A PDMS-Copper Film Composite Electrode for Pressure Sensing*

SUN Changfei[1], *SONG Hanqiong*[2], *SHENG Zeliang*[3], *SONG Yongxin*[2]*

(1. *Jiangsu Maritime Vocational and Technical College, Nanjing Jiangsu* 211170, *China*; 2. *Marine Engineering College, Dalian Maritime University, Dalian Liaoning* 116026, *China*; 3. *Weichai Power Co., Ltd., Weifang Shandong* 26100, *China*)

Abstract: This paper reports a novel pressure sensing method and system with a PDMS-copper film composite electrode. When the composite electrode is pressurized, the PDMS film is deformed and rub with the copper film. Due to the electrification effect, the surface charge densitiy of the copper film is increased which results in an increase in the amount of charges stored in the electric double layer (EDL) capacitor formed at the PDMS-copper interface. Due to the constant capacitance of the EDL capacitor, the electric potential of the copper will be increased accordingly. Based on this prcinple, the applied pressure can be sensed. Experimental results show that the changing rate of the magnitude of the detected signals is proportional to that of the applied pressure. The magnitude of the detected signals is inversely proportional to the thickness of the PDMS. The system proposed in this paper is simple in construction and operation with high sensitivity, thus provides a new idea for the development of novel soft pressure sensor.

Key words: pressure detection; piezoelectric conversion; PDMS-copper electrode; double layer capacitance

EEACC: 1265A; 1290; 2560 **doi**: 10.3969/j.issn.1004-1699.2021.11.007

聚二甲基硅氧烷-铜膜复合电极的压力检测研究*

孙长飞[1], 宋涵琼[2], 盛泽良[3], 宋永欣[2]*

(1. 江苏海事职业技术学院, 江苏 南京 211170; 2. 大连海事大学轮机工程学院, 辽宁 大连 116026;
3. 潍柴动力股份有限公司, 山东 潍坊 261000)

摘 要: 本文报道了一种利用聚二甲基硅氧烷(PDMS)-铜膜复合电极进行压力检测的方法和系统。在 PDMS-铜膜复合电极上施加压力时, PDMS 发生形变并与之接触的铜膜进行摩擦, 使铜电极表面电荷密度增加, PDMS-铜膜界面双电层(EDL)电容的电荷量也随之增加。由于双电层电容电容量不变, 因此铜膜的电势会随之增加。通过检测铜膜电势的变化, 可检测外界压力的变化情况。实验结果表明: 检测系统输出电压的变化率正比于外加压力的变化率, 输出电压的幅值反比于 PDMS 薄膜的厚度。因此, 根据检测信号的幅值以及变化率, 可以判定外加压力的大小以及变化率。本方法具有结构简单、灵敏度高和操作方便等特点, 为发展新型柔性无源压力传感器提供了新的思路和方法。

关键词: 压力检测; 压电转换; PDMS-铜膜电极; 双电层电容

中图分类号: TP212 **文献标识码**: A **文章编号**: 1004-1699(2021)11-1458-05

传感器在现代工业自动化和智能化进程中发挥了重要作用[1]。近年来, 随着现代科技的快速发展以及人们生活水平的提高, 柔性压力传感器受到了学术界和工业界的广泛关注, 成为研究热点之一[2-5]。柔性传感器在人体健康监测、智能机器人、可穿戴电子设备和人机交互等方面[6-8]展现出较好的应用前景。

目前柔性传感器主要有电阻式、电容式、压电式以及摩擦起电式[9]。电阻式柔性传感器通过在柔性基底中掺入石墨烯、碳纳米管等材料可以制作较高精度以及灵敏度的柔性压阻材料[10], 或者直接将压敏电阻集成到柔性基底中制成压敏元件[11]。但该方法需要外加电源, 并且需要精密的电流检测仪表, 从而限制了其在电源受限或无法配置电源等场景的应用。

电容式柔性传感器利用压力改变平行板电容器电容的原理实现压力检测, 较为常见的柔性电容传感器以聚二甲基硅氧烷(PDMS)作为介电弹性体[12], 电容的变化可以通过改变柔性基底表面的形态、结构及材料等来实现[13-15], 在电极层和介电层表面设计的微结构可有效提高传感器的灵敏度[16]。此外, 金属层与 PDMS 层之间增加聚酰亚胺可以增

项目来源: 国家自然科学基金(51679023)

收稿日期: 2021-06-24 **修改日期**: 2021-07-30

强器件抗机械拉伸度及其电学性能的稳定[17]。虽然电容式传感器具有性能稳定等特点[18],但是制作工艺复杂并且需要复杂的检测仪器。

压电式柔性传感器是利用压电材料在应力作用下产生极化电场,从而产生电压和电流信号[19-21]。柔性压电式通常采用压电聚合物[22]作为压电材料,具有耐久性好、力学稳定性强等优点,但这些压电材料通常需要进行极化处理,而且输出信号的直流响应较差[23]。

基于上述分析,从发展结构更为简单,能够实现不同应用场景下的压力检测角度出发,本文提出了一种利用柔性材料(PDMS)与金属薄膜在压力作用下相互摩擦进行压电信号转换的方法,分析了其工作机理,实验研究了其压力检测的性能和变化规律。

1　系统组成及工作原理

图 1 示出了检测系统的组成及工作原理。如图 1(a)所示,本系统主要由复合电极压力传感器、静电计以及计算机组成。复合电极压力传感器自上而下分别为亚克力板(PMMA)、铜膜、PDMS 和亚克力板。导线一端与铜膜连接,另一端与皮安表正极连接,皮安表负极接地,皮安表的输出端与计算机相连,并通过 LabView[24]程序采集和显示检测信号。

图 1(b)示出了该系统的工作原理。理论上看,任何物质都会自发带电,对于复合电极压力传感器中的 PDMS 和铜膜来说,由于 PDMS 具有较强的电负性,因此 PDMS 表面会带有一定量的负电荷,而与之接触的铜膜表面会相应的带有一定量的正电荷(q_1)并具有一定的电势(U_1),从而形成了双电层电容(EDLC)。当有压力施加在复合电极上方的 PMMA 时,由于 PDMS 为柔性材料,在压力的作用下,PDMS 会和铜膜发生横向相对移动。根据摩擦起电原理,PDMS 表面会带有更多的负电荷,相应的,铜片表面会带有更多的正电荷,即会有一定量的电子从铜电极转移到接地端,此时,铜电极的电荷和电势分别变为 q_2 和 U_2。

由于双电层电容可表示为:

$$C_{\mathrm{EDL}}=\frac{\varepsilon_0\varepsilon_i}{\lambda}=\frac{q}{U} \tag{1}$$

式中:q 为双电层的电荷密度,U 为双电层的电势,ε_0 为真空介电常数,ε_i 为介电层相对介电常数,λ 为双电层电容间距。对于双电层电容,λ 很小(30 nm~100 nm)且几乎不变,当检测电极的材料和尺寸一定时,该双电层电容保持不变,铜膜表面的电势正比于表面电荷密度。因此,当有压力施加在检测电极时,由于 PDMS 与铜膜摩擦产生了更多的电荷(表面电荷密度变大),铜膜的电势也相应增加,即会产生一个向上的电压脉冲信号。理论上,施加的压力越大,PDMS 的形变也越大,相应的,产生的脉冲信号的幅值也越大。因此,通过脉冲信号的个数和幅值,可以判定外界压力的变化情况,如频率和大小等。

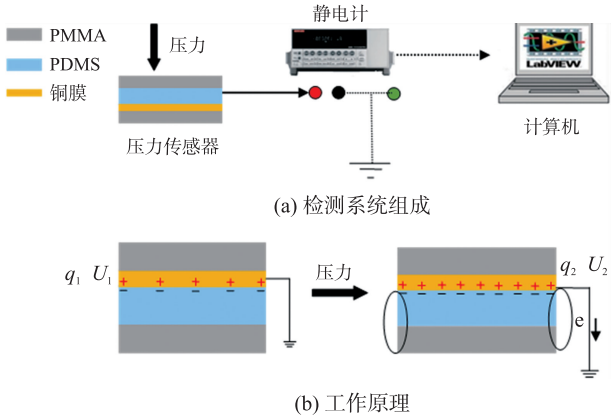


图 1　检测系统组成及工作原理

2　实验

2.1　材料

实验使用直径为 2 cm 的圆柱形复合电极,其中亚克力薄片的厚度为 3 mm,铜电极(AC-182000R,PYRALUX)厚度为 18 μm,其与 PMMA 接触侧表面有一层厚度为 20 μm 的聚酰亚胺薄膜,与 PDMS(Sylgard 184,Dow Corning,USA)接触侧无聚酰亚胺薄膜。

2.2　复合电极的加工

实验过程中使用了三种不同厚度 PDMS 薄膜(100 μm,1 mm 和 1 cm)。为制备 100 μm 厚度 PDMS 薄膜,首先将铜膜电极用双面胶固定载玻片上,然后将液体 PDMS 与固化剂按照质量比 10∶1 混合并经抽真空 1.5 h 后,使用旋涂机(Specialty Coating Systems USA/G3p-8)进行旋涂。旋涂机的转速为 800 r/min,旋涂时间 50 s。然后将表面旋涂有 PDMS 的载玻片置于 80 ℃的烘箱(Fisher Scientific,Pittsburgh,PA,USA/Isotemp model 280A)内加热 1.5 h~2 h。对于厚度 1 mm 和 1 cm 的 PDMS 圆片,将除气后的液态 PDMS(包括固化剂)直接倒入由 PMMA 制成的圆筒形模具,然后置于 80 ℃的烘箱(Fisher Scientific,Pittsburgh,PA,USA/Isotemp model 280A)内加热 1.5 h~2 h。最后,根据图 1(a)所示复合电极的结构组成,按顺序依次放置 PMMA 薄片、铜膜及 PDMS 薄片,并用胶带进行固定。

2.3　实验内容

本文采用在复合电极上方放置玻璃烧杯(直径 47 mm,高 60 mm)并在烧杯中加注不同体积纯水的方

法,来定量模拟施加在电极上压力变化情况。实验过程中,主要进行静载荷和动载荷两种压力实验。静载荷实验是将烧杯中加入一定体积的纯水后,直接置于复合电极上,然后测量系统电压信号的变化情况。动载荷实验是指盛有一定容积水的烧杯置于复合电极后,然后使用注射泵以不同的速率往烧杯中加注 10 mL 的水。最后,使用注射泵将注入烧杯中的 10 mL 水抽出,然后重新注入,进行重复实验。上述的实验均使用皮安表记录系统中电压的变化情况。

3 实验结果与讨论

3.1 静载荷典型检测信号

图 2 示出了 PDMS 厚度为 1 mm、静载荷 65 g 条件下测得的典型信号图,点 S_n 表示载荷加载到检测电极上的时刻,点 F_n 表示检测电压开始稳定的时刻,点 R_n 表示开始撤掉载荷的时刻(下标 n 代表第 n 次)。由图 2 可以看出,系统施加压力后,铜膜电极的电压会立刻上升至一定的数值,然后电压继续缓慢上升;撤掉压力后,铜膜电极的电压急剧下降[25]。比如第一次施加压力前,系统的电压值稳定在-3.38 V;施加载荷后(点 S_1),电压立刻上升点 F_1 所在处(电压为-3.1 V),并在此后一定时间内缓慢上升。施加压力电势后急剧升高的主要原因是由于 PDMS 在压力的作用下发生形变并与电极摩擦,增加了电极表面的电荷,由式(1)可知,铜膜电极的电势会相应升高。施加载荷后出现电压缓慢上升阶段(点 R 与点 F 时刻之间)则是由于 PDMS 在压力作用下继续形变造成的。当撤掉载荷后,PDMS 收缩导致其与铜膜间隙变大,从而使电极表面电荷不断消失。

应当注意的是,压力撤掉后,图 2 中最低点电压与未测量时并不相同,其主要原因是:和未施加压力相比,施加压力使 PDMS 与铜膜摩擦后,PDMS 表面的状态有一定的改变,导致表面电荷与未施加压力前有一定的差异,从而导致最低点电压与未测量时也有一定的差异。

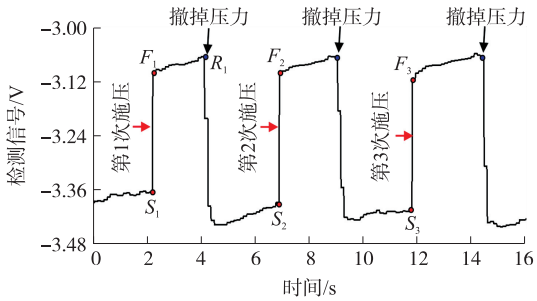


图 2 连续三次施压产生的典型检测信号
(65 g 载荷,1 mm 厚 PDMS)

由于施压后系统有一个非常明显的电势急剧上升特征阶段(F_n 与 S_n 时刻之间),因此研究电压变化量随随静载荷的变化规律显得尤为必要。图 3 综合示出了该阶段的电压变化量随随静载荷的变化情况。由图 3 可以明显看出,随施加在电极上载荷的增加,检测信号变化量随之变大。如当载荷为 35 g 时,检测信号的电压变化量为 0.047 V;而当载荷增加到 75 g 时,检测信号的电压变化量增加到 0.476 V。检测信号变化量随载荷增加而变大的主要原因是:随着施加载荷的增加,PDMS 的形变量也变大,PDMS 与铜膜的摩擦距离随之变大,摩擦过程产生的电荷也会越多,从而导致铜膜的电势变大。由图 3 还可以发现,检测信号变化量随施加的载荷是非线性变化的,这主要是由于不同载荷下摩擦产生的电荷不是线性变化所致。

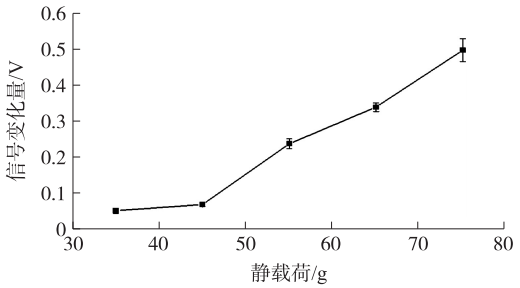


图 3 检测信号变化量随静载荷的变化关系
(PDMS 厚度为 1 mm)

3.2 动载荷的检测

图 4 为当 PDMS 厚度为 100 μm,以 30 mL/min 的注水速率抽水 10 mL 时,系统检测到的典型信号。注水前,烧杯中的水量为 30 mL,注水后烧杯的水量为 40 mL。A 点表示开始注水的时刻,B 点为停止注水的时刻,B 点与 A 点间的时间代表注水持续的时间。由图 4 可以看出,注水之前,系统的电压处于一个稳定值(2.682 V),开始注水后(A 点),电极的电压开始上升直至停止注水(B 点,3.107 V),即电压变化量为 0.425 V。当停止注水后,系统的电压开始缓慢下降至 C 点(2.682 V)。C 点至 D 点则是将

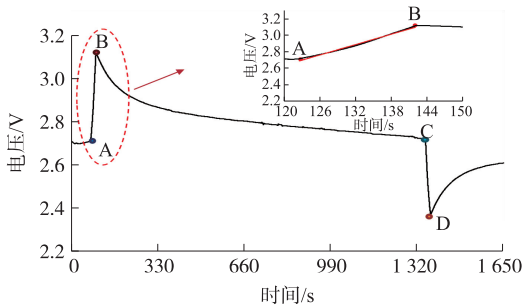


图 4 30 mL/min 注水速率动载荷实验信号图
(PDMS 厚度 100 μm)

烧杯内的水位由 40 mL 降至 30 mL 过程中，信号的变化情况。

注水过程中，由于施加在复合电极上的载荷不断增加，导致 PDMS 与铜电极持续进行摩擦，PDMS 表面电荷累积，从而导致铜电极的电势持续变大。当停止注水后，PDMS 表面的电荷会随时间不断减少，从而导致铜电极的电势逐渐降低至一个稳定值。抽水过程中（C 点至 D 点）电极电势的连续降低则主要是由于 PDMS 不断收缩导致电极表面电荷不断减少所致。将 A-B 段电压信号放大可以明显看出，连续注水过程中，电压信号近似呈线性增加（线性相关系数（R^2）为 0.991）。

由于连续注水过程中存在信号幅值线性增加（电压变化率）的特征阶段（图 4 中的 A 至 B 时刻之间），图 5 综合示出了电压变化率随 PDMS 厚度以及注水速率的变化关系。由图 5 可以看出，在 PDMS 厚度不变情况下，电压变化率随注水速率的增加而近似成线性增加（三条曲线的线性相关系数 R^2 均大于 0.97）。如当 PDMS 厚度为 1 cm，注射泵速度 10 mL/min 时，电压变化率为 0.056 7，而当泵速增加至 15 mL/min 时，电压变化率增加至 0.0832。而当注水速率相同时，电压变化率随 PDMS 厚度的增加而降低。此外，1 cm 与 1 mm 的 PDMS 薄膜在注水速率为 10 mL/min 时电压变化率较为接近，其可能的原因是：10 mL/min 的注水速率较小，而 1 cm 与 1 mm 的厚度又相对较大，因此，电压变化率差别较小。其实，从图 5 可以明显看出：在 10 mL/min 的注水速率下，100 μm 厚度薄膜的电压变化速率明显大于 1 cm 与 1 mm 的厚度的薄膜。

从图 5 还可以看出，按照曲线变化的趋势，1 mm 的 PDMS 薄膜的电压变化率最终将超过 100 μm 的 PDMS 薄膜的电压变化速率，其可能的原因为：PDMS 薄膜在不同注水速率下的形变量，即铜模的摩擦量与其厚度有关，这也可以从图 5 中不同厚度薄膜的曲线斜率看出。由于 100 μm 的厚度过小，其最大形变量也较小。在实际应用中，应根据不同的压力范围，选择合适厚度的薄膜。

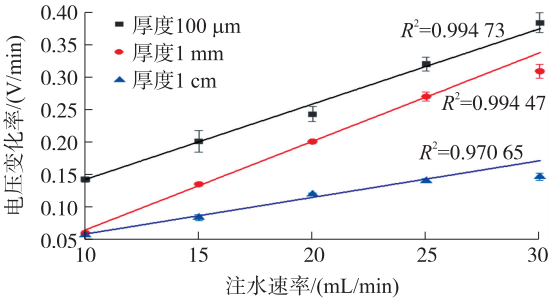


图 5　电压变化率与注水速率的相关性

上述变化规律可从能量守恒的角度来理解。根据能量守恒原理：

$$W=\Delta E \tag{2}$$

式中：W 为外界施加给检测电极的机械能，ΔE 为复合电极增加的电能，主要包括 PDMS 形变增加弹性势能（ΔE_1）以及摩擦起电增加的电势能（ΔE_2），即：

$$\Delta E=\Delta E_1+\Delta E_2 \tag{3}$$

PDMS 在压力作用下主要发生两种形变：横向延展与纵向压缩。横向延展会增加电极的电荷量，即增加系统的电势能；而纵向压缩主要增加 PDMS 的弹性势能。理论上，PDMS 越厚，纵向压缩量越大，储存的弹性势能越多，相应的电势能的增量越小。PDMS 越薄，其横向延展量与压缩量的比值越大，因此系统电势能增加的越多。

由于铜膜电极与 PDMS 可等效为一个电容器，其储存的电势能可表示为：

$$\Delta E_1=\frac{1}{2}C\Delta U^2 \tag{4}$$

式中：C 为 PDMS-铜膜界面双电层的电容，ΔU 为双电层电容的电势差，即系统检测到的电压信号幅值。理论上，影响平行板电容大小的因素是极板的面积和极板间离（双电层的厚度），通常来说，双电层的厚度为纳米级别，可认为保持不变，即 C 为常数。当在 PDMS 上方施加压力后，由于 PDMS 发生塑性变形，从而导致双电层极板的面积发生改变（变大），从而引起电容变化。因此，系统电势能的变化越大，电压变化量越大，即 PDMS 薄膜越薄，相同载荷产生的检测信号幅值越大。

此外，由于摩擦产生的电荷不会持久的在界面存在，即随时间的推移而逐渐缓慢消失。此外，每次施加压力使 PDMS 与铜膜摩擦后，PDMS 表面的状态有一定的改变，导致表面的静电荷与前一状态有一定的差异，从而导致每次施加压力前的极板电势有所不同。因此，无法用检测信号幅值（电势，相对于参考电势（零））来表征压力变化。理论上来看，PDMS 形变量相同时，摩擦产生的电荷量也应相同，即检测信号的变化量也应相同。因此，本文建立了检测信号的变化量和压力变化的关系。

4　结论

本文报道了一种利用 PDMS-铜膜复合电极进行压力检测的方法和系统。实验结果表明：检测系统输出电压的变化率正比于外加压力的变化率，输出电压的幅值反比于 PDMS 薄膜的厚度。因此，根据检测信号的幅值以及变化率可以判定外加压力的

大小以及变化率。本系统具有结构简单、成本低以及检测方法简单方便等特点,有望用于水下机器人、水下潜航器状态监测领域。

参考文献:

[1] 金凡,吕大伍,张天成,等. 基于微结构的柔性压力传感器设计、制备及性能研究进展[J]. 复合材料学报,2021,3(5):1-17.

[2] Wang Y M,Wang Y,Yang Y. Graphene-Polymer Nanocomposite-Based Redox-Induced Electricity for Flexible Self-Powered Strain Sensors[J]. Advanced Energy Materials,2018,8(22):1800961.

[3] Bijender,Kumar A,One-Rupee Ultrasensitive Wearable Flexible Low-Pressure Sensor[J]Acs Omega,2020,5(27):16944-16950.

[4] Chu J,Cai J P. Flexible Pressure Sensors with a Highly Pressure- and Strain-Sensitive Layer Based on Nitroxyl Radical-Grafted Hollow Carbon Spheres[J]. Nanoscale, 2020, 12(17): 9375-9384.

[5] Li Y,Wang S,Xiao Z C,et al. Flexible TPU Strain Sensors with Tunable Sensitivity and Stretchability by Coupling AgNWs with rGO[J]. 2020,8(12):4040-4048.

[6] 杨进,孟柯妤,王雪. 柔性压力传感技术及发展趋势[J]. 自动化仪表,2021,42(1):1-9.

[7] 何子俊,曾庆,巩泽,等. 基于柔性传感器的可穿戴设备在康复领域中的应用[J]. 康复学报,2021,31(3):258-264.

[8] Avelino K Y P S,Oliveira L S,Lucena-Silva N,et al. Flexible Sensor Based on Conducting Polymer and Gold Nanoparticles for Electrochemical Screening of HPV Families in Cervical Specimens[J]. Talanta,2021,226:122118.

[9] 梁立容,李宁,魏爱香. 柔性可穿戴压力传感器的研究进展[J]. 应用化工,2020,49(10):2645-2648.

[10] 杨海艳,李延斌,熊继军,等. 柔性压力传感器研究进展[J]. 应用化工,2018,47(12):2701-2704.

[11] Li F C,Kong Z,Wu J H,et al. Advances in Flexible Piezoresistive Pressure Sensor[J]. Acta Physica Sinica,2021,70(10):100703.

[12] Zhang Y,Ahmadi M,Timm G,et al. An Instrumented Urethral Catheter with a Distributed Array of Iontronic Force Sensors[J]. Annals of Biomedical Engineering,2020,49(1):149-161.

[13] Bunge C A,Kallweit J,Colakoglu L,et al. Analysis of Fibre Cross-Coupling Mechanisms in Fibre-Optical Force Sensors[J]. Sensors, 2021,21(7):2402.

[14] Muthoka R M,Roy S,Kim H C,et al. Polydopamine-Cellulose Nanofiber Composite for Flexible Electrode Material[J]. Smart Materials and Structures,2021,30(3):035025.

[15] Ratan S,Kumar C,Kumar A,et al. Room Temperature High Hydrogen Gas Response in Pd/TiO_2/Si/Al Capacitive Sensor[J]. Micro and Nano Letters,2020,15(9):632-635.

[16] Siangkhio Y,Rangkasikorn A,Tammarugwattana N,et al. The Enhancement of Sensitivity and Response Times of PDMS-Based Capacitive Force sensor by Means of Active Layer Modification[J]. Japanese Journal of Applied Physics,2021,60(SC):SCCE09.

[17] Gong T B,Zhao Y,Zhao Y L,et al. Design and Manufacturing of a High-Sensitivity Cutting Force Sensor Based on AlSiCO Ceramic [J]. Micromachines,2021,12(1):63.

[18] Yu H,Liang J G,Wang C,et al. Target Properties Optimization on Capacitive-Type Humidity Sensor: Ingredients Hybrid and Integrated Passive Devices Fabrication[J]. Sensors and Actuators B—Chemical,2021,340:129883.

[19] Han M,Lee J,Kim J K,et al. Highly Sensitive and Flexible Wearable Pressure Sensor with Dielectric Elastomer and Carbon Nanotube Electrodes[J]. Sensors and Actuators: A. Physical, 2020,305:111941.

[20] Waseem A,Johar M A,Hassan M A,et al. Flexible Self-Powered Piezoelectric Pressure Sensor Based on GaN/p-GaN Coaxial Nanowires[J]. Journal of Alloys And Compounds, 2021, 872:159661.

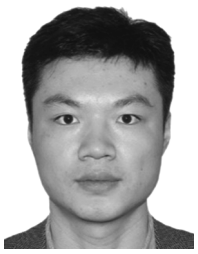
[21] Xue Y M,Zhou C J,Zhang X Y,et al. A Flexible High Quality-Factor Bulk Acoustic Resonator Enabled with Transferred Single-crystal Piezoelectric Thin Film for Sensing Applications[J]. Sensors and Actuator A—Physical,2021,326:112721.

[22] 张锦桐,周刚,陈桂婷,等. 电极与介电层褶皱接触对压电式柔性电子皮肤性能的影响[J]. 复合材料学报,2020,37(12):3194-3200.

[23] Kim K,Ahn J,Choi J,et al. All-Soft Multiaxial Force Sensor Based on Liquid Metal for Electronic Skin[J]. Micro and Nano Systems Letters,2021,9(1):2.

[24] 张佳,贾文武. 基于 LabVIEW 的经纬仪运动参数采集系统设计[J]. 自动化与仪表,2021,36(2):64-68.

[25] Han G S,Su YF,Nantung T,et al. Mechanism for Using Piezoelectric Sensor to Monitor Strength Gain Process of Cementitious Materials with the Temperature effect[J]. Journal of Intelligent Material Systems and Structures,2021,32(10):1128-1139.



孙长飞(1979—),男,江苏海事职业技术学院副教授,主要研究方向为船舶动力装置节能技术与智能控制,20060173@jmi.edu.cn;



宋永欣(1977—),男,博士、教授、博士生导师,主要从事微纳米流体、智能传感器技术以及微流控芯片便携式仪器研发等方面的工作,yongxin@dlmu.edu.cn。