

锯齿状水凝胶传感器的制备及传感性能

doi:10.3969/j.issn.1674-7100.2021.02.010

陈卓 马振萍
经鑫

湖南工业大学
包装与材料工程学院
湖南 株洲 412007

摘要: 针对水凝胶柔性传感器存在低灵敏度和弱稳定性的缺陷, 通过设计具有优异回弹性和小横截面积的锯齿状水凝胶, 以提升水凝胶传感器的灵敏度及稳定性。首先, 通过3D打印制备锯齿状模具, 再将聚丙烯酰胺溶液注入模具进行交联, 然后, 用VHB双面胶封装制备基于锯齿状水凝胶的传感器, 最后, 对其进行人体运动传感测试, 并以无结构片状水凝胶的传感器作为对比实验, 验证锯齿状水凝胶对水凝胶传感器灵敏度和稳定性的提升。结果表明, 基于锯齿状水凝胶的传感器表现出更为稳定的信号输出, 并且可以检测到细小应变的运动, 如吞咽、皱眉等。锯齿状水凝胶传感器有望用于电子皮肤传感器和软机器人等领域, 为其高度灵敏、稳定可靠的传感系统提供新策略。

关键词: 锯齿状结构; 水凝胶; 灵敏度; 稳定性

中图分类号: TQ427.2⁺6; TP212.6

文献标志码: A

文章编号: 1674-7100(2021)01-0081-08

引文格式: 陈卓, 马振萍, 经鑫. 锯齿状水凝胶传感器的制备及传感性能[J]. 包装学报, 2021, 13(2): 81-88.

1 研究背景

随着科技发展和人们生活品质的提升, 可穿戴式和可拉伸电子产品在柔性电子设备中的适用性问题已得到广泛研究, 其中传感器是新一代柔性电子设备的核心部件。研究人员受人体皮肤组织特性的启发, 将导电纳米材料(如碳纳米管(carbon nano tube, CNT)、石墨烯(graphene)及金属纳米粒子)与柔性基材(如弹性体(elastomer)、水凝胶(hydrogel))

相结合制备柔性传感器^[1], 具有良好的柔顺性和可拉伸性, 能够均匀覆盖在不规则物体的表面, 在电子皮肤和软体机器人等领域具有广阔的应用空间^[2]。复合弹性体材料如聚氨酯(polyurethane, PU)、聚对苯二甲酸乙二醇酯(polyethylene glycol terephthalate, PET)等因具有一定的弹性和稳定性^[3-5], 广泛用于制造可拉伸柔性传感器。然而, 弹性体有限的拉伸性能限制了其在柔性应变传感器中的应用。水凝胶是由天然高分子或人工合成高分子材料在水溶液中

收稿日期: 2020-11-29

基金项目: 湖南省自然科学基金资助面上项目(2020JJ4266); 湖南省教育厅科学研究优秀青年项目(18B297)

作者简介: 陈卓(1999-), 男, 湖南株洲人, 湖南工业大学硕士生, 主要研究方向为基于水凝胶的柔性传感器的制备及应用, E-mail: 1435184167@qq.com

通信作者: 经鑫(1987-), 女, 河南商丘人, 湖南工业大学教授, 博士, 主要从事生物可降解材料及柔性纳米器件的研究, E-mail: jingxin@hut.edu.cn

通过物理或化学交联作用形成的一种具有三维(3D)交联网络结构、包含大量水或离子液体的柔性材料。水凝胶具有良好的生物相容性、可降解性、环境适应性以及与人体生理环境较高相似性,这些良好的特性使水凝胶成为理想的柔性基体材料,被广泛应用于柔性传感器件的制备^[6-7]。

灵敏度(gauge factor, GF)是柔性传感器重要的传感参数,决定了传感器的实际价值和使用范围。水凝胶柔性传感器的灵敏度主要与水凝胶基材中导电填料形成的导电通路,以及水凝胶基材的长度及横截面积相关。迄今为止,科学家已经研发并制备了多种纳米导电材料,在水凝胶基质中掺杂导电粒子后,可以赋予或提高水凝胶的导电性,从而使水凝胶具有更明显的压阻特性^[8]。氧化石墨烯(graphene oxide, GO)表面含有大量的亲水基团,在水中的分散性较好,因此,GO广泛应用于复合水凝胶的制备^[9-11]。Zhang N. N.等^[12]通过原位聚合制备了GO/聚丙烯酰胺(polyacrylamide, PAM)水凝胶。但石墨烯的共轭网络结构在氧化过程中被严重破坏^[13],故其只能用作水凝胶的增强填料或吸附填料。MXene是一种新兴的二维无机化合物材料,具有出色的亲水性、强机械性能和高导电性能^[14],然而分子间因范德华力和氢键的存在易发生聚集,故其在凝胶体系中的分散性不好,致其性能降低^[15-16]。大部分导电填料虽然能在一定程度上提高水凝胶的导电性和灵敏度,但由于导电填料与水凝胶基体之间显著的物理化学差异,使得导电填料在水凝胶中含量较高时极易发生团聚;且因具有较多的导电通路,导致材料的灵敏度降低。为解决上述问题,近年来研究发现,在以水凝胶为基材引入功能性单元形成的双导电网络能够有效提高水凝胶传感器的灵敏度。Zhu F. B.等^[17]采用模版辅助印刷法在凝胶表面实现了纳米银线的图案化,大大提高了凝胶传感器的灵敏度。但如何在韧性水凝胶表面构建高精度且具有良好稳定性的可拉伸图案化导电网络,还需要进一步研究。

此外,信号传输稳定性是柔性传感器的另一关键性能参数。水凝胶传感器的稳定性与水凝胶的形变恢复即弹性密切相关,然而较好的弹性和良好的力学强度往往不可兼得,因此,制备同时拥有良好力学性能和稳定性的水凝胶柔性传感器是一个巨大的挑战。近年来,研究人员基于能量耗散机制,即在水凝胶的设计中牺牲部分化学键或网络,使其在形变时能够有

效分散外部能量,避免应力集中,从而提高水凝胶的强度或韧性^[18-21]。Lu Y.等^[22]通过羟醛缩合反应和冻融合成了聚乙烯醇/聚乙烯吡咯烷酮(polyvinyl pyrrolidone, PVP)双网络水凝胶,所得双网络(double network, DN)水凝胶显示出优异的机械性能,但由于断裂的化学交联网络缺乏动态性,无法在断裂后进行重建,从而表现出较差的弹性。将可逆的物理交联网络引入到DN水凝胶中是提高DN水凝胶抗疲劳性能的有效方法,但制备过程比较复杂;除此之外,它们形变后的恢复往往需要外界刺激才能实现^[23-24]。

基于此,本研究通过宏观结构设计,把水凝胶制备成线型结构,使其横截面积显著减小,从而有效提高水凝胶传感器的灵敏度;此外,将水凝胶注入到设计的模板中进行交联,得到锯齿状水凝胶,借助锯齿结构优异的回弹性能提高水凝胶的形变恢复能力,以提升水凝胶传感器的稳定性。该方法制备过程简便,且避免了在力学强度和弹性之间进行选择的窘境,在日后的工业化生产中具有较好的发展前景。

2 结构设计

2.1 设计原理

为了增强水凝胶的导电性,往往会在水凝胶基质中掺杂导电粒子,以形成导电路径。施加外力拉伸水凝胶的过程中,导电粒子的位置会发生改变,致使部分初始状态下相互接触的导电粒子会断开连接,从而使导电通路减少,电阻逐渐增大。撤出外力后,水凝胶因自身的弹性逐渐恢复形变,这一过程中,导电路径也会随着导电粒子的重新接触而连通,电阻也减小到初始值。除此之外,拉伸过程中水凝胶的电阻与形变具有对应关系,几何形状的变化也是引起水凝胶电阻变化的重要因素。水凝胶制备的柔性应变传感器可以通过读取电阻的变化获得水凝胶的形变信息。

根据水凝胶传感器的传感原理可知,水凝胶的弹性差会导致传感器的输出信号出现严重的迟滞现象和不稳定性;水凝胶的几何形状也会影响传感器的灵敏度。为解决上述问题,受弹簧在被拉伸后产生形变,且当外力撤消后,能够迅速恢复原状的启发,本研究通过改变宏观结构即把水凝胶制备成回弹性能优良的弹簧状或锯齿状结构,在不改变水凝胶组分的情况下提高水凝胶传感器的稳定性。但由于弹簧状水凝胶制作成型困难且不易于后续的封装,本研究选择制备

锯齿状水凝胶。锯齿状水凝胶除了具备良好的回弹性外, 相较于常见的片状水凝胶, 其还具有极小的横截面积, 可看作线材, 具有更高的灵敏度。在监测人体运动时, 因为动作幅度一般不超过 100%, 故较细的线型结构锯齿状水凝胶也能够提供监测各种人体运动所需的力学强度而不发生断裂。

2.2 结构尺寸对灵敏度影响的探究

水凝胶中含有水和 Na^+ , 故可将水凝胶当作导体, 根据公式 (1) 计算其电阻 (R)。

$$R = \rho \times \frac{L}{A}, \quad (1)$$

式中: ρ 为导体的电导率, 与材料相关, 在拉伸形变过程中不发生改变; L 和 A 分别为导体的长度和横截面积, 拉伸变形过程中 L 变大而 A 变小 (如图 1 所示), 是引起导体电阻变化的主要因素。

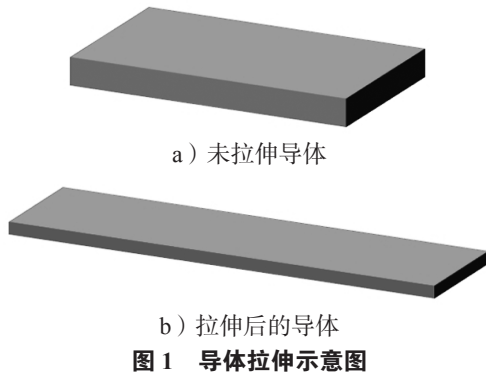


Fig. 1 Schematic diagram of conductor stretching

设导体初始长度为 L_0 , 横截面积为 A_0 , 拉伸之后分别变为 L_1 、 A_1 , 因为体积不变, 所以 $A_0 \times L_0 = A_1 \times L_1$ 。拉伸前电阻 $R_0 = \rho \times \frac{L_0}{A_0}$, 拉伸后电

阻 $R_1 = \rho \times \frac{L_1}{A_1}$ 。

$$\frac{R_1}{R_0} = \frac{\rho \times \frac{L_1}{A_1}}{\rho \times \frac{L_0}{A_0}} = \frac{L_1}{L_0} \times \frac{A_0}{A_1} = \frac{A_0 \times L_0}{A_1 \times L_0} \times \frac{A_0}{A_1} = \left(\frac{A_0}{A_1} \right)^2, \quad (2)$$

$$\frac{\Delta R}{R_0} = \frac{R_1}{R_0} - 1 = \left(\frac{A_0}{A_1} \right)^2 - 1 = \left(\frac{A_0}{A_0 - y} \right)^2 - 1 = \left(\frac{1}{1 - \frac{y}{A_0}} \right)^2 - 1. \quad (3)$$

式中 y 表示横截面积的减少量, 相同应变下即 y

相等时, A_0 越小则 $\frac{\Delta R}{R_0}$ 越大。

传感器的灵敏度 (gauge factor, GF) 可由式 (4) 进行计算。

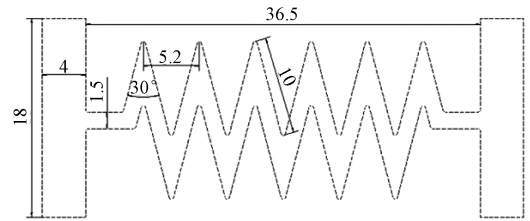
$$GF = \frac{(R_1 - R_0) / R_0}{\varepsilon} = \frac{\frac{\Delta R}{R_0}}{\varepsilon}, \quad (4)$$

式中 ε 为应变。

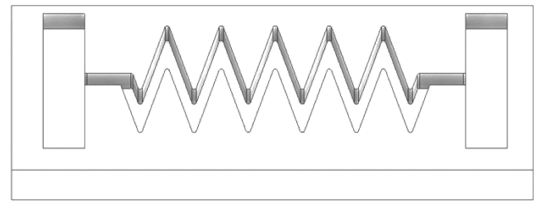
由式 (4) 可知, 在相同应变下, $\frac{\Delta R}{R_0}$ 越大, 其灵敏度越高。从上述推导可知, 水凝胶传感器的横截面积越小, 其灵敏度越高。

2.3 结构与尺寸

为了使锯齿状水凝胶获得更好的回弹性能, 需要增加更多的锯齿数量, 这就需要减小锯齿两边长之间的夹角和锯齿的宽度。然而过小的锯齿宽度会极大地增加水凝胶剥离的难度并降低其力学性能。本研究设计的锯齿状水凝胶的结构尺寸及其 PLA 模板的 3D 模拟图如图 2 所示, 尺寸单位为 mm。



a) 锯齿状结构尺寸



b) PLA 模板的 3D 模拟图

图 2 结构尺寸图与模板 3D 模拟图

Fig. 2 Structure size drawing and template 3D simulation drawing

如图 2a 所示, 综合考虑打印精确度、剥离可行性以及锯齿数量, 本研究先确定锯齿的宽度为 1.5 mm, 然后改变锯齿两边长之间的夹角。随夹角的逐渐减小, 锯齿的数量得到增加, 但当夹角小于 30° 时, 不能成型锯齿结构, 所以确定锯齿宽度为 1.5 mm, 夹角为 30° , 这既能保持锯齿状结构又可以增加锯齿数量, 提高传感器的稳定性。此外, 每个锯齿

的边长均为 10 mm, 相邻两锯齿齿顶的距离均为 5.2 mm。左右两边各有一个矩形 (18 mm × 4 mm), 这是便于交联完成后取出水凝胶。图 2b 中, 水凝胶的厚度由 PLA 模板的深度决定。水凝胶的横截面积越小其灵敏度越高, 原则上希望水凝胶的厚度尽可能的小, 但 3D 打印机的精度为 ±0.1 mm, 厚度最小要大于 1.0 mm, 否则 PLA 模板表面粗糙不平整。本研究制备了两种厚度 (1.0 mm、1.5 mm) 的锯齿状水凝胶, 如图 3 所示。当 PLA 模板深度为 1.0 mm 时, 水凝胶表面粗糙不平整, 不能成型锯齿状水凝胶; 当深度为 1.5 mm 时, 成型效果较好。故本研究确定水凝胶厚度为 1.5 mm。

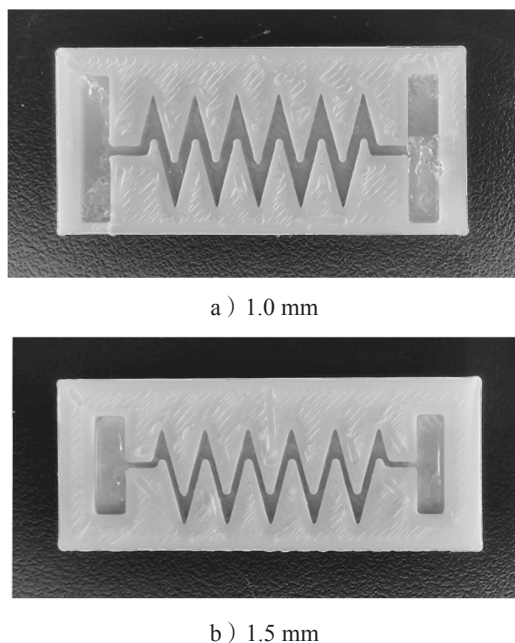


图 3 不同厚度锯齿状水凝胶的交联效果
Fig. 3 Cross-linking effect of zigzag hydrogel of different thickness

3 实验

3.1 原料与仪器设备

1) 主要原料

聚乳酸 (polylactic acid, PLA), 线材, 直径为 1.75 mm, 购于深圳创想三维科技有限公司; 丙烯酰胺 (acrylamide, AM, AR, 纯度为 99%)、氯化钠、N, N'-亚甲基双丙烯酰胺 (N, N'-methylenebisacrylamide, MBAA, 纯度为 99%)、过硫酸铵 (ammonium persulphate, APS, AR, 纯度不低于 98%), 均购于阿拉丁试剂有限公司。实验过程中用到的水均为去离

子水。

2) 主要仪器设备

电子万能试验机, EUT250 型, 深圳三思检测技术有限公司; 数字万用表, BK PRECISION 878B 型, 深圳市茂旭电子科技有限公司; 电化学工作站, CHI 760e 型, 上海辰华仪器有限公司; 超声波机, JP-100S 型, 深圳市洁盟清洗设备有限公司; 真空干燥箱, DZF-6050 型, 上海捷呈实验仪器有限公司; 磁力搅拌器, MYP11-BA 型, 上海梅颖浦仪器仪表制造有限公司。

3.2 样品的制备

1) PLA 模板的制备

首先, 利用 3D 建模软件 inventor 绘制 3D 模型, 再将其导出为 stl 格式, 然后用切片软件 Creaform Slicer 将 stl 文件转换为 gcode 格式导入 3D 打印机, 用直径 1.75 mm 的 PLA 线材进行打印, 3D 打印头温度设定为 200 °C, 底座温度设定为 45 °C, 打印时底座上铺一层美纹胶, 防止模型在打印过程中滑动。

2) 锯齿状水凝胶传感器的制备

将 0.045 0 g 氯化钠加入 5 mL 去离子水中, 超声溶解 2 min 配置成生理盐水; 将 0.936 0 g AM 加入至上述生理盐水中, 冰浴条件下搅拌 30 min; 将 0.015 9 g APS 加入上述溶液中, 冰浴条件下搅拌 30 min; 将 0.000 6 g MBAA 加入到上述溶液中, 冰浴条件下搅拌 10 min, 待其恢复到室温后, 脱气以消除气泡, 然后用吸管将溶液缓慢注入到打印的模型中, 再将模型放置在培养皿中, 密封后置于烘箱中 60 °C 下交联 2 h, 即可获得带有锯齿结构的水凝胶。使用导电水凝胶作为传感材料, VHB 胶带作为弹性基材和密封材料, 将水凝胶封装在 VHB 胶带之间, 以防止水蒸发, 并在两端引出导电胶带, 以制备应变传感器。

为验证锯齿状结构水凝胶具有更高的灵敏度和更好的稳定性, 用上述方法制备的水凝胶裁剪相同外尺寸的非结构片状水凝胶进行对比实验。

3.3 样品的测试

1) 循环拉伸测试

使用电子万能试验机以 20 mm/min 的速度分别拉伸锯齿状结构和非结构片状水凝胶传感器, 使其变形到标距长度的 100%, 在拉伸过程中用数字万用表记录传感器的电阻值。循环拉伸 5 次比较两种水凝胶传感器的稳定性; 循环拉伸 100 次验证传感器的耐疲

劳性。

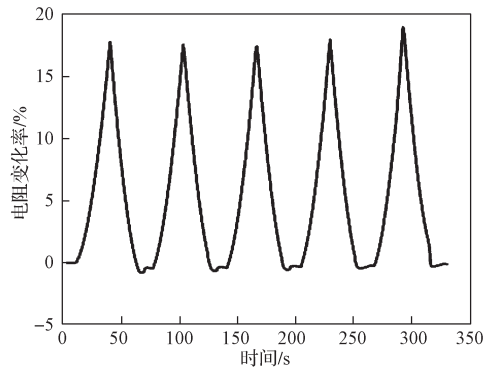
2) 人体运动监测

将水凝胶传感器粘附在人体(如指关节, 手腕, 喉咙)上, 通过导电碳胶带连接到电化学工作站上, 选择 $i-t$ 模式、电压为 5 V、采样时间为 0.1 s, 监测和记录人体做不同运动时电化学工作站显示的电流的变化。

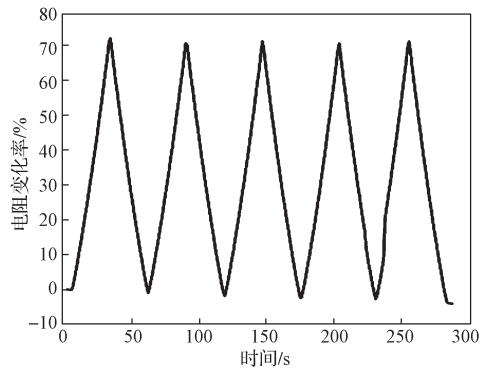
4 结果与分析

4.1 循环拉伸测试

图 4 为锯齿状水凝胶传感器及无结构片状水凝胶传感器 5 次循环拉伸测试得到的 $\Delta R/R_0-t$ 曲线图。



a) 锯齿状水凝胶传感器



b) 无结构片状水凝胶传感器

图 4 循环拉伸测试曲线

Fig. 4 Cycle tensile test curves

由图 4 可知, 基线和可重现的信号数据变化可忽略不计, 锯齿状水凝胶表现出稳定的时间特性; 与传统的无结构片状水凝胶传感器相比, 锯齿状水凝胶传感器具有更高的可逆性。因此, 本研究开发的锯齿状水凝胶传感器可以输出非常精确且可重复的信号, 将其应用于具有监测人体运动功能的可穿戴设备时, 能有效提升设备的使用性能。

随后对锯齿状水凝胶传感器的耐疲劳性做进一步测试, 获得的电阻与时间曲线如图 5 所示。

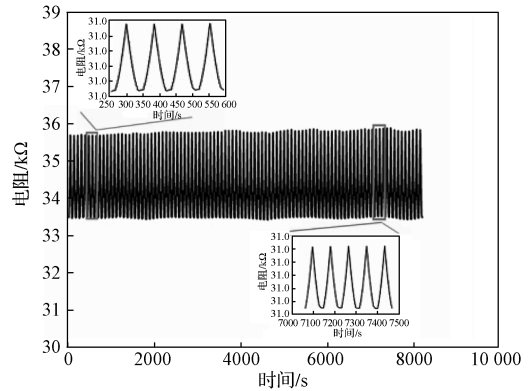


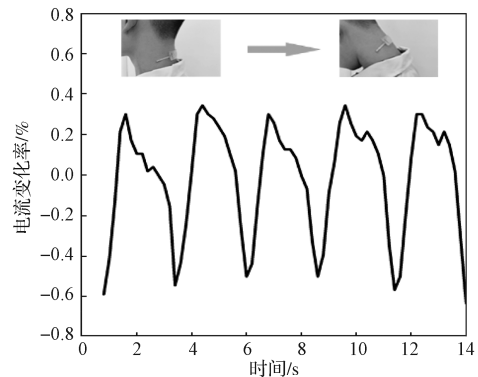
图 5 锯齿状水凝胶传感器 100 次循环曲线

Fig. 5 Zigzag hydrogel sensor 100 cycles curve

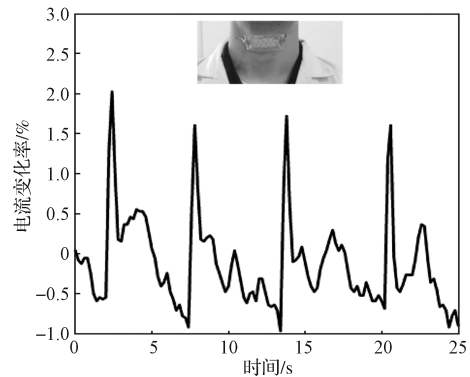
由图 5 可知, 随时间的变化, 水凝胶传感器的电阻基本保持稳定, 且测试开始阶段与末尾阶段的循环曲线基本保持一致, 由此证明了锯齿状水凝胶传感器的耐用性及使用的稳定性。

4.2 运动传感

图 6 为锯齿状水凝胶应变传感器监测人体不同运动时的信号曲线与组装实物图。



a) 低头动作



b) 吞咽动作

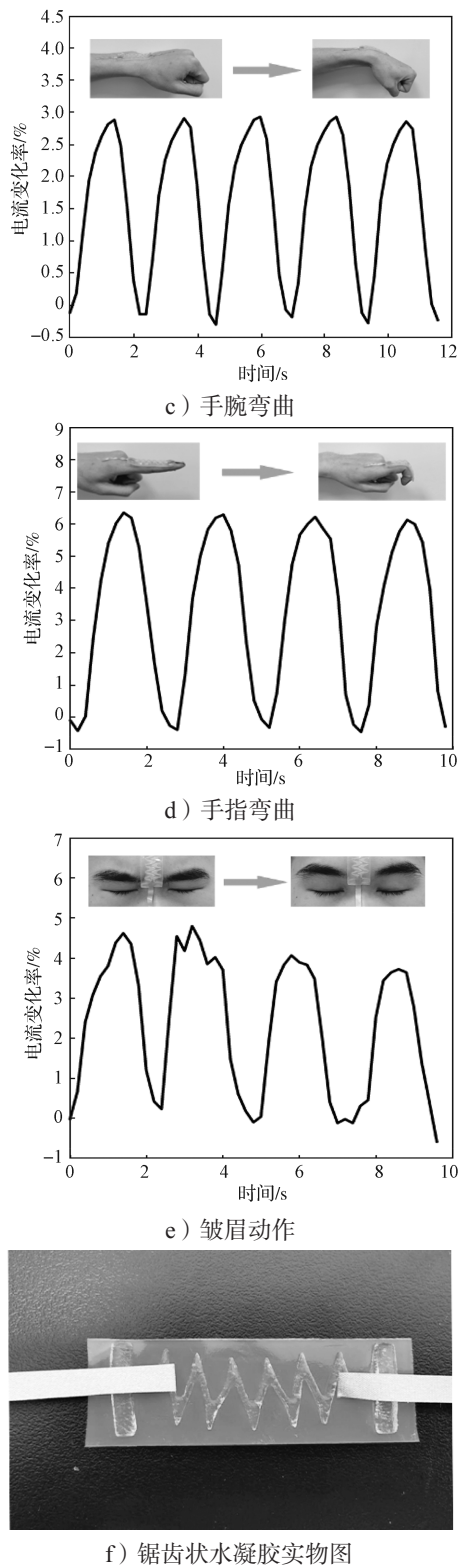


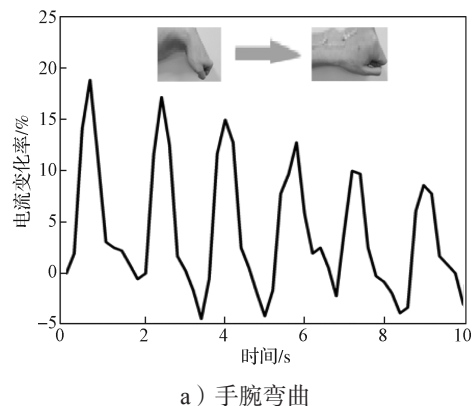
图6 锯齿状水凝胶应变传感器在人体运动监测中的信号曲线图与组装实物图

Fig. 6 The signal curve diagram of the zigzag hydrogel strain sensor in human motion monitoring and assembly diagram

图6a显示的是将锯齿状传感器粘附在人体后颈部位、检测抬头,低头动作输出的信号曲线。由图6a可知,随着人体有节奏的低头再抬头,传感器输出有规律的曲线。这是由于将水凝胶传感器粘附在人体后颈上,低头时传感器被拉伸,长度增加而横截面积减小,使得电阻增加,从而导致电流减小;在抬头的过程中,电流又逐渐恢复到原始状态。在整个过程中锯齿状水凝胶的响应行为是稳定且可重复的。图6b显示的是将传感器粘附到喉咙处,检测喉部吞咽动作输出的规律性信号曲线。锯齿状水凝胶传感器对更小形变的吞咽动作也能表现出稳定可重复的响应。手腕和手指的运动方式相似,当传感器粘附在关节处,该传感器能够成功检测到手腕和手指的弯曲运动,其信号曲线分别如图6c~d所示,整体过程传感器对两种动作的响应是稳定的且重复性较好。图6e显示的是把传感器粘附到眉心处,检测皱眉动作输出的信号曲线。相比于其它动作,皱眉程度不易控制一致且动作幅度较小,故其信号曲线平稳性稍差。此外,图6e出现基线下移现象可能是由测试过程中皱眉幅度不足导致传感器应变减小引起的,但整个过程仍可获得明显的信号变化。

为进一步对比锯齿状水凝胶传感器与无结构片状水凝胶传感器对检测信号的区别,本研究对无结构片状水凝胶传感器检测人体运动信号进行分析。实验过程中无结构片状水凝胶传感器不能检测到低头、吞咽、皱眉等小幅度动作的规律性信号。无结构片状水凝胶传感器对手腕、手指弯曲输出的信号曲线如图7所示。

由图7可知,无结构片状水凝胶传感器输出信号的稳定性及重复性较差,且基线随着时间的延长向下发生偏移,这是因为水凝胶的回弹性能差,从而导致无结构片状水凝胶不能完全恢复到初始状态。



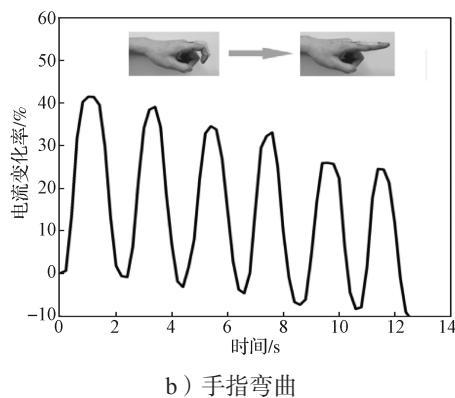


图7 无结构片状水凝胶应变传感器在人体运动监测中的信号曲线图

Fig. 7 Signal curve diagram of unstructured sheet-like hydrogel strain sensor in human motion monitoring

通过对比图6~7,分析锯齿状水凝胶传感器与无结构片状水凝胶传感器检测不同幅度规律性的动作,得到了两种传感器相应的 $\Delta I/I_0$ 随时间的规律性变化。与无结构片状水凝胶相比,锯齿状结构水凝胶的横截面积要小得多,其灵敏度也更好,故锯齿状水凝胶传感器能够检测吞咽、皱眉、低头等小幅度动作且输出信号可重复、稳定性好;而无结构片状水凝胶传感器则不能检测吞咽、皱眉、低头等小幅度动作且输出信号平稳性较差。

5 结语

本研究通过宏观结构的设计再经交联得到具备锯齿状结构的水凝胶,借助锯齿结构的优异回弹性能和线型截面,达到提高水凝胶柔性应变传感器的稳定性、减小其低检测极限的效果。经循环拉伸试验可知:锯齿状水凝胶传感器 $\Delta R/R_0-t$ 曲线的基线比无结构片状水凝胶传感器更为平稳的,表明在卸载外部载荷后,锯齿状水凝胶能够快速恢复其形变,从而降低信号收集的迟滞性。通过运动传感检测可知,锯齿状水凝胶可检测手指、手腕关节弯曲运动,还可检测到抬头、皱眉、吞咽等细微动作,并输出稳定且可重复的信号。鉴于此,本研究验证了锯齿状结构设计的可行性和合理性,为提高水凝胶传感器的灵敏度和稳定性提供了新的设计思路。

参考文献:

[1] HAMMOCK M L, CHORTOS A, TEE C K, et al.

25th Anniversary Article: The Evolution of Electronic Skin (E-Skin): A Brief History, Design Considerations, and Recent Progress[J]. *Advanced Materials*, 2013, 25(42): 5997-6038.

- [2] CAI G F, WANG J X, QIAN K, et al. Strain Sensors: Extremely Stretchable Strain Sensors Based on Conductive Self-Healing Dynamic Cross-Links Hydrogels for Human-Motion Detection[J]. *Advanced Science*, 2017, 4(2). DOI: 10.1002/advs.201770010.
- [3] YAO H B, GE J, WANG C F, et al. A Flexible and Highly Pressure-Sensitive Graphene-Polyurethane Sponge Based on Fractured Microstructure Design[J]. *Advanced Materials*, 2013, 25(46): 6692-6698.
- [4] CHOI T Y, HWANG B U, KIM B Y, et al. Stretchable, Transparent, and Stretch-Unresponsive Capacitive Touch Sensor Array with Selectively Patterned Silver Nanowires/Reduced Graphene Oxide Electrodes[J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2017, 9(21): 18022-18030.
- [5] FU X, RAMOS M, AL-JUMAILY A M, et al. Stretchable Strain Sensor Facilely Fabricated Based on Multi-Wall Carbon Nanotube Composites with Excellent Performance[J]. *Journal of Materials Science*, 2019, 54(3): 2170-2180.
- [6] ZHANG W, FENG P, CHEN J, et al. Electrically Conductive Hydrogels for Flexible Energy Storage Systems[J]. *Progress in Polymer Science*, 2019, 88: 220-240.
- [7] KANG J, TOK J B -H, BAO Z N. Self-Healing Soft Electronics[J]. *Nature Electronics*, 2019, 2(4): 144-150.
- [8] JING X, WANG X Y, MI H Y, et al. Stretchable Gelatin/Silver Nanowires Composite Hydrogels for Detecting Human Motion[J]. *Materials Letters*, 2019, 237: 53-56.
- [9] HUANG J H, ZHAO L, WANG T, et al. NIR-Triggered Rapid Shape Memory PAM-GO-Gelatin Hydrogels with High Mechanical Strength[J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2016, 8(19): 12384-12392.
- [10] PAUL A, HASAN A, KINDI H A, et al. Injectable Graphene Oxide/Hydrogel-Based Angiogenic Gene Delivery System for Vasculogenesis and Cardiac Repair[J]. *ACS Nano*, 2014, 8(8): 8050-8062.
- [11] HE S F, ZHANG F, CHENG S Z, et al. Synthesis of Sodium Acrylate and Acrylamide Copolymer/GO Hydrogels and Their Effective Adsorption for Pb^{2+} and Cd^{2+} [J]. *ACS Sustainable Chemistry & Engineering*,

- 2016, 4(7): 3948–3959.
- [12] ZHANG N N, LI R Q, ZHANG L, et al. Actuator Materials Based on Graphene Oxide/Polyacrylamide Composite Hydrogels Prepared by in Situ Polymerization[J]. *Soft Matter*, 2011, 7(16): 7231–7239.
- [13] JING X, MI H Y, PENG X F, et al. Biocompatible, Self-Healing, Highly Stretchable Polyacrylic Acid/Reduced Graphene Oxide Nanocomposite Hydrogel Sensors via Mussel-Inspired Chemistry[J]. *Carbon*, 2018, 136: 63–72.
- [14] WANG Q H, PAN X F, LIN C M, et al. Modified Ti_3C_2TX (MXene) Nanosheet-Catalyzed Self-Assembled, Anti-Aggregated, Ultra-Stretchable, Conductive Hydrogels for Wearable Bioelectronics[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2020, 401: 126129.
- [15] XIU L Y, WANG Z Y, YU M Z, et al. Aggregation-Resistant 3D MXene-Based Architecture as Efficient Bifunctional Electrocatalyst for Overall Water Splitting[J]. *ACS Nano*, 2018, 12(8): 8017–8028.
- [16] ZHAO M Q, XIE X Q, REN C E, et al. Hollow MXene Spheres and 3D Macroporous MXene Frameworks for Na-Ion Storage[J]. *Advanced Materials*, 2017, 29(37): 1702410.
- [17] ZHU F B, ZHENG S Y, LIN J, et al. Integrated Multifunctional Flexible Electronics Based on Tough Supramolecular Hydrogels with Patterned Silver Nanowires[J]. *Journal of Materials Chemistry C*, 2020, 8(23): 7688–7697.
- [18] GONG J P, KATSUYAMA Y, KUROKAWA T, et al. Double-Network Hydrogels with Extremely High Mechanical Strength[J]. *Advanced Materials*, 2003, 15(14): 1155–1158.
- [19] LI J Y, ILLEPERUMA W R K, SUO Z G, et al. Hybrid Hydrogels with Extremely High Stiffness and Toughness[J]. *ACS Macro Letters*, 2014, 3(6): 520–523.
- [20] OKUMURA Y, ITO K. The Polyrotaxane Gel: A Topological Gel by Figure-of-Eight Cross-Links[J]. *Advanced Materials*, 2001, 13(7): 485–487.
- [21] SUN J Y, ZHAO X, ILLEPERUMA W R, et al. Highly Stretchable and Tough Hydrogels[J]. *Nature*, 2012, 489(7414): 133–136.
- [22] LU Y, QU X Y, ZHAO W, et al. Highly Stretchable, Elastic, and Sensitive MXene-Based Hydrogel for Flexible Strain and Pressure Sensors[J]. *Research*, 2020(11). DOI: 10.34133/2020/2038560.
- [23] CHEN Y N, PENG L F, LIU T Q, et al. Poly(Vinyl Alcohol)-Tannic Acid Hydrogels with Excellent Mechanical Properties and Shape Memory Behaviors[J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2016, 8(40): 27199.
- [24] GONG J P. Why are Double Network Hydrogels so Tough?[J]. *Soft Matter*, 2010, 6(12). DOI: 10.1039/b924290b.

(责任编辑: 李玉华)

Preparation and Sensing Performance of Zigzag Hydrogel Sensors

CHEN Zhuo, MA Zhenping, JING Xin

(College of Packaging and Materials Engineering, Hunan University of Technology, Zhuzhou Hunan 412007, China)

Abstract: Due to the low sensitivity and weak stability of the hydrogel flexible sensor, the sensitivity and stability of the hydrogel sensor were improved by designing a zigzag hydrogel with excellent resilience and a small cross-sectional area. First, a zigzag mold was prepared by 3D printing, and a polyacrylamide solution was cast into the mold for cross-linking. Then, a sensor based on the zigzag hydrogel was encapsulated with VHB double-sided tape and tested for human motion sensing. Finally, a sensor based on an unstructured sheet-like hydrogel was selected as a control group to verify the improvement in the sensitivity and stability of the hydrogel sensor by the serrated hydrogel. Experimental results showed that the sensor based on the zigzag hydrogel exhibited a more stable signal output and could detect small strain movements such as swallowing and frowning. Zigzag hydrogel sensors were expected to provide a new strategy for the development of highly sensitive, stable and reliable sensing systems for electronic skin sensors and soft robots.

Keywords: zigzag structure; hydrogel; sensitivity; stability