text{ MPa}$ 范围内的 S 值从TPU/rGO 0的 0.046 MPa^{-1} 提高至TPU/rGO 1.0的 0.069 MPa^{-1} ;然而当GO含量进一步提高至1.5%时(图3), S 降至 0.066 MPa^{-1} ,这与rGO渗流网络形成所导致的介电层 ε 的降低有关。

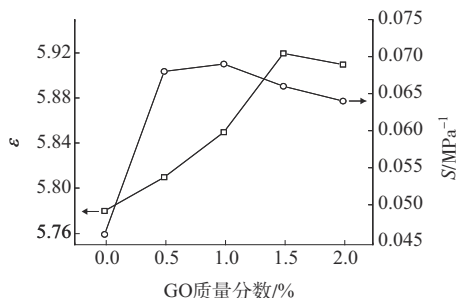


图4 TPU/rGO介电层 ε 和其传感器 S 值与GO含量关系曲线

综上,TPU/rGO介电层 ε 和其传感器 S 随着GO含量的增加均呈现出先升高后降低的趋势,如图4所示:对于其 ε (1 kHz),当GO质量分数超过1.5%时, ε 开始下降,这表明其阈值约为1.5%;对于其 S 值,当GO质量分数超过1.0%时, S 值开始降低,该值(1.0%)低于前述阈值1.5%,这可能与压缩过程中所导致的rGO分布状态的变化有关。

2.3 传感器响应时间测试与分析

通过对比不同GO含量的传感器 S 值,选择TPU/rGO1.0传感器进行进一步的测试分析。响应时间(RT)是评价传感器性能的重要指标之一。其定义为 $\Delta C/C_0$ -时间(t)关系曲线上,电容信号从稳定输出值的10%升高至90%期间的时间间隔^[22]。

为了测试TPU/rGO1.0传感器的RT,对该传感器依次重复3次施加50,200,800 kPa的静态载荷,实时监测 $\Delta C/C_0$ 变化,其结果如图5所示。不同静态载荷下均可以测出稳定的输出信号,对比图中不同载荷的 $\Delta C/C_0$ - t 曲线发现,最大 $\Delta C/C_0$ 随着静态载荷的增加而增加,它从50 kPa的0.156提高至800 kPa的0.257,提高了64.7%。

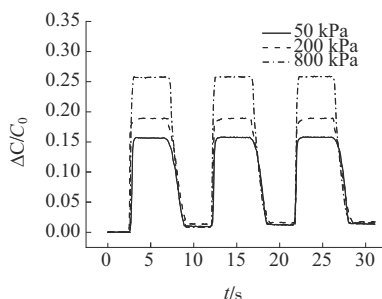


图5 不同静态载荷下TPU/rGO1.0传感器的 $\Delta C/C_0$ - t 关系曲线

通过将TPU/rGO1.0传感器在200 kPa静态载荷下的 $\Delta C/C_0$ - t 曲线进行放大(见图6)和分析,可得其响应时间RT约为110 ms,这表明所研制的传感器展现出快速的响应特性。

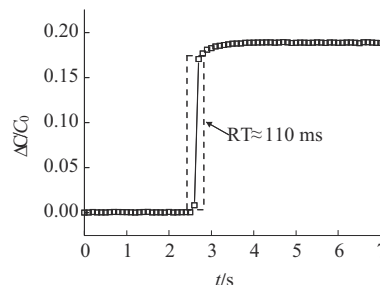


图6 200 kPa静态载荷下TPU/rGO1.0传感器的 $\Delta C/C_0$ - t 关系曲线

2.4 传感器迟滞性测试与分析

迟滞性是指在载荷的逐渐增加和减小过程中,传感器的输出-输入特性曲线不重合的程度。迟滞性可用迟滞误差 γ_H 进行衡量,该值计算方法如下^[23]:

$$\gamma_H = (\pm \Delta H_{\max} / Y_{FS}) \times 100\% \quad (2)$$

式中: $\Delta H_{\max}$ 为同一 P 下,两条曲线 $\Delta C/C_0$ 的差值中的最大值, Y_{FS} 为传感器满量程时的输出值 $\Delta C/C_0$ 。对TPU/rGO 1.0传感器逐渐加压至1 200 kPa,然后逐渐释放,记录传感器实时的 $\Delta C/C_0$,结果如图7所示。计算可知,传感器的迟滞误差为1.4%,相比于报道过的同类传感器($\gamma_H = 6.58\%$)^[18],该传感器具有低迟滞性。

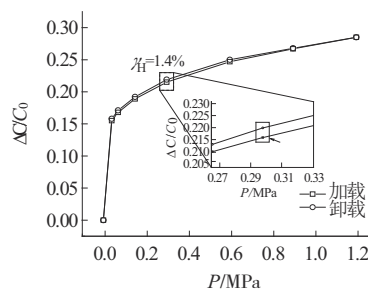


图7 TPU/rGO1.0传感器在载荷增加和减小过程中的 $\Delta C/C_0$ - P 曲线

2.5 传感器稳定性测试与分析

稳定性是评价传感器使用寿命的重要指标^[24]。为了评估所制备传感器的稳定性,对TPU/rGO 1.0传感器进行100次加载-卸载(200 kPa)测试,结果如图8所示。可见,在连续的加载-卸载循环测试中,传感器的最大 $\Delta C/C_0$ 几乎保持不变,稳定在0.2,没有表现出明显的疲劳。另外,图中对稳定性测试开始的前5次和终止的后5次循环的 $\Delta C/C_0$ 情况进行放大后发现, $\Delta C/C_0$ - t 曲线的重合程度很高,这表明该传感器具有良好的稳定性。

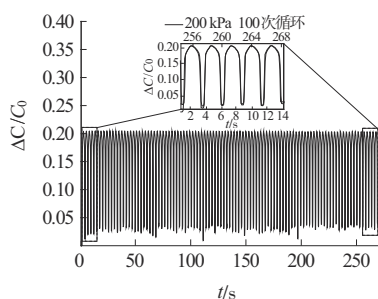
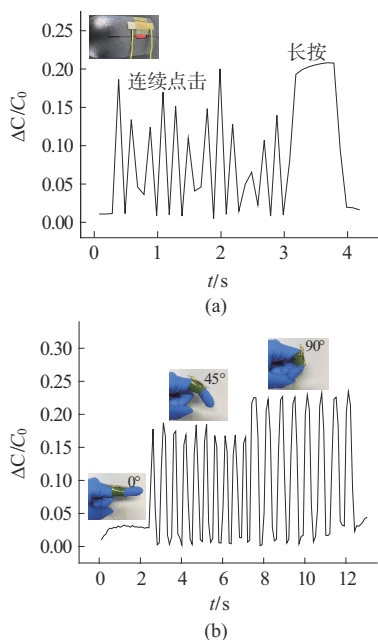


图8 TPU/rGO1.0传感器反复加卸载100次稳定性测试

2.6 传感器的应用

为探索所研制传感器的潜在应用,针对TPU/rGO1.0传感器,设计了不同的应用场景,检测其在不同压力源下电容变化。在人体运动实时监测方面,如图9a所示,使用PI胶带将TPU/rGO1.0传感器固定在鼠标表面,用手指点击鼠标,监测输出信号 $\Delta C/C_0$ 的变化情况,可以观察到,不同手指按压方式(连续点击和长按)下, $\Delta C/C_0$ 曲线明显不同,这表明传感器不仅可检测指端用力的大小,而且可以准确地区分指端用力方式。此外,将该传感器贴附在志愿者食指关节处,使其进行不同程度(0° , 45° , 90°)的重复弯曲变形。其响应曲线如图9b所示, $\Delta C/C_0$ 最大值随着食指弯曲程度的增加而增大。这表明该传感器也可用于人体弯曲载荷的监测。该传感器在智能假肢和柔性可穿戴领域有潜在应用前景。



a—鼠标点击响应;b—指关节弯曲响应

图9 TPU/rGO1.0传感器的鼠标点击响应和指关节弯曲响应

3 结论

在TPU基体中掺杂GO,使用熔融混炼的方法制备得到柔性TPU/rGO纳米复合材料片材,并以此为介电层,成功制备了电容式压力传感器。GO掺杂能显著改善其介电层的介电常数,进而提高传感器的灵敏度,在0.06~2 MPa的压强范围内,1.0% GO质量含量时传感器灵敏度相较于不添加GO的提高了50%。且该传感器表现出小的迟滞误差、快速响应特性和良好的稳定性。基于其优越的性能,该传感器可良好地区分指尖用力的方式和监测指关节弯曲变形的程度,这表明其在可穿戴设备和电子皮肤等领域具有广泛的应用前景。

参考文献

- [1] Wang J, Li L W, Zhang L S, et al. Flexible capacitive pressure sensors with micro-patterned porous dielectric layer for wearable electronics[J]. Journal of Micromechanics and Microengineering, 2022, 32(3). DOI:10.1088/1361-6439/ac49a3.
- [2] Yu P T, Li X, Li H Y, et al. All-fabric ultrathin capacitive sensor with high pressure sensitivity and broad detection range for electronic skin[J]. ACS Applied Materials & Interfaces, 2021, 13(20): 24 062-24 069.
- [3] Ma Z L, Wei A J, Li Y T, et al. Lightweight, flexible and highly sensitive segregated microcellular nanocomposite piezoresistive sensors for human motion detection[J]. Composites Science and Technology, 2021, 203. DOI:10.1016/j.compscitech.2020.108571.
- [4] Guan X, Wang Z Y, Zhao W Y, et al. Flexible piezoresistive sensors with wide-range pressure measurements based on a graded nest-like architecture[J]. ACS Applied Materials & Interfaces, 2020, 12(23):26 137-26 144.
- [5] Yu Q Y, Zhang J. Flexible capacitive pressure sensor based on a double-sided microstructure porous dielectric layer[J]. Micromachines, 2022, 14(1). DOI:10.3390/mi14010111.
- [6] 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). DOI: 10.3390/polym12061412.
- [7] Yang Y, Pan H, Xie G Z, et al. Flexible piezoelectric pressure sensor based on polydopamine-modified BaTiO₃/PVDF composite film for human motion monitoring[J]. Sensors and Actuators A: Physical, 2020, 301. DOI:10.1016/j.sna.2019.111789.
- [8] Luo J Q, Zhang L B, Wu T, et al. Flexible piezoelectric pressure sensor with high sensitivity for electronic skin using near-field electrohydrodynamic direct-writing method[J]. Extreme Mechanics Letters, 2021, 48. DOI:10.1016/j.eml.2021.101279.
- [9] Yang P, Shi Y X, Li S Y, et al. Monitoring the degree of comfort of shoes in-motion using triboelectric pressure sensors with an ultra-wide detection range[J]. ACS Nano, 2022, 16(3):4 654-4 665.
- [10] Masihi S, Panahi M, Maddipatla D, et al. Highly sensitive porous

- PDMS-based capacitive pressure sensors fabricated on fabric platform for wearable applications[J]. *ACS Sensors*, 2021, 6(3): 938–949.
- [11] Huang L X, Wang H, Zhan D H, et al. Flexible capacitive pressure sensor based on laser-induced graphene and polydimethylsiloxane foam[J]. *IEEE Sensors Journal*, 2021: 1 – 1. DOI: 10.1109/JSEN.2021.3054985.
- [12] Liu F, Han F, Ling L, et al. An omni-healable and highly sensitive capacitive pressure sensor with microarray structure[J]. *Chemistry – A European Journal*, 2018, 24(63):16 823–16 832.
- [13] Park B, Jung Y, Ko J S, et al. Self-restoring capacitive pressure sensor based on three-dimensional porous structure and shape memory polymer[J]. *Polymers*, 2021, 13(5): 824. DOI: 10.3390/polym13050824.
- [14] Wang J, Lou Y Y, Wang B, et al. Highly sensitive, breathable, and flexible pressure sensor based on electrospun membrane with assistance of AgNW/TPU as composite dielectric layer[J]. *Sensors*, 2020, 20(9). DOI:10.3390/s20092459.
- [15] Zhao S F, Ran W H, Wang D P, et al. 3D dielectric layer enabled highly sensitive capacitive pressure sensors for wearable electronics[J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2020, 12(28):32 023–32 030.
- [16] Li R Q, Dong K, Panahi-Sarmad M, et al. Three-dimensional printing of a flexible capacitive pressure sensor array in the assembly network of carbon fiber electrodes and interlayer of a porous polyurethane dielectric[J]. *ACS Applied Electronic Materials*, 2021, 3(9):3 999–4 008.
- [17] Ke K, McMaster M, Christopherson W, et al. Highly sensitive capacitive pressure sensors based on elastomer composites with carbon filler hybrids[J]. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 2019, 126. DOI:10.1016/j.compositesa.2019.105 614.
- [18] Zhang P, Zhang J, Li Y X, et al. Flexible and high sensitive capacitive pressure sensor with microstructured electrode inspired by ginkgo leaf[J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2021, 54 (46):465401. DOI:10.1088/1361–6463/ac1ddc.
- [19] 侯若男, 彭同江, 孙红娟, 等. 氧化石墨烯及热还原产物对 CH_4 和 H_2 的敏感性能研究[J]. *功能材料*, 2015, 46(16):16 079–16 085.
- [20] 侯若男, 彭同江, 孙红娟, 等. 氧化石墨烯及热还原产物对 CH_4 和 H_2 的敏感性能研究[J]. *功能材料*, 2015, 46(16):16 079–16 085.
- [20] 王奇, 漏琦伟, 樊占奎, 等. 碳纳米管掺杂对聚二甲基硅氧烷薄膜相对介电常数的影响[J]. *材料科学与工程学报*, 2022, 40(1): 57–61.
- [20] Wang Qi, Lou Qiwei, Fan Zhankui, et al. Relative permittivity of PDMS with doped carbon nanotubes[J]. *Journal of Materials Science & Engineering*, 2022, 40(1):57–61.
- [21] Li W, Jin X, Zheng Y D, et al. A porous and air gap elastomeric dielectric layer for wearable capacitive pressure sensor with high sensitivity and a wide detection range[J]. *Journal of Materials Chemistry C*, 2020, 8(33):11 468–11 476.
- [22] Kim Y, Yang H, Oh J H. Simple fabrication of highly sensitive capacitive pressure sensors using a porous dielectric layer with cone-shaped patterns[J]. *Materials & Design*, 2021, 197. DOI: 10.1016/j.matdes.2020.109203.
- [23] Zheng R L, Wang Y Y, Zhang Z X, et al. High sensitivity and broad detection range flexible capacitive pressure sensor based on rGO cotton fiber for human motion detection[J]. *Smart Materials and Structures*, 2022, 31(2): 025019. DOI: 10.1088/1361 – 665X/ac3c07.
- [24] Lin M F, Cheng C, Yang C C, et al. A wearable and highly sensitive capacitive pressure sensor integrated a dual-layer dielectric layer of PDMS microcylinder array and PVDF electrospun fiber [J]. *Organic Electronics*, 2021, 98. DOI: 10.1016/j.orgel.2021.106290.

(上接第7页)

- [24] Liu X Y, Guo Z S, Krebs K A, et al. Laboratory evaluation of polychlorinated biphenyls encapsulation methods[J]. *Indoor and Built Environment*, 2016, 25(6):895–915.
- [25] 刘胜凯. 汉麻纤维增强聚丙烯复合材料 VOC 释放及性能研究 [D]. 天津: 天津工业大学, 2016.
- [25] Liu Shengkai. Study on VOC release and properties of hemp fiber reinforced polypropylene composites[D]. Tianjin: Tiangong University Tianjin Polytechnic University, 2016.
- [26] Luis A, Santini C C, Chalamet Y, et al. Removal of volatile organic compounds from bulk and emulsion polymers: a comprehensive survey of the existing techniques[J]. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2019, 58(27):11 601–11 623.
- [27] 奚桢浩, 仇泉逸, 赵玲. 聚合物高效脱挥技术进展[J]. *化工进展*, 2019, 38(1):80–90.
- [28] Xi Zhenhao, Qiu Xiaoyi, Zhao Ling. Advances in high-efficiency polymer devolatilization[J]. *Chemical Industry and Engineering Progress*, 2019, 38(1):80–90.
- [28] 徐磊. 高密度聚乙烯熔体中气泡演化特性及挤出脱挥过程强化 [D]. 杭州: 浙江大学, 2021.
- [28] Xu Lei. Characteristics of bubble evolution in high density polyethylene melt and strengthening of extrusion devolatilization process.[D]. Hangzhou: Zhejiang University, 2021.
- [29] He Z K, Zhang Y P, Wei W J. Formaldehyde and VOC emissions at different manufacturing stages of wood-based panels[J]. *Building and Environment*, 2012, 47:197–204.
- [30] Kim K W, Lee B H, Kim S, et al. Reduction of VOC emission from natural flours filled biodegradable bio-composites for automobile interior[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2011, 187(1-3):37–43.