**Ionic liquids-filled patterned cavities improve transmittance of transparent and stretchable electronic polydimethylsiloxane films**

**透明和可拉伸的PDMS膜内图案化空腔填充离子液体以改善电子的透射率**

> Journal of Materials Science

> DOI: 10.1007/s10853-019-03682-7

> Pengdong Feng, Xinyu Wang, Beibei Lu, Guangxing Pan, Xuesong Leng, Xing Ma, Jiaheng Zhang, Weiwei Zhao

**### Abstract**

用于柔性和可穿戴设备的透明电极需要可拉伸且可以图案化导电的材料。通过激光加工和转移印刷制备具有图案化空腔的透明且可拉伸的聚二甲基硅氧烷（PDMS）膜。将透明导电离子液体（IL）和水溶液（AS）注入空腔中，获得透射率在99.94％（相对于空白PDMS膜）和92.80％（相对于空气）的可见光范围内的电极。该透射率几乎与空白PDMS膜的透射率相同。施加到电极的最大拉伸应变为117.23％，通过四探针法测量的具有网络图案的电极的电阻为3.20kΩ。在0-50％的应变下进行10,000次拉伸/释放循环后，这些电极仍然表现最佳。导电离子液体（IL）和水溶液（AS）显示出各种透射率和电性质，具有IL的电极具有较高的透射率，而具有AS的电极具有较高的电导率。本文分析了具有五种图案（蛇形，圆形，直线，折叠线和菱形）的电极。包含具有大曲率的曲线的图案将导致拉伸过程中的严重局部应力集中。包含平行曲线的图案可以优化导电性。含有复杂曲线的图案对透射率有一定影响。此外，弹性体和液体可随意变形，我们将此电极制造了两个压力传感器和两个应变传感器，用于证明它们在循环期间的灵敏度稳定性。

**### Results and Discussion**

![Fig1\_HTML.png](imgs/Fig1\_HTML.png)

图1 电极的制备和表征。a 该示意图显示了具有菱形图案网络的可拉伸透明电极的制造过程。 b（KCl+Na2SO4）水溶液的电流-电压（C-V）曲线；插图显示了该解决方案的光学照片。c IL的电流与电压曲线；插图显示了1-丁基-3-甲基咪唑六氟磷酸盐的光学图像和分子式。 d AgNO3 AS在不同浓度下的C-V曲线；插图显示了该解决方案的光学图像。

将液体固化的PDMS涂覆到两种类型的模板上，获得具有图案化凹槽的PDMS膜和另一个空白平膜。将AS或IL注入通过这两个膜的连接形成的空腔中，然后用液体PDMS密封注入口。使用1.2mm厚的空白PDMS膜作为参考，该电极的透射率高达99.94％。（KCl+Na2SO4）AS和ILs的电流-电压（C-V）曲线分别如图1b，c所示。当施加的电压为1V时，（KCl+Na2SO4）AS的电流比ILs高56倍。由于传导机制不是欧姆接触，两条曲线不是具有恒定斜率的直线。浓度为1,2和3mol /L的AgNO3 AS的C-V曲线显示在图1d中。与上述两种液体不同，该AS的C-V曲线几乎是一条具有恒定斜率的直线。当施加的电压为1 V时，AgNO3 AS电流为比（KCl + Na2SO4）AS高一个数量级。

所有五种图案都承受了超过100％的拉伸应变，表明它们具有很好的拉伸性。尽管PDMS的最大应变达到340％，但它与制备过程中的温度和时间参数密切相关。具有IL的电极的电阻显着高于具有AS的电极的电阻。由于每单位面积的线长度较长，所有图案中电极与蛇形图案的电阻最高，而圆圈表现出更好的电性能。

![Fig2\_HTML.png](imgs/Fig2\_HTML.png)

图2 当导电填料为AS或IL时，五种图案的光学透射率。a 表10中给出了10个电极的照片。b 在400至700nm波长下不同厚度的PDMS膜的透射率。 c 当填料为AS时，波长为400至700nm的透射率，参考为空白PDMS薄膜。 d 当填料为AS且参考为空气时的透射率。 e 当填料为IL且参考物为空白PDMS基板时的透射率。 f 当填料为IL且参考为空气时的透射率。

这些可拉伸透明电极的光学透射率如图2所示。具体地说，图2a显示了具有两种填充液体和五种图案的10个电极的照片。其他图片展示了不同导电填料的透射率曲线。

![Fig3\_HTML.png](imgs/Fig3\_HTML.png)

用AgNO3溶液拉伸透明电极的性质。a 图案为直线网络时的电阻与应变曲线。b 当图案为直线网络时，在0-50％的应变下经过10,000次拉伸/释放循环后的电阻。c 图案为菱形网络时的阻力与应变曲线。d 当图案为菱形网络时，在0-50％的应变下经过10,000次拉伸/释放循环后的阻力。

为了评估拉伸性能，研究了具有两种网络图案的电极，如图3所示。图案网络的外部轮廓尺寸为30mm×20mm。填料是AgNO3溶液，四个AgNW探针连接到电阻率测试系统。腔体的图案（结构）在本研究中的拉伸性，电阻，循环期间的拉伸/释放能力和电子皮肤的光学透射率中起作用。

电极可承受的最大拉伸应变受到图案化腔的限制。尽管最大应变主要由PDMS基板的拉伸性质决定，但是面内空腔实际上是膜中的缺陷。该缺陷导致局部应力集中，并且不能实现无缺陷PDMS的拉伸能力（拉伸应变为340％）。由于腔的横截面尺寸小，电极的最大应变超过100％。

阻力与图案的设计有关。对于固体导电材料，电阻取决于电阻率，长度和横截面积。而且，并联连接的导电路径的数量对降低电阻有影响。即使导电液体的电荷载体是阴离子和阳离子而不是电子，电阻仍然取决于这四个影响因素。对于蛇形图案，导电路径只有一个并且曲折，因此无论导电液体如何，电阻总是最大的。其他图案具有并联连接和较短的导电路径，并且电阻显着低于蛇形的电阻。另一方面，由于直线图案与拉伸方向完全平行，因此其拉伸时的横截面尺寸均匀地减小，从而表现出拉伸应变的线性增加的阻力。

不同的图案显示出不同的承受拉伸/释放循环的能力。闭合图案，例如平行四边形和椭圆形，在拉伸过程中本身可以经历可再现的变形。因此，所施加的应变主要通过图案的变形来协调，并且图案化的空腔仅受到小的应变和非常低的局部应力集中，导致较少的损坏和较长的电极耐久性。对于具有直线图案的腔体，应变仅能够自身完全协调，结果，耐久性不如菱形图案的耐久性好。

透射率受图案化空腔和导电液体的组成的影响。由于PDMS基板和导电液体都是固有透明的，因此影响透射率的主要因素是入射光在腔表面（PDMS和液体之间的界面）上的反射。另外，导电液体的性质，包括PDMS表面上的组成，粘度和润湿性，可以影响来自界面的光的反射。因此，电子皮肤的透射率略低于没有空腔的PDMS薄膜的透射率。

![Fig4\_HTML.png](imgs/Fig4\_HTML.png)

图4 两个压力传感器的灵敏度附着在手背上的传感器可以感应施加的压力。对于直线网络的模式，施加的压力随时间变化如b所示，相应的电阻变化率用c表示，不同压力对电阻变化率的影响如（d）所示。对于菱形网络的模式，施加的压力随时间变化如（e）所示，相应的电阻变化率如（f）所示，不同压力对电阻变化率的影响如（g）所示。

另外，用这些透明可拉伸电极制成的两个压力传感器显示是由于对压力的响应，如图4所示。电子皮肤的压力传感器连接到手背，手指压力导致电气变化阻力，如图4a所示。而且，腔的图案对灵敏度有一定程度的影响。与直线网络相比，菱形网络传感器对压力的敏感度降低约40％。

![Fig5\_HTML.png](imgs/Fig5\_HTML.png)

图5 具有直线网络和菱形网络模式的两个应变传感器的灵敏度。施加0-50％变化时间的50个拉伸应变循环显示在（a）和（b）中，并且相应的电阻变化灵敏度显示在（c）和（d）中

此外，制作了两个具有直线网络和菱形网络图案的应变传感器，如图5所示。在0-50％的应变下进行拉伸/释放和再拉伸循环时，电极的电阻因为应变传感器显示增加/减少和再增加循环。发现具有菱形网络的电极表现出更高的应变灵敏度。对于两个应变传感器，最大电阻始终出现在每个周期的最大应变处，而最小电阻出现在应变为0时。50个最大值与50个最小值之间的差异相似，表明稳定和循环灵敏度。这就是本文中的应变传感器优于其他工作。

![Fig6\_HTML.png](imgs/Fig6\_HTML.png)

图6给出了可拉伸和透明电极特性的总结，说明了在这项工作中实现的最高光学透射率和明显的拉伸性。黑色五角星代表以空气为基准的透射率，高于所有其他。红色五角星给出了以PDMS基底为参考的透射率。在这项工作中，很少有工件表现出比电极更高的最大拉伸应变，这是由弹性体基材本身具有更好的可拉伸性能引起的。液态金属，碳纳米管和金属纳米线在其他工作中用作导电载体，其通过导电材料之间的大量间隙实现透明性质。除了间隙之外，透明和导电液体还可以在这项工作中将光学透射率从92％提高到99.94％。

**### Conclusion**

将透明且导电的IL和AS注入透明且可拉伸的PDMS膜的图案化腔中。成功制备了具有超高透射率和高拉伸性的柔性电极。通过激光加工和转印工艺制造五种网络图案。空白PDMS基底作为参考，透射率达到99.94％，空气作为参考，透射率达到92.80％。拉伸性能高达117.23％，最小电阻为3.20kΩ。在0-50％的应变下，这些电极在10,000次拉伸/释放循环后工作良好。具有IL的电极表现出更高的透射率，而具有AS的电极表现出更好的导体。图案的类型有助于电极的物理性质。大的曲率会在拉伸过程中导致严重的局部应力集中。平行曲线可以优化导电性。复杂曲线对透射率有一定影响。用这些电极制作的两个压力传感器和两个应变传感器的研究具有直线网络和菱形网络模式，证明了它们在循环过程中的灵敏度稳定性。这些电极具有多种潜在应用，例如可穿戴电子设备和生物识别芯片。