http://pmse.scu.edu.cn

碳纳米管协同银@石墨烯改性氟硅橡胶复合材料的制备及应变传感性能

何 山[1], 吴畏慰[1], 郑 佳[2], 张晨熙[1], 王 煜[1], 任瑞阳[1], 苏 建[2], 谭徜彬[1,3]

(1. 四川轻化工大学 材料科学与工程学院, 四川 自贡 643000; 2. 宜宾五粮液股份有限公司, 四川 宜宾 644000;
3. 材料腐蚀与防护四川省重点实验室, 四川 自贡 643000)

摘要:针对目前单一填料制备的柔性应变传感材料逾渗阈值高、力敏性能差等缺点,采用一维填料碳纳米管(CNT)和原位合成的高电导率且性能稳定的银@石墨烯(AG)复合填料协同改性氟硅橡胶(FSR),利用具有不同几何效应复合填料的协同作用制备了 CNT/AG/FSR 复合材料。结果表明,AG 导电填料性能稳定且结构可控。适量 CNT 和 AG 均匀分散在 FSR 基体中,形成了三维导电网络。CNT/AG/FSR 复合材料在 0~35% 应变响应范围内具有高度线性响应,灵敏度(GF)为 11.79,线性相关系数达 0.99。将其组装成柔性应变传感器后,在不同拉伸应变范围和运动频率下均呈现出稳定且可重复的电阻信号。可以准确监测颈部抬头、手指运动、手肘运动和膝盖弯曲等人体动作,有望应用于具有大应变响应需求的可穿戴设备和人体运动监测领域。

关键词:碳纳米管;银@石墨烯;氟硅橡胶;应变传感
中图分类号:TB332 **文献识别码**:A **文章编号**:1000-7555(2026)04-0052-09

随着信息技术的飞速发展,以柔性导电复合材料为基体的电阻式应变传感材料具有质轻、柔韧性好、应变响应范围广、易加工、性质稳定等优势[1],在人体运动监测[2]、电子皮肤[3]人机界面[4]等领域具有重要的应用价值和发展前景。通常,将导电金属[5]、碳系导电填料[6,7]及导电聚合物[8]与柔性基体[6,7,9]复合可以制备基于逾渗网络的填充型柔性应变传感复合材料[10,11]。然而,对于传统的单一填料填充的聚合物导电复合材料,往往需要添加大量的导电粒子才能实现绝缘到导电的转变,导致填充型聚合物导电复合材料熔体黏度增加、难以加工且拉伸性能下降,无法满足应用要求。

将 2 种或 2 种以上不同维度的填料复合,不仅可以促进填料分散,降低逾渗阈值,还可以利用不同维度填料的协同效应促进填料分散,降低逾渗阈值,同时改善材料的拉伸性能[11~13]。Zheng 等[2]采用溶液共混方法制备了炭黑/碳纳米管/聚二甲基硅氧烷(CB/CNTs/PDMS)柔性应变传感材料,CB/CNT 复合结构赋予应变传感材料优异的导电性和宽的应变响应范围(约 300% 应变),但进行重复拉伸循环时有肩峰现象出现,影响了试样的重复性。Liu 等[14]采用溶液絮凝-热压工艺制得了具有可调控应变响应行为的碳纳米管/石墨烯/热塑性聚氨酯(CNT/G/TPU)导电纳米复合材料,系统研究了复合填料所构建的导电网络与单一导电网络的差异,进一步探究了 CNT 和 G 复合的最佳比例。Yang 等[15,16]制备了 CNT/G/PDMS 复合材料,G 和 CNT 之间组成的导电网络较大程度降低了复合材料的逾渗阈值,并且在循环加载下电阻响应单调且敏感度高。石墨烯具有优异的电子性能和力学性能,是二维(2D)碳纳米

doi: 10.16865/j.cnki.1000-7555.2025.0203
收稿日期: 2025-05-28
基金项目: 五粮液集团公司产学研使用项目(CXY2021ZR001); 自贡市科技局四川大学自贡市校地科技合作专项项目(2024CDZG-18); 大学生创新创业训练计划(S202410622035); 四川轻化工大学研究生创新基金资助项目(Y2024063)
通讯联系人: 谭徜彬, 主要从事高性能高分子复合材料研究, E-mail: tanchangbin@qq.com

材料的代表。银纳米粒子(AgNPs)具有优异的导电和导热性能,然而,AgNPs 与柔性基底间的黏附力较差,易从基底脱落。将 AgNPs 和石墨烯复合可以显著改善 AgNPs 与基体复合的问题。作为一维(1D)材料,碳纳米管是一种有前景的候选材料,具有高导电性、大纵横比和良好的强度。将一维碳纳米管与二维石墨烯复合,构建交联导电网络是优化电子皮肤灵敏度和可拉伸性的有效策略。

本文以具有优异耐燃油性能和耐高低温的氟硅橡胶(FSR)为基体[17],在氧化石墨烯表面原位生长银纳米颗粒,合成了银@石墨烯(AG)复合导电填料,将其与碳纳米管复合,利用不同尺度填料在空间上的协同效应制备了碳纳米管/银@石墨烯/氟硅橡胶(CNT/AG/FSR)复合应变传感材料。系统研究了氟硅橡胶复合材料的微观结构、电学性能和电阻-应变响应特性,为应变传感器用于人体关节运动监测提供了理论依据。

1　实验部分

1.1　主要原料

乙烯基氟硅生胶(VFS):句容市福赛尔高新材料有限公司;碳纳米管:牌号 NC7000,平均长度为 1.5 μm,平均直径为 9.5 nm,比利时 Nanocyl 公司;氧化石墨烯(GO):常州第六元素材料科技股份有限公司;过氧化二异丙苯(DCP):重庆北碚化学试剂厂;三(羟甲基)氨基甲烷(Tris)、盐酸多巴胺(DA·HCl)、葡萄糖($C_6H_{12}O_2\cdot H_2O$):上海阿拉丁生化科技股份有限公司;盐酸(HCl)、硝酸银($AgNO_3$):重庆川东化工(集团)有限公司;氢氧化钠(NaOH)、氨水($NH_3\cdot H_2O$):成都市科隆化学品有限公司;去离子水(DI):实验室自制。所有化学品均为分析纯,无需进一步处理直接使用。

1.2　实验过程

1.2.1　*银@石墨烯复合填料的制备*:采用超声波细胞粉碎机(SCIENTZ-II D,宁波新芝生物科技股份有限公司)配置 2 mg/mL 氧化石墨烯水溶液,在磁力搅拌作用下利用三(羟甲基)氨基甲烷盐酸盐缓冲液(Tris-HCl)调节上述溶液 pH 至 8.5,按 GO 与 DA·HCl 质量比为 2∶1 向上述溶液中加入 DA·HCl,室温条件下搅拌 12 h 制得聚多巴胺还原氧化石墨烯(PDA@G),洗涤抽滤冻干待用。再将一定量的 PDA@G 在去离子水中超声分散均匀。将按 PDA@G∶$AgNO_3$ 质量比为 1∶8.5 配置的 1 mol/L 的银氨溶液加入到超声分散均匀的 PDA@G 分散液中,利用二氨合银离子与 PDA@G 间的络合作用,二氨合银离子附着于 PDA@G 表面,加入过量葡萄糖,静置得灰色沉淀,将所得沉淀用去离子水和酒精反复交替洗涤除去杂质后充分干燥,即可得到银修饰聚多巴胺还原氧化石墨烯复合填料。PDA@G 是银纳米颗粒结晶成核的位点,有利于 Ag^+ 在 PDA@G 表面原位结晶还原生长得到 AG。流程如 Fig.1(a)所示。

1.2.2　*碳纳米管/银@石墨烯/氟硅橡胶复合材料的制备*:使用双辊开炼机(SK-160,东莞市正工机电设备科技有限公司)将按比例称量的 AG 与 VFS 混炼均匀,随后加入 CNT 进一步混炼,再加入 1 phr DCP 充分混炼。所得混合物经平板硫化机(YF-8017,扬州市源峰实验机械厂)硫化成型。硫化温度为 150 ℃,压力为 10 MPa,热压 15 min 后冷压 10 min,即可得到 xCNT/yAG/FSR 复合材料(其中 x 为 CNT 的体积分数,固定为 0.5%;y 为 AG 的体积分数,分别为 8%,11%,16%,19% 和 22%)。同样地,采用上述方法,制得 0.5CNT/FSR 和 16AG/FSR 复合材料。流程如 Fig.1(b)所示。

1.3　测试与表征

1.3.1　*晶体结构表征*:采用德国 Bruker AXE 公司的 D2 PHASER 型 X 射线衍射仪(XRD)对 AG 复合填料进行晶体结构表征。射线源为 Cu Ka 靶,扫描角度为 5°~90°,扫描步长为 0.02°,扫描频率为 2(°)/min,电流为 10 mA,电压为 30 kV。

1.3.2　*微观形貌表征*:采用德国 ZEISS 公司的 Sigma 300 ASAP 型扫描电子显微镜-X 射线能量色谱(SEM-EDS)在 15 kV 的加速电压下观察 AG 复合填料的微观形貌并进行面扫描元素分析(试样表面喷金处理);在 3 kV 的加速电压下观察复合材料断面的填料分布(复合材料在液氮中浸泡 1 h 脆断后再表面喷金处理)。

1.3.3　*导电性能测试*:当复合材料的电阻>10^6 Ω 时,采用高阻计(ZC36,上海精密科学仪器有限公司)进行测量。当电阻<10^6 Ω,使用数字万用表(6517B,Keithley Instruments,Inc,美国 Ohio)进行测量。测

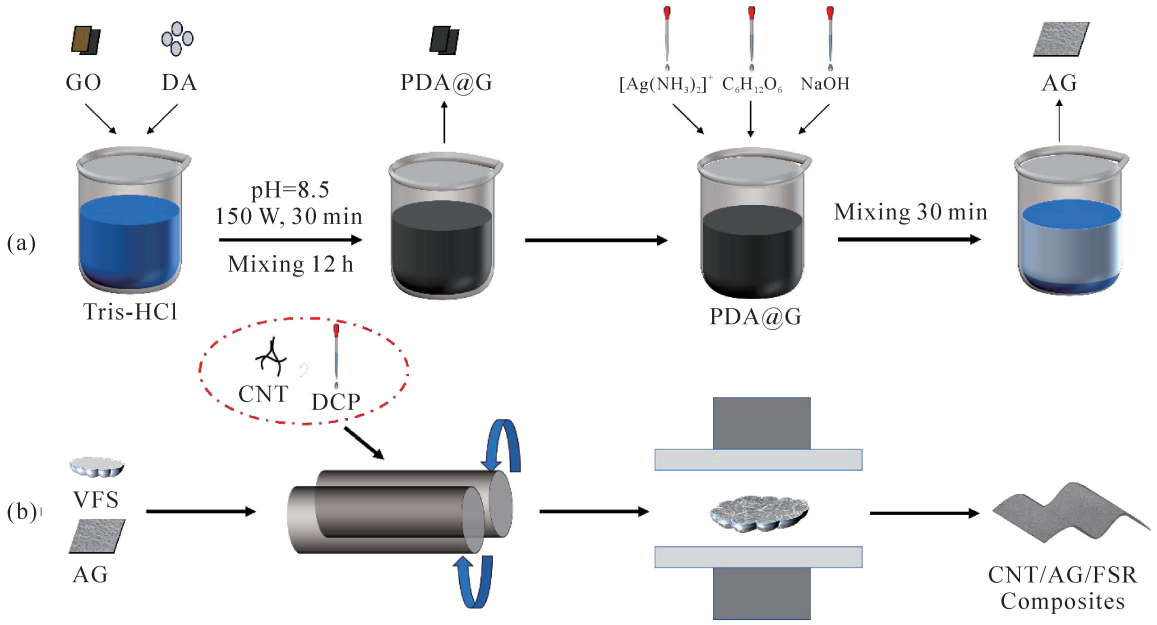


Fig. 1 Schematic illustration of the fabrication of (a) AG conductive filler and (b) CNT/AG/FSR composites

试 5 个样并取平均值。体积电导率(σ)与理论逾渗阈值(p_c)分别由式(1)和(2)计算

$$\sigma = L/(R \times S) \tag{1}$$

式中:σ——试样的体积电导率,S/m;L——两电极间的距离,m;R——试样的体积电阻,Ω;S——试样与电极间的接触面积,m^2。

$$\sigma \propto (p - p_c)^t \tag{2}$$

式中:p——导电填料的体积分数,%;σ——柔性应变传感材料的电导率,S/m;t——标度因子,用于推测柔性应变传感材料中导电网络的几何维度。

1.3.4 电阻-应变响应性能测试:采用电子万能试验机(CMT 4104,MTS 系统(中国)公司)与数字万用表结合的方式测定拉伸速率为 50 mm/min 时,尺寸为 50 mm×4 mm×0.3 mm 的哑铃型试样的电阻值在不同应变作用下的变化。并依据测试结果计算试样的灵敏度(GF),计算式如式(3)所示

$$GF = \frac{\Delta R/R_0}{\varepsilon} = \frac{(R - R_0)/R_0}{\varepsilon} \tag{3}$$

式中:ε——传感材料在外界刺激作用下产生的应变;R——在应变为 ε 时的电阻;R_0——传感材料的初始电阻值。同时,测定试样在最大应变为 35% 的条件下循环拉伸-回复 1000 次的过程中相对电阻的变化情况。

有效电阻长度为 14 mm,应变响应范围为 0~40%,速率分别为 25 mm/min,50 mm/min,75 mm/min 和 100 mm/min。

2 结果与讨论

2.1 银@石墨烯复合填料的结构表征

采用 SEM 与 XRD 对 AG 复合填料的微观形貌与晶体结构进行表征,结果如 Fig.2 所示。Fig.2(a)为 AG 的微观形貌。可见尺寸约为 200 nm 的银纳米颗粒均匀包覆在石墨烯表面,表明两者间具有较好的结合力。Fig.2(b,c)的能谱测试结果表明,银元素(红色)均匀分布在石墨烯表面,表明 Ag 纳米颗粒包覆均匀。进一步对复合填料的晶体结构进行表征,Fig.2(d)为 GO,PDA@G 和 AG 复合填料的 XRD 结果。其中,纯 GO 的衍射峰在 $2\theta = 12.3°$,而经过聚多巴胺改性的 PDA@G 在 $2\theta = 12.3°$ 处的衍射峰消失,在 $2\theta = 8.7°$ 出现新的衍射峰,表明经多巴胺改性的 GO 被还原剥离,层间距增加,形成了松散的片层结构。

AG 在 38.1°,44.3°,64.5°和 77.5°的峰分别对应于面心立方金属银纳米颗粒的(111),(200),(220)和(311)晶面,说明成功制备了包覆于 PDA@G 表面的 Ag 纳米颗粒。经多巴胺改性的石墨烯表面具有酚和醌结构,容易吸附带正电荷的二氨合银离子,有利于 Ag^+ 在 PDA@G 表面均匀分散和吸附,在葡萄糖

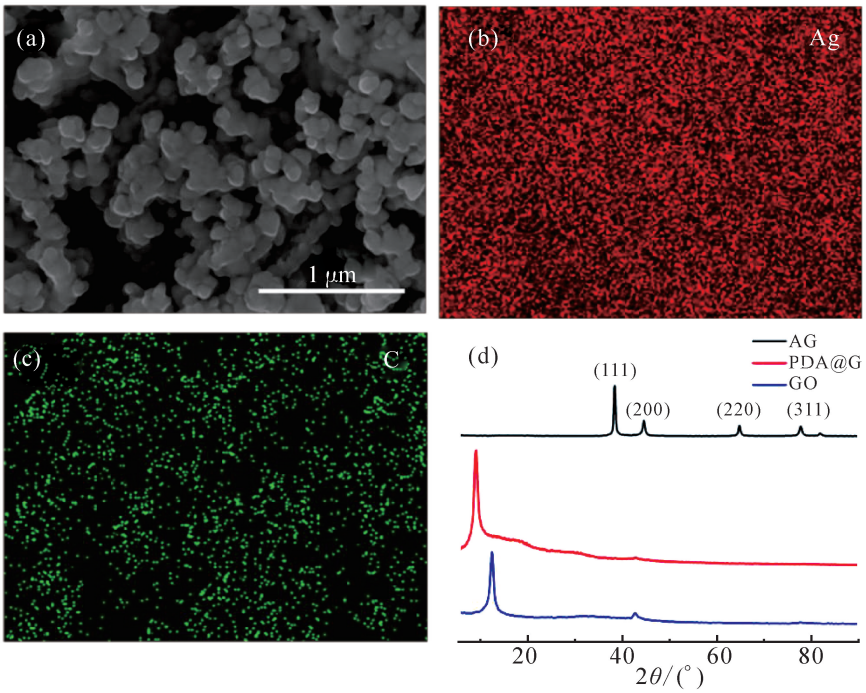


Fig. 2　(a) SEM images of AG and its EDS energy spectrum of (b) Ag and (c) C elements, (d) XRD patterns of AG, PDA@G and GO

作用下,Ag^+再以多巴胺为还原位点,原位生长在石墨烯表面,形成的 AG 结合力较强,且 Ag 在石墨烯表面分散更均匀,可以有效避免石墨烯片层的聚集,有助于实现 AG 在聚合物基体中的均匀分散,提高复合材料的导电性能,降低复合体系的逾渗阈值。

2.2　复合材料的微观形貌分析

填料在 FSR 基体中的均匀分散对制备高性能应变传感材料具有重要意义。Fig.3(a~d)分别为纯 FSR, 0.5CNT/FSR, 16AG/FSR 和 0.5CNT/16AG/FSR 复合材料的断面 SEM 图。Fig.3(a)为纯 FSR,

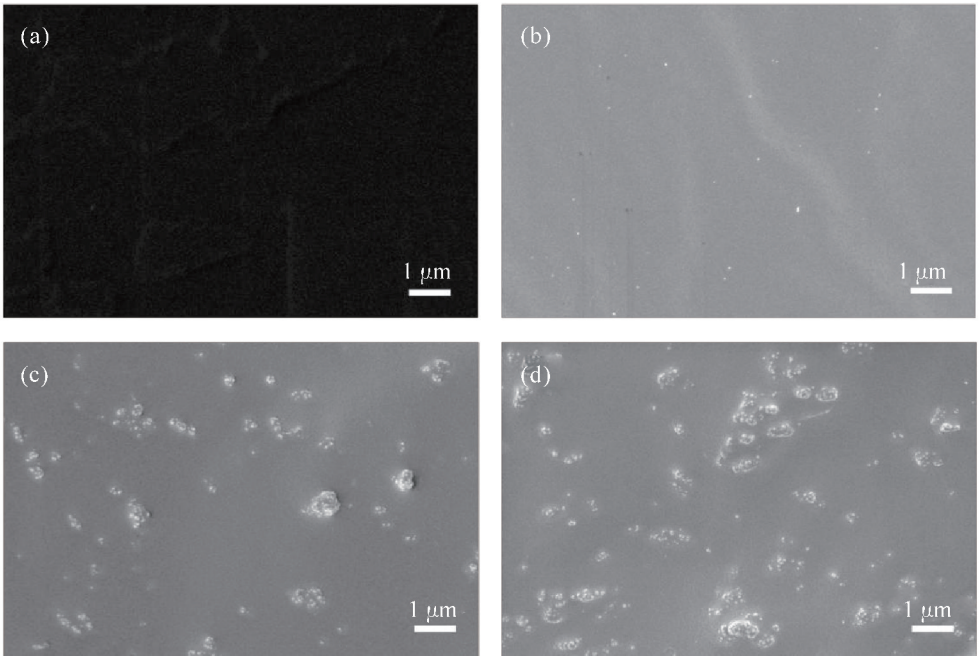


Fig. 3　SEM images of FSR composites: (a) FSR; (b) 0.5CNT/FSR; (c) 16AG/FSR; (d) 0.5CNT/16AG/FSR

淬断面较光滑。从 Fig.3(b)和(c)可观察到,少量 CNT 在 FSR 基体中分散较均匀,AG 由于添加量较大,存在部分团聚现象。0.5CNT/16AG/FSR 复合材料(Fig.3(d))中,CNT 和 AG 均匀分散于 FSR 基体中,经高强度剪切作用后,石墨烯表面仍负载有大量的银纳米粒子,这表明制备的 AG 复合填料具有良好的稳定性。此外,CNT 均匀分散在 AG 的片层间,协同构建了导电网络。这种特殊结构的导电网络有助于充分发挥 CNT 与 AG 的协同作用,有利于两者在 FSR 基体中的分散和导电网络的构建。

2.3 复合材料的导电性能分析

Fig.4(a)为 CNT 含量固定为 0.5% 时(低于 CNT/FSR 复合材料的逾渗阈值),0.5CNT/yAG/FSR 复合材料的体积电导率随 AG 含量的变化图。随 AG 含量增加,复合材料的体积电导率增加,当 AG 含量从 8% 增大至 12% 时,电导率急剧变化,表明复合材料由绝缘体变为导体,复合材料内部导电网络形成。Fig.4(b)为根据式(2)拟合所得 0.5CNT/yAG/FSR 复合材料导电性能与 p-p_c 关系图,可以发现,$\lg\sigma$ 与 $\lg(p-p_c)$ 具有良好的线性关系,符合经典逾渗理论模型。经计算,所得复合材料的理论逾渗阈值为 7.9%,t 为 2.31,表明一维的 CNT 和二维的 AG 复合填料在 FSR 中构建了三维导电网络[18]。然而,当填充量在理论逾渗阈值附近时导电网络极易被破坏,此时复合材料虽然具有较高的灵敏度,但响应范围却很窄。因此,为了满足实际应用场景,后续以 0.5CNT/16AG/FSR 复合材料为电阻-应变响应特性的研究对象。

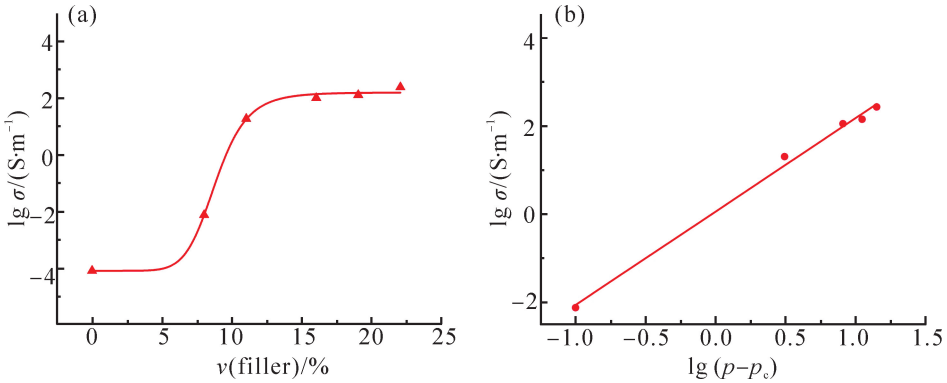


Fig. 4 (a) Volume conductivity as a function of fixed CNT volume fraction of 0.5% plus varying AG content; (b) $\lg\sigma$ vs. $\lg(p-p_c)$, where p is the volume fraction of filler

2.4 复合材料的电阻-应变响应特性

电阻-应变响应性能是评价柔性应变传感材料性能优劣的基本参数之一,其对于柔性传感材料的灵敏度、可穿戴性有重要影响。一维、二维复合填料协同作用形成的导电网络有利于保持 CNT/AG/FSR 复合材料的高拉伸性。Fig.5(a)为 0.5CNT/16AG/FSR 复合材料的相对电阻变化率-应变曲线。结果表明,$\Delta R/R_0$ 随拉伸应变的增加而单调增加,根据曲线的斜率,即灵敏度,可将该曲线划分为 0~35% 与>35% 2 个阶段。复合材料在 0~35% 应变响应范围内具有高度线性响应,GF 值为 11.79,线性相关系数达 0.99。稳定的电阻-应变响应性能对应变传感材料十分重要。Fig.5(b)是复合材料在 50 mm/min 的拉伸速率下,在不同拉伸应变(10%~40%)下 5 次循环拉伸-回复过程中相对电阻变化率-时间曲线。与 Fig.5(a)一致,复合材料的电阻变化率 $\Delta R/R_0$ 随着应变的增加而增大,在不同应变循环过程中,复合材料在拉伸与回复过程中的传感行为相似,且当拉伸应变保持不变时,电阻变化率基本恒定,表现出优异的可拉伸性和可重复性,表明导电网络稳定且可逆。进一步探究拉伸应变速率对相对电阻变化的影响,当固定拉伸应变为 35% 时,拉伸速度从 25 mm/min 增加到 100 mm/min 时,拉伸循环 5 次,应变传感材料的电阻响应与拉伸频率完全一致,拉伸速率越慢,完成拉伸和回复的时间越长,且 $\Delta R/R_0$ 几乎保持不变(Fig.5(c)),表明该应变传感材料不受速

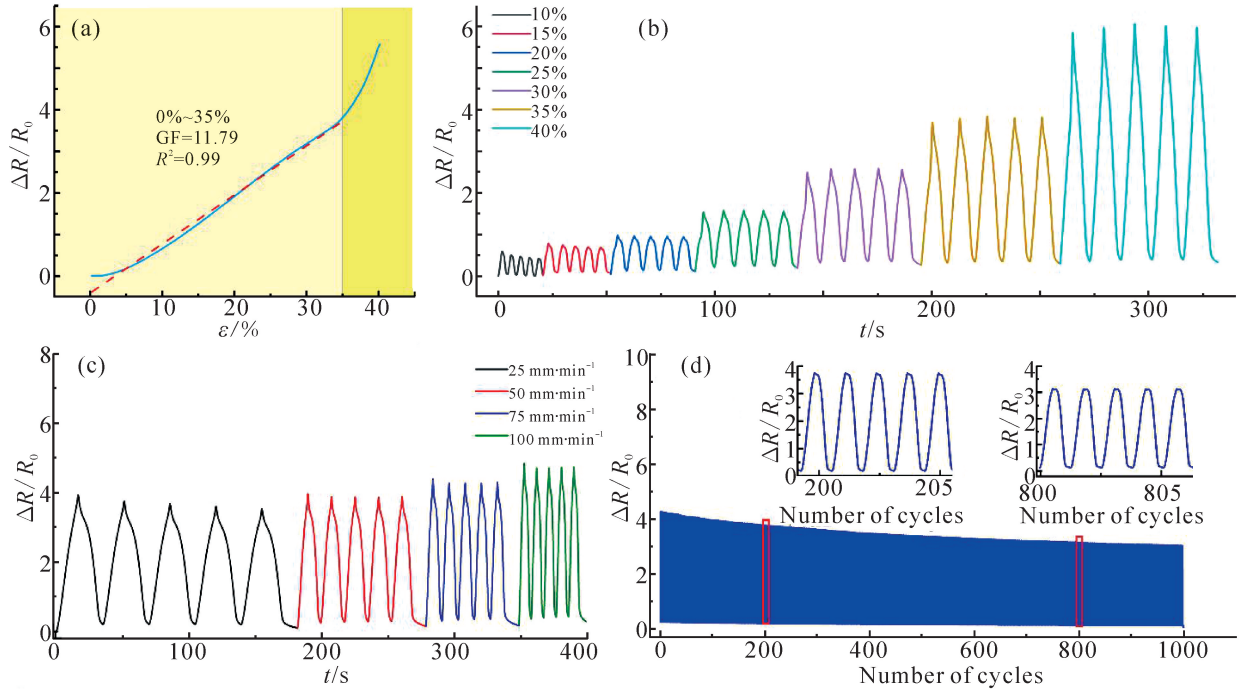


Fig. 5　(a) Relative resistance-strain curve of composites under static load, relative resistance-strain of the strain sensor (b) at different stretching strains, (c) at different rates of 0~35% strain, and (d)during 1000 stretch-recovery cycles of 0~35% deformation

率影响。为了研究该应变传感材料的长期使用稳定性,Fig.5(d)为该复合材料在 35% 的应变下以 50 mm/min 的应变速率进行 1000 次循环拉伸测试的传感性能及局部放大图。在循环拉伸过程中,复合材料的 $\Delta R/R_0$ 值呈现下降趋势,这一变化趋势可归因于复合材料中由 CNT 与 AG 构建的三维导电网络在拉伸过程中的稳定变化。通过放大第 200 至第 205 和第 800 至第 805 个循环可发现,该复合材料拉伸与回复过程的传感行为相似,这表明本文所制备的氟硅橡胶基复合材料具有良好的重复性和循环稳定性,体现了良好的耐疲劳性能和可重复性,在实际应用中具有重要意义。同时,在这个过程中,CNT 与 AG 间的协同效应有助于导电网络的重建与修复,增强了复合材料在循环过程中的重复性和循环稳定性。

进一步研究了杂化填料对复合材料应变传感性能的影响,其机理演变示意图如 Fig.6 所示。根据 SEM 结果,CNT 和 AG 在 FSR 中的初始状态如 Fig.6(a)所示,CNT 填充 AG 间隙,协同构建导电网络。在拉伸过程中,导电网络的破坏和重建存在竞争。变化分为 2 个阶段,在较小的应变下,AG 与 CNT 间发生相互滑移,彼此间的接触面积逐渐减小,导电路径减少,导致复合材料的电阻逐渐增大。此时,高长径比的碳纳米管在导电填料间起到了“桥接”作用(Fig.6(b)),降低了导电网络的受损程度,故而这一阶段内,复合材料呈现出较高灵敏度、良好的线性响应和宽的应变范围。随着应变的进一步增加,部分 AG 与 CNT 彼此分离,导电通路数目迅速减少,导电网络被破坏,从而使复合材料的相对电阻发生突变,呈现出更高的灵敏度(Fig.6(c))。当应变降低,断开的导电网络重新连接,导电能力恢复,电阻回到初始值(Fig.6(d))。

2.5　人体运动监测应用

由于 CNT/AG/FSR 复合材料具有宽的应变响应范围、高度线性响应和可靠的稳定性,进一步将其制备成可穿戴应变传感器,贴附于颈椎、手指、手肘、膝盖等可产生较大应变的关节处监测人体运动,用于评估其在应变传感器的潜在应用,结果如 Fig.7 所示。从图中可以看出,复合材料传感器的电阻随着动作弯曲程度的增加而增加,不同的弯曲角度对应

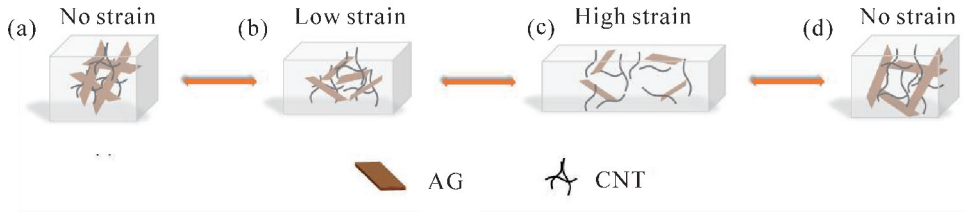


Fig. 6 Schematic illustration of the sensing mechanism for CNT/AG/FSR composites

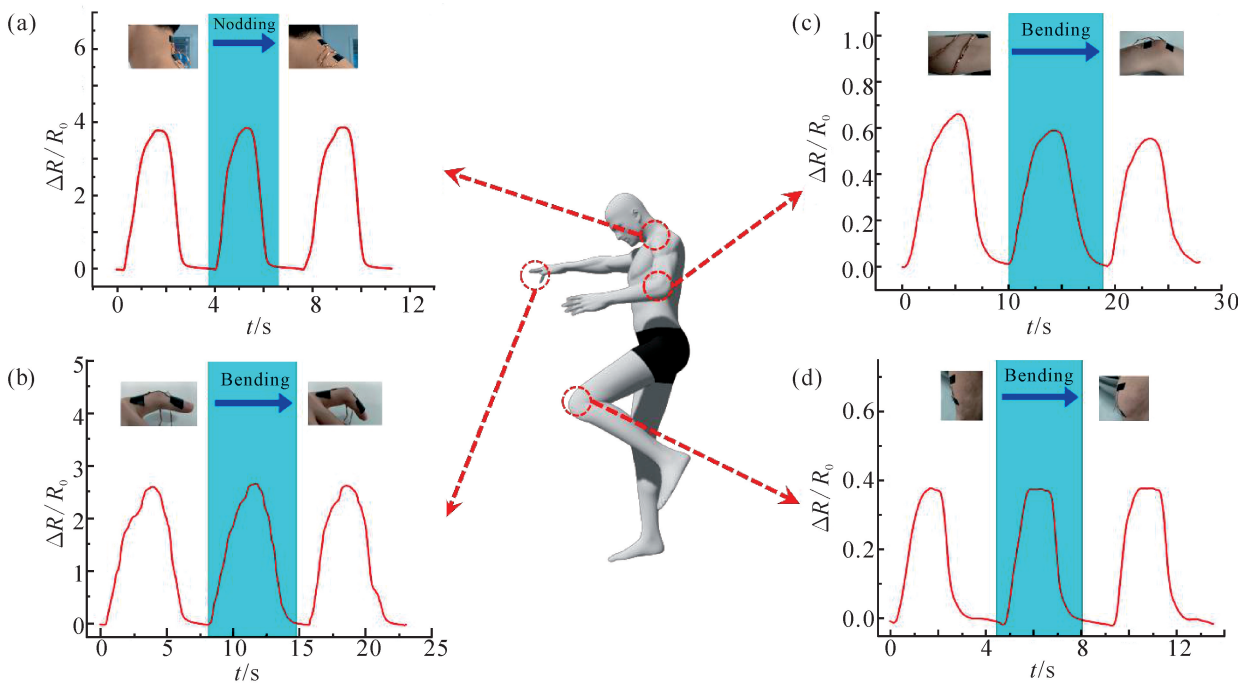


Fig. 7 Strain sensors used to monitor human motions: relative resistance change versus time of CNT/AG/FSR composites for bending and release of (a) neck, (b) index finger, (c) elbow joint and (d) knee. insets: photographs of corresponding human motions

不同的电阻变化。对同一部位进行重复循环监测时,传感器能恢复初始电阻,表明复合材料呈现出良好的可重复性及稳定性。该 CNT 和 AG 掺杂的 FSR 基复合材料组装的传感器具有诊断关节运动状态的功能,在关节类疾病的监测、康复训练和远程医疗方面具有潜在的应用价值。

3 结论

本文将原位合成的高电导率且性能稳定的银改性石墨烯(AG)复合导电填料与碳纳米管(CNT)复合改性氟硅橡胶(FSR),制备了可用于人体运动监测的碳纳米管/银@石墨烯/氟硅橡胶(CNT/AG/FSR)复合材料。不同维度的 CNT 和 AG 导电填料在较低的逾渗阈值(7.9%)可构建三维导电网络。所制备的 CNT/AG/FSR 复合材料在较宽的应变响应范围(0 ~ 35%)内具有高度线性响应,GF 值为 11.79,线性相关系数达 0.99,且循环稳定性优异(35%应变 1000 次拉伸/回复循环,$\Delta R/R_0$ 几乎保持不变),进一步将其用于监测人体运动,包括颈椎、手指、手肘、膝盖等人体关节大动作运动,表现了良好的稳定性和重复性,在人体运动监测和治疗、可穿戴电子设备、人机交互等领域展现出较大的应用潜力。

参考文献:

[1] Liu H, Li Q, Zhang S, *et al.* Electrically conductive polymer composites for smart flexible strain sensors: a critical review[J]. Journal of Materials Chemistry C, 2018, 6: 12121-12141.

[2] Zhang Y, Li Y, Dai K, *et al.* A highly stretchable and stable strain sensor based on hybrid carbon nanofillers/

polydimethylsiloxane conductive composites for large human motions monitoring[J]. Composites Science and Technology, 2018, 56: 276-286.

[3] Pierre C U, Zhao G. Recent progress in flexible pressure sensors based electronic skin[J]. Advanced Engineering Materials, 2021, 23: 2001187.

[4] Heng W, Solomon S, Gao W. Flexible electronics and devices as human-machine interfaces for medical robotics[J]. Advanced Materials, 2022, 34: 2107902.

[5] Wang C, Ma C, Wu X, *et al.* Electrically conductive AgNPs/TPU-electrospun fibers with hierarchical microstructures by a one-step method for a high-performance flexible pressure sensor[J]. ACS Applied Electronic Materials, 2023, 5: 6334-6344.

[6] Mishra S, Saha B. Graphene-polymer nanocomposite-based wearable strain sensors for physiological signal monitoring: recent progress and challenges[J]. Current Opinion in Solid State and Materials Science, 2024, 31: 101174.

[7] Ma Z. Advances in graphene-assisted flexible substrate sensors for human motion monitoring[J]. International Journal of Electrochemical Science, 2024, 19: 100760.

[8] Yu G F, Yan X, Yu M, *et al.* Patterned, highly stretchable and conductive nanofibrous PANI/PVDF strain sensors based on electrospinning and in situ polymerization[J]. Nanoscale, 2016, 8: 2944-2950.

[9] Tuli A, Singh A P. Polymer-based wearable nano-composite sensors: a review[J]. International Journal of Polymer Analysis and Characterization, 2023, 28: 156-191.

[10] 任秦博, 王景平, 杨立, 等. 用于电阻式柔性应变传感器的导电聚合物复合材料研究进展[J]. 材料导报, 2020, 34(1): 1080-1094.
Ren Q B, Wang J P, Yang L, *et al.* Research progress of conductive polymer composites for resistive flexible strain sensors[J]. Material Reports, 2020, 34(1): 1080-1094.

[11] 张荣, 李思琦, 胡海龙, 等. 基于渗流网络的聚合物基柔性应变传感复合材料研究进展[J]. 高分子材料科学与工程, 2021, 37(4): 182-190.
Zhang R, Li S Q, Hu H L, *et al.* Research progress of polymer-based flexible strain sensing composites based on percolation network[J]. Polymer Materials Science & Engineering, 2021, 37(4): 182-190.

[12] Huang Y, Hao C, Liu J, *et al.* Highly stretchable, rapid-response strain sensor based on SWCNTs/CB nanocomposites coated on rubber/latex polymer for human motion tracking[J]. Sensor Review, 2019, 39: 233-245.

[13] 赵艳芳, 杨洋, 万帮伟, 等. 炭黑/石墨烯共混改性硅橡胶基复合材料电阻/应变响应特性优化[J]. 高分子材料科学与工程, 2025, 41(3): 111-123.
Zhao Y F, Yang Y, Wang B W, *et al.* Optimization of resistance / strain response characteristics of carbon black / graphene blending modified silicone rubber matrix composites[J]. Polymer Materials Science & Engineering, 2025, 41(3): 111-123.

[14] Liu H, Gao J, Huang W, *et al.* Electrically conductive strain sensing polyurethane nanocomposites with synergistic carbon nanotubes and graphene bifillers[J]. Nanoscale, 2016, 8: 12977-12989.

[15] Yang H, Yao X, Yuan L, *et al.* Strain-sensitive electrical conductivity of carbon nanotube-graphene-filled rubber composites under cyclic loading[J]. Nanoscale, 2019, 11: 578-586.

[16] Yang H, Yuan L, Yao X F, *et al.* Monotonic strain sensing behavior of self-assembled carbon nanotubes/graphene silicone rubber composites under cyclic loading[J]. Composites Science and Technology, 2020, 200: 108474.

[17] Tan C, Zhou Y, Li J, *et al.* Graphene nanoplatelets/barium titanate hybrid nanoparticles via ball milling for enhanced dielectric and mechanical properties of fluorosilicone rubber composites[J]. Ceramics International, 2023, 49: 9017-9025.

[18] Deng H, Bilotti E, Zhang R, *et al.* Effect of thermal annealing on the electrical conductivity of high-strength bicomponent polymer tapes containing carbon nanofillers[J]. Synthetic Metals, 2010, 160: 337-344.

Strain-Sensing Properties of Carbon Nanotube and Silver@Graphene Modified Fluorosilicone Rubber Composites

Shan He[1], Weiwei Wu[1], Jia Zheng[2], Chenxi Zhang[1], Xing Wang[1], Ruiyang Ren[1], Jian Su[2], Changbin Tan[1, 3]

(*1. School of Materials Science and Engineering, Sichuan University of Science & Engineering, Zigong 643000, China; 2. Wuliangye Yibin Co. Ltd., Yibin 644000, China; 3. Material Corrosion and Protection Key Laboratory of Sichuan Province, Zigong 643000, China*)

ABSTRACT: Due to the high percolation threshold and poor strain sensing performance of flexible strain sensing materials prepared with a single filler, in this paper, one-dimensional filler carbon nanotubes (CNT) and in-situ synthesized high conductivity and stable silver@ graphene (AG) composite fillers were synergistically introduced into fluorosilicone rubber (FSR). Based on the synergistic effect of composite fillers with different geometric effects, CNT/AG/FSR composite materials were prepared. The results indicate that AG conductive fillers have stable performance and controllable structure. The appropriate amount of CNT and AG are uniformly dispersed in FSR matrix to form a three-dimensional conductive network. The flexible strain sensors based on CNT/AG/FSR composite materials show stable and reproducible properties at different tensile strain ranges and motion frequencies. In strain response range of 0 ~ 35%, the sensor exhibit highly linear response with a GF value of 11.79 and a linear correlation coefficient of 0.99. This composite material can accurately monitor human movements such as neck lifting, finger movement, elbow movement, and knee bending, and is expected to be applied in wearable devices and human motion detection fields with high strain response requirements.

Keywords: carbon nanotubes; silver@graphene; fluorosilicone rubber; strain sensing