

MXene 在压力传感中的研究进展

尹建宇¹, 刘逆霜¹, 高义华^{1,2}

(华中科技大学 1. 物理学院; 2. 武汉光电国家研究中心, 纳米表征与纳米器件中心, 武汉 430074)

摘要: 近年来, 压力传感器在智能可穿戴纺织品、健康监测、电子皮肤等领域得到了广泛应用。二维纳米材料 MXene 的出现, 为压力传感带来了全新的突破。 $\text{Ti}_3\text{C}_2\text{T}_x$ 是压力传感领域研究最多的 MXene, 具有良好的机械性能、高导电性、优异的亲水性以及广泛的可修饰性, 是理想的压力传感材料。因此, 近些年研究者们对 MXene 在压力传感器中的设计和应用进行了大量探索和研究。本文总结了 MXene 的制备技术和抗氧化方法。同时介绍了基于 MXene 的微结构设计, 包括气凝胶/多孔结构材料、水凝胶、柔性衬底和薄膜。该类设计有利于提高压力传感器的响应范围、灵敏度和柔韧性, 促进了压力传感器的快速发展。此外, 进一步探讨了 MXene 压力传感器的工作机制, 包括压阻式、电容式、压电式、摩擦电式、电池式和纳米流体式等。MXene 以其优异的特性而在各种机制的传感器中得到了广泛应用。最后, 对 MXene 材料的合成、性质以及其在压力传感方面的机遇和挑战进行了展望。

关键词: MXene; 压力传感器; 合成方法; 传感机制; 专题评述

中图分类号: TQ174; S951 文献标志码: A 文章编号: 1000-324X(2024)02-0179-07

Recent Progress of MXene in Pressure Sensing

YIN Jianyu¹, LIU Nishuang¹, GAO Yihua^{1,2}

(1. School of Physics, Huazhong University of Science and Technology, Wuhan 430074, China; 2. Center for Nanoscale Characterization & Devices, Wuhan National Laboratory for Optoelectronics, Huazhong University of Science and Technology, Wuhan 430074, China)

Abstract: In recent years, pressure sensors have been widely applied in the fields of smart wearable textile, health detection, and electronic skin. The emergence of the two-dimensional nanomaterial MXene has brought a brand-new breakthrough for pressure sensing. $\text{Ti}_3\text{C}_2\text{T}_x$ is the most popular studied MXene in the field of pressure sensing and shows good mechanical, electrical properties, excellent hydrophilicity, and extensive modifiability, enabling it an ideal material for pressure sensing. Hence, researchers have conducted a lot of explorations and studies on design and application of MXene in pressure sensors in recent years. Herein, the preparation technologies and antioxidant methods are summarized. Design of MXene-based microstructures is also introduced, including aerogels/porous structural materials, hydrogels, flexible substrates, and films, which are beneficial to improve the response range, sensitivity, and flexibility of pressure sensors, and promote the rapid development of pressure sensors. The mechanisms of MXene pressure sensors are further broached, including piezoresistive, capacitive, piezoelectric, triboelectric, battery typed and nanofluidic. MXene has been applied in a wide range of sensors for various mechanisms due to its excellent characteristics. Finally, the chance and challenge in the synthesis, properties, and

收稿日期: 2023-08-31; 收到修改稿日期: 2023-10-12; 网络出版日期: 2023-10-15

基金项目: 国家自然科学基金(51872106, 11874025) National Natural Science Foundation of China (51872106, 11874025)

作者简介: 尹建宇(1994-), 男, 博士研究生. E-mail: yjy.yin@outlook.com

YIN Jianyu (1994-), male, PhD candidate. E-mail: yjy.yin@outlook.com

通信作者: 刘逆霜, 教授. E-mail: nishuang_liu@foxmail.com; 高义华, 教授. E-mail: gaoyihua@hust.edu.cn

LIU Nishuang, professor. E-mail: nishuang_liu@foxmail.com; GAO Yihua, professor. E-mail: gaoyihua@hust.edu.cn

pressure sensing performance of MXene materials are prospected.

Key words: MXene; pressure sensor; synthesis method; sensing mechanisms; perspective

随着电子技术、人工智能、个性化医疗的快速发展,智能压力传感设备的需求呈爆发式增长^[1-2]。将压力转换为电信号的压力传感器在运动健身、健康监测与评估、临床诊断和工业机器人等领域具有巨大的应用潜力^[3-4]。一般来说,压力传感器由压力传感层、导电电极和衬底组成,其性能指标主要包括灵敏度、压力感应范围、响应/恢复时间和耐久性等。近年来,研究人员主要关注压力传感层的微观结构设计,如锯齿状、砂纸状、仿生图案和皱纹状等,来提高灵敏度^[5-6]。另一方面,利用电路集成、无线传输、自供电等新技术,将压力传感器推向小型化,并推动了微型皮肤的发展^[7-8]。但是上述传感器在实际设计和应用中大多存在制备过程太过复杂和集成困难等难题。

压力传感器的快速改进显然离不开功能材料的发展。MXene($M_{n+1}X_nT_x$, $n \approx 1 \sim 4$)是一种新型二维层状过渡金属碳化物/氮化物,通过选择性地刻蚀前驱体($M_{n+1}AX_n$, $n \approx 1 \sim 4$)中的 A 层(元素周期表中的第 13 或 14 族元素)而获得^[9]。其中, M 是前过渡金属, X 是碳或氮, T_x 是表面终止基团(如 $-OH$ 、 $-O$ 、 $-Cl$ 、 $-F$)^[10]。选择性地刻蚀 MAX 相中 A 层可获得类似手风琴状的 MXene,这意味着理论上可以在外力下轻松改变 MXene 的层间距,从而引起内阻变化。因此, MXene 可以应用于压力传感器。虽然 MXene 的种

类很多,但在压力传感领域研究最多的还是 $Ti_3C_2T_x$ 。基于此,本文主要讨论 $Ti_3C_2T_x$ (如果不专门强调,下文出现的 MXene 都是指 $Ti_3C_2T_x$)在压力传感领域的研究应用。越来越多的研究表明, $Ti_3C_2T_x$ 是一种极具前景的压力传感材料^[11]。MXene 表面附着丰富的可调官能团,具有优良的水分散性和可塑性,可与其他材料结合形成多种多功能材料和微观结构。此外, MXene 纳米片具有高导电性、优异的机械性能和压力可调的层间距等特性,为压力传感器中传感层的微观结构设计提供了良好的基础^[12]。鉴于 MXene 的优异性能和广泛的实用性,研究人员不断研究各种刻蚀方法及其在压力传感中的应用^[13]。

本文总结了 MXene 在压力传感器中的最新进展。首先介绍了 MXene 的制备和抗氧化方法,重点回顾了 MXene 压力传感器的制备方法,包括气凝胶/多孔结构材料、水凝胶、柔性衬底和薄膜;然后,介绍了 MXene 压力传感器的机理,包括压阻式、电容式、压电式、摩擦电式、电池式和纳米流体。同时,讨论了该领域存在的一些问题和挑战,并对其发展方向进行了展望。

1 MXene 的合成和抗氧化方法

MXene($M_{n+1}X_nT_x$)的结构如图 1 所示^[14]。MXene

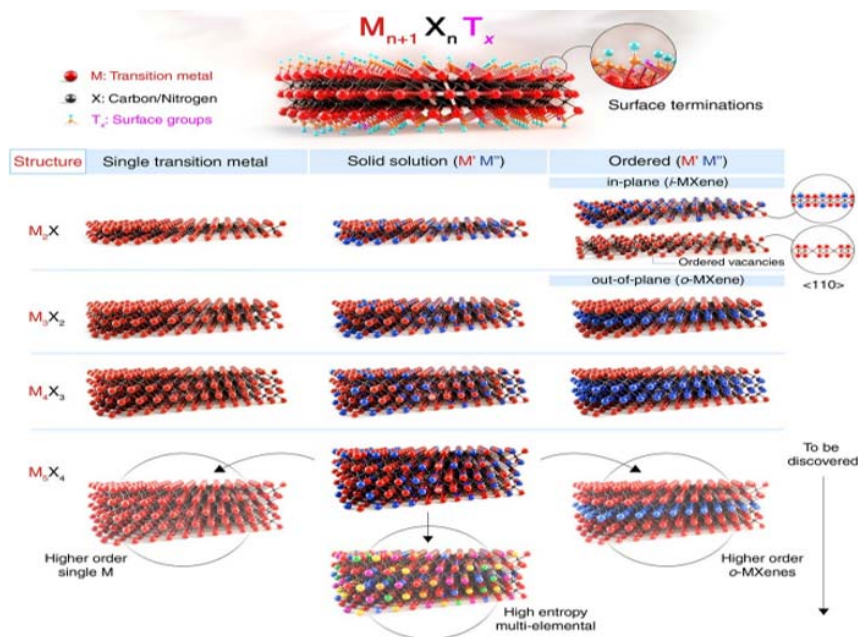


图 1 MXene 的结构示意图^[14]

Fig. 1 Schematic illustration of the MXene structures^[14]

的合成方法会影响其结构和表面官能团,并进一步影响传感器的性能^[15]。研究人员探索了各种物理和化学合成策略,以获得具有丰富构型和卓越性能的 MXene,进一步推动了功能材料和先进智能器件的快速发展^[16]。

根据刻蚀剂的种类,合成策略可分为经典 HF 刻蚀法、氟化物刻蚀法和非氟化物刻蚀法。HF 是最早用于刻蚀 MXene 前驱体的有效试剂,选择性地刻蚀 A 层原子后可以得到具有类似手风琴结构的 MXene^[17]。然而, HF 对设备、人体和环境有害,且容易过度腐蚀并导致 MXene 产生过多的缺陷^[18]。因此,研究人员提出了几种替代方案。一种是使用盐酸和氟化物(LiF、NaF、NH₄HF₂等)原位生成 HF,然后选择性地刻蚀 A 层^[19]。目前, HCl 和 LiF 逐渐取代 HF 刻蚀用于制备 MXene,整个系统的反应条件较温和,对环境和人的危害较小,有利于大规模生产 MXene。此外,反应过程中生成的 Li⁺有助于获得单层 MXene 薄片。另一种方法是熔盐刻蚀法。氟化盐在高温下转化为熔融状态,可以获得具有足够活性的游离 F⁻用于腐蚀 MAX 相^[20]。为了开发不含 -F 端基的 MXene,还探索出无氟熔盐刻蚀方法。例如, Li 等^[21]使用不含氟元素的 ZnCl₂/NaCl/KCl 混合熔盐体系,获得了只有 -Cl 末端的 MXene。此外,还开发了一种制备 MXene 的无氟刻蚀法。该方法是在 270 °C、27.5 mol/L 的高浓度 NaOH 溶液中选择性地去除 MAX 相中的 Al 层而得到含有 -OH 和 -O 等表面末端基团的高纯度 MXene(质量浓度 92%)^[22]。刻蚀剂的类型在很大程度上决定了 MXene 的表面基团。通常, HF 刻蚀主要产生含氟官能团,而 LiF/HCl、NaOH 和 H₂SO₄ 处理会产生含氧基团^[23]。除了提高 MXene 的亲水性外,含氧基团还有利于 MXene 与其他材料的相互作用,有助于构造复合结构。

然而,在水或潮湿的环境中,空气、水和光的共同作用下, MXene 纳米片由于结构缺陷和官能团氧化会发生不必要的氧化和性能退化。针对此问题,可利用精细的储存条件减少甚至防止氧化^[24],例如,填充密封的 Ar、N₂ 和 He 等气体、低温环境以及采用无水有机溶液作为分散剂^[25-26]。通过原位生成 HF 刻蚀和氟化盐法进行制备优化而获得缺陷较少的 MXene,也有利于防止氧化^[26]。此外,通过真空或惰性气氛高温退火可以有效去除官能团,提高其热稳定性,防止官能团的氧化反应^[27]。另外,聚磷酸盐阴离子和抗坏血酸等抗氧化剂也可用于减少氧化^[28]。

2 MXene 压力传感器的制备方法

MXene 是构建压力传感器活性材料的理想选择。然而,仅由 MXene 简单堆叠薄膜的传感性能还有待提升。并且,薄片之间的强相互作用不利于片层间的有效滑动,限制了响应范围和灵敏度^[23]。因此,可以调整 MXene 的微观结构,并与其他功能化合物结合,构建复合柔性材料,从而拓宽 MXene 在压力传感中的应用。本节将简要介绍 MXene 基压力传感层微观结构的设计,包括多孔结构、水凝胶、柔性衬底和薄膜。这些微观结构的成功制备促进了压力传感器的快速发展。

2.1 MXene 基气凝胶/多孔结构压力传感器

气凝胶具有高孔隙率、低密度和可控的三维多孔结构,是压力传感器的高灵敏度活性材料之一^[29]。但是 MXene 凝胶网络在压缩过程中容易塌陷,需要与其他材料结合以增强机械性能。例如, Ma 等^[30]设计并制备了基于 MXene/rGO 气凝胶的压阻式传感器(图 2(a))。这种结构可以有效增强压缩/恢复性能(10000 次循环)并提高分辨率和压力监测范围。此外,海绵以其吸水性好、弹性高、结构多孔、内表面积大、成本低等优点而被选为三维骨架。Yue 等^[31]将 MXene 浸涂在三聚氰胺海绵骨架上形成三维网状结构,制备了 MXene 海绵压力传感器。该器件具有良好的机械稳定性和高弹性,在较宽的压力范围内保持较高的灵敏度和优异的循环稳定性。原位发泡也是制备多孔结构的一种有效途径。例如, Su 等^[12]利用水合肼诱导 MXene/纤维素纳米纤维(CNF)复合膜发泡得到了多孔泡沫结构的压力传感器(图 2(b))。

2.2 MXene 基水凝胶压力传感器

水凝胶是富含水或离子液体的 3D 网络结构,以其良好的柔韧性和生物相容性而被广泛用于压力传感器^[32]。在水凝胶中加入 MXene 可以提高其导电性和机械性能。同时,通过控制 3D 网络结构和增加氢键数量,可赋予 MXene 水凝胶自修复功能和高机械强度^[33]。Zhang 等^[34]以聚 N-异丙基丙烯酰胺和 MXene 为原料合成了一种物理交联的双网络水凝胶,其具有优异的力学性能和电导率(1.092 S/m),可用于应变传感器(图 2(c))。Liao 等^[35]将 MXene 纳米片嵌入由聚丙烯酰胺和聚乙烯醇组成的聚合物网络,并浸入乙二醇溶液中替代部分水分子而制备出防冻、自修复和导电的 MXene 复合有机水凝胶压力传感器。它在 -40 °C 下仍可以稳定工作,并在低温人机界面的应用中显示出巨大潜力。

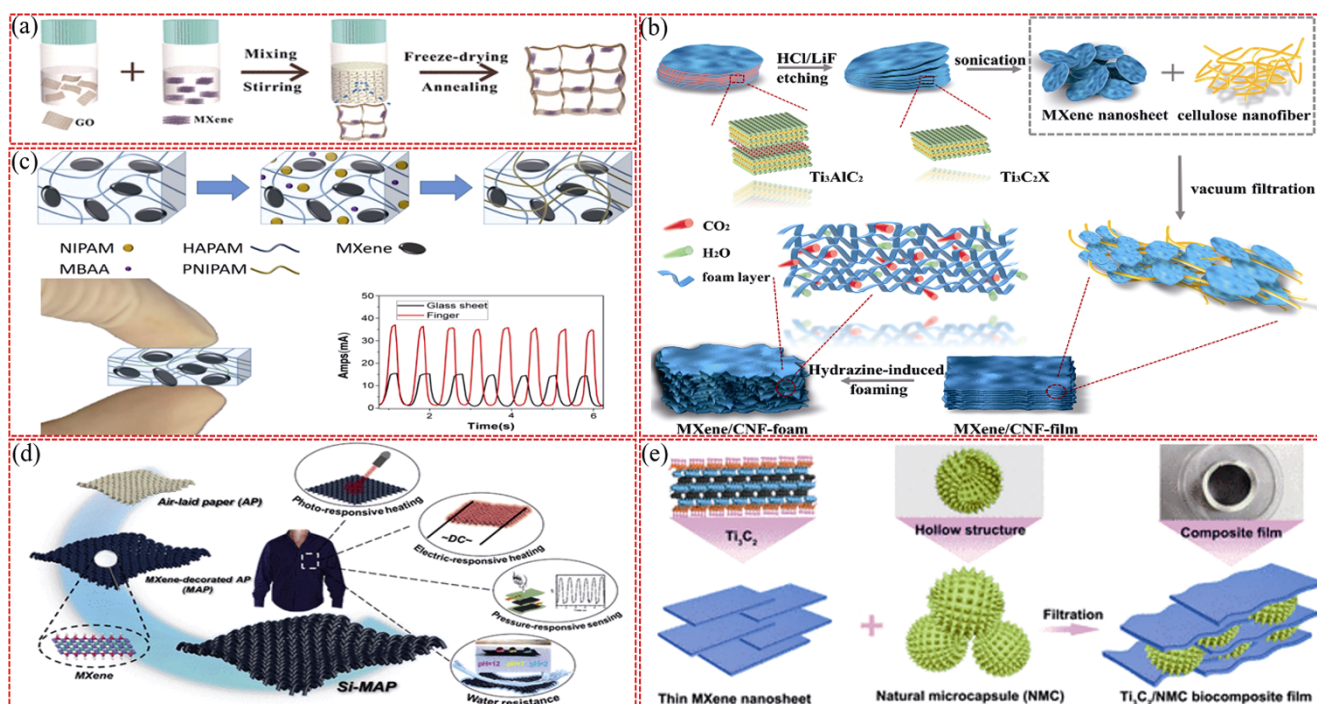


图 2 基于 MXene 的结构设计

Fig. 2 Structural designs based on MXene

Schematic illustration of the fabrication of (a) $\text{Ti}_3\text{C}_2\text{T}_x/\text{rGO}$ aerogel^[30], (b) $\text{Ti}_3\text{C}_2\text{T}_x/\text{CNF}$ foam^[12], (c) $\text{Ti}_3\text{C}_2\text{T}_x$ hydrogel^[34], (d) $\text{Ti}_3\text{C}_2\text{T}_x$ /cotton fabric composite material^[37] and (e) biomimetic interconnected bio-composite film^[39]

2.3 MXene 基柔性衬底压力传感器

制造压力传感器的另一种方法是通过纺丝、浸涂和沉积等途径直接将 MXene 附着到柔性衬底上,从而提高传感器的柔韧性^[36]。柔性衬底表面的基团会与 MXene 相互作用,改善其性能。例如, MXene 可通过喷涂或浸涂沉积在棉织物上(图 2(d))^[37]。该复合材料保留了织物网络的柔韧性,并有效防止了 MXene 的堆叠,保证了导电路径的连续性。该智能纺织品压力传感器可用于监测人体运动。

2.4 MXene 基薄膜压力传感器

MXene 基薄膜压力传感器同样具有很好的应用前景,它们以更薄和更轻的形态实现更高的灵敏度、稳定性和耐磨性。一些聚合物具有高稳定性和柔韧性,可以与 MXene 结合,通过逐层组装或旋涂方法制备导电柔性薄膜^[38]。例如, Shen 等^[39]将海胆状的向日葵孢子与 MXene 混合,制备出仿生互锁结构的生物复合膜(图 2(e))。该互锁结构可以有效调节外力下的应力分布,避免压力集中而引起裂纹。与 MXene 平面结构传感器相比,其灵敏度提高了 9.4 倍。此外, MXene 和纳米纤维(纳米线)的组合也是实现导电薄膜的常见选择。例如, Chen 等^[40]将 MXene 和 AgNWs 逐层喷涂在聚对苯二甲酸乙二醇酯薄膜上,获得了高导电和电磁屏蔽的复合薄膜。

3 压力传感机制

根据信号转换方式的不同,压力传感器可分为压阻式、电容式、压电式、摩擦电式、电池式和纳米流体式等种类。不同工作原理的传感器所需的材料特性也不同。因此,当 MXene 用于特定工作原理的压力传感器时,需要优化其相应性能。

3.1 压阻式传感器

压阻式传感器的性能主要取决于传感层的电阻变化。其传感模型可用式(1)来表示^[41]:

$$\Delta R/R_0 = (1 + 2\mu)\varepsilon + \Delta\sigma/\sigma \quad (1)$$

式中, ΔR 为电阻变化量(Ω); R_0 为初始电阻(Ω); μ 为泊松比; ε 为应变; $\Delta\sigma$ 为电阻率变化量($\Omega \cdot \text{m}$); σ 为初始电阻率($\Omega \cdot \text{m}$)。

当 $\text{GF} = (\Delta R/R_0)/\varepsilon$ 时(即 $\text{GF} = 1 + 2\mu + (\Delta\sigma/\sigma)/\varepsilon$),可以通过加剧电阻率的变化来增大 GF(GF 代表灵敏度)。MXene 在压阻传感器中主要用作压力传感层,因此提升性能的重点在于优化其结构。MXene 压阻传感器以其优异的性能以及简单的结构、工作机制和制造工艺而受到广泛研究。以 Yue 等^[31]提出的 MXene-海绵为例,施加压力,器件会发生可逆的压缩变形。这种结构变化将导致微纤维扭曲并相互

接触产生新的导电路径, 从而减小电阻(图 3(A))。该器件在宽压力范围(5.37~8.56 kPa)内具有高灵敏度(442 kPa^{-1})、快速的响应时间(138 ms)和超过 10000 次循环的出色耐用性。

3.2 电容式传感器

顾名思义, 压力可引起电容式传感器的电容变化。可通过调节电极面积、间距和材料的介电常数来优化其性能。MXene 具有柔韧性和高导电性, 通常可用作电容式传感器的电极或构建微观结构以调节压力下的面积。例如, Qin 等^[42]选择四个 PET-Cu 电极指作为信号采集层, 使用 MXene/PVP 滤纸层作为介电层来制备电容式压力传感器。如图 3(B)所示, 介电层仅部分接触电极层, 介电材料在给定压力下的变形越多, 其电容的变化就越大。随着压力的增加, 层间隙减小, 介电层与电极层会紧密接触, 并因变形而填充充指电极之间的凹槽, 从而加剧电容变化。此器件具有高灵敏度($\sim 1.25 \text{ kPa}^{-1}$)、低检测限($\sim 0.6 \text{ Pa}$), 以及高循环稳定性(10000 次)。

3.3 摩擦电式传感器

摩擦带电的本质是具有不同电子吸引能力的两种接触材料之间的电荷转移。MXene 具有柔韧性和高导电性, 常作为柔性电极或电子供体应用于摩擦电式传感器。例如, Tan 等^[43]将 MXene 掺入丝素蛋白气凝胶(SF@MXene-A)中制备了一种生物相容的传感器。如图 3(C)所示, 正摩擦电层由 SF@MXene-A 组成, 负摩擦电层由 PDMS 海绵制成。按压器件时, 初始为电中性的摩擦层相接触, 两摩擦层的界面处发生能带弯曲, 使费米能级对齐。摩擦电效应使电荷发生转移, 导致正电荷和负电荷分别积聚在 SF@MXene-A 和 PDMS 海绵的表面。随着压力释放, 摩擦层逐渐分离, 电极之间建立电势差, 导致电子通过外部电路形成回路, 从而产生电信号。当两摩擦层再次接近时, 电极间电位差的变化使电荷流回外部电路, 产生反向电信号。其最大开路电压为 545 V, 最大短路电流为 $16.13 \mu\text{A}$ 。

3.4 压电式传感器

压电传感器基于压电效应, 在外力作用下, 材料内部电荷不均匀, 产生电荷极化; 释放外力后电荷极化被去除。压电传感器的性能主要取决于压电材料。研究表明, MXene 是一种具有非中心对称晶格结构的高取向压电材料^[44]。MXene 还可与压电聚合物材料如聚偏二氟乙烯(PVDF)等结合以进一步提高其压电性能。例如, Han 等^[45]采用微注射成型技术制备了 PVDF/MXene 压电微器件(图 3(D)), 强剪切速率和 MXene 大量极性 C-F 官能团的协同效应

促进了 β 型 PVDF 晶体的形成。此外, 剪切诱导的 β 型串晶结构具有高取向度, MXene 的规则堆叠迫使偶极子规则排列并产生自极化效应。器件的开路电压和短路电流分别达到 15.2 V 和 497.3 nA。该压电传感器可用于监测各种人体运动。

3.5 电池式传感器

近年来, 研究人员开发出一体化的自驱动压力传感器, 其本质为能量存储器件((原)电池)。利用器件两个电极之间的氧化还原反应将压力信号转化为可持续的电信号输出。MXene 具有柔韧性和丰富的官能团, 可以吸附各种离子, 因此可用作氧化还原电极。例如, Lei 等^[46]提出一种新的 rGM(rGO/GO/PVA 纳米纤维/MXene)全固态柔性压力传感器, 其具体机制如图 3(E)所示。无压力时, 绝缘的 PVA 纳米纤维网络可隔离电极, 导致断路; 压力作用下, 其无法继续隔离 MXene 电极, 导致电极和水合 GO 固体电解质接触。由于水合 GO 具有优异的离子传输特性, 氧化还原反应顺利发生在正负电极, 从而产生稳定的电信号。此传感器具有 0.58 V 和 $3.2 \mu\text{A}/\text{cm}^2$ 的最大输出。

3.6 纳米流体传感器

离子选择性膜是自驱动纳米流体压力传感器的核心部件。由于电荷在离子选择性膜通道表面上的静电排斥效应, 受限沟道中只存在反离子(与表面电荷极性相反)。当电解质受压力驱动时, 仅有反离子通过受限沟道, 从而产生净电荷的定向运动及电信号。研究表明, 负电性的 MXene 可以构建具有离子选择性的二维纳流沟道^[47]。目前, 关于纳米流体压力传感器的研究鲜有报道。Liu 等^[48]提出了一种 MXene/CNF 离子选择性复合膜构建的二维纳流通道(图 3(F)), 实现了自驱动的线性压力传感。

4 总结与展望

近年来, MXene 以其高导电性、优异的亲水性、丰富且可调的表面官能团、层间距可调等特点而在压力传感器领域受到越来越多的关注。本文介绍了 MXene 的合成和抗氧化方法, 重点回顾了 MXene 压力传感器的制备方法, 包括气凝胶/多孔结构材料、水凝胶、柔性衬底和薄膜。进一步介绍了 MXene 压力传感器的机理, 包括压阻式、电容式、压电式、摩擦电式、电池式和纳米流体式。目前, 虽然 MXene 基压力传感器的研究取得了较大进展, 然而, 其在实际应用中仍有很多关键问题需要克服。

(1) MXene 的合成。含氟试剂的高毒性和腐蚀

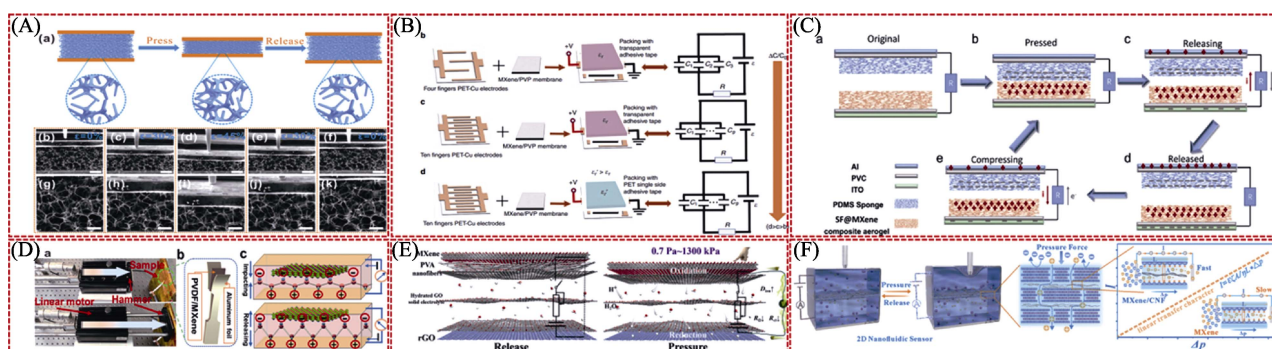


图 3 基于 MXene 的压力传感机制

Fig. 3 Pressure-sensing mechanism based on MXene

Schematic representation of the working mechanisms of (A) MXene-sponge piezoresistive pressure sensor^[31], (B) MXene/PVP-based capacitive pressure sensor^[42], (C) SF@MXene-A based triboelectric nanogenerator^[43], (D) PVDF/MXene piezoelectric pressure sensor^[45], (E) rGM battery typed pressure sensor^[46] and (F) MXene/CNF nanofluid pressure sensor^[48]

性以及较长的刻蚀时间对人体和环境具有潜在的危害性。因此,探索无氟合成方法迫在眉睫。氟刻蚀容易造成高缺陷和小尺寸 MXene 纳米片,严重破坏导电性并影响器件性能。为此,还需进一步开发能够精确控制 MXene 形貌和端接基团的方法。目前,大部分 MXene 合成方法的产率还比较低,无法在工业中大量使用。未来的研究应该开发适合大规模生产的可靠和可扩展的制造工艺。同时,还可以探索其他种类的 MXene 材料(基于 Nb, V 或 Mo),通过调控元素、结构和组分,实现更好的传感性能和机械特性。

(2) MXene 的属性。MXene 材料在高温或潮湿环境下容易氧化,这对传感器的长期稳定性和有效性极为不利。因此,迫切需要探索合理的 MXene 抗氧化设计策略。此外,生物适应性和自然降解性对于 MXene 材料的应用和发展也很重要。虽然有研究报道实现了 MXene 压力传感器的降解,但需要特定的试剂。因此, MXene 的生物适应性和自然降解能力有待进一步研究。

(3) MXene 的传感性能。尽管基于 MXene 的压力传感器已经同时满足高灵敏度和宽感应范围的要求,但很难在一种特定的传感材料中综合所有的性能特点,如线性度、响应时间、检测限、循环稳定性和动态响应性等。因此,需要在现有研究基础上对 MXene 基压力传感器的微/纳结构开展更加深入的探索,用以提高其综合传感性能。在实际应用方面, MXene 压力传感器需要具备良好的稳定性,必须研究新的封装技术以提高其耐腐蚀性、耐温性和耐湿性,以便长时间运行和应对极端环境。同时,使用寿命也是压力传感器面临的一个关键挑战,在未来压力传感器的设计中应考虑各种物理和化学因素的影响,以提高其稳定性和循环寿命。另外,随着电

子皮肤领域的快速发展,小型化自驱动设备的研究将呈上升趋势。因此,多合一或一体式自驱动压力传感器的研究需要引起更多关注。此外,在压力传感器的基础上,还可探索与其它传感功能的结合,如温度、光学、化学等,实现多功能传感。

总的来说, MXene 在压力传感器领域具有广阔的应用前景,在研究人员的努力下, MXene 将在压力传感器的应用中显示出更大的价值。

参考文献:

- [1] YANG R X, DUTTA A K, LI B W, *et al.* Iontronic pressure sensor with high sensitivity over ultra-broad linear range enabled by laser-induced gradient micro-pyramids. *Nature Communications*, 2023, **14**: 2907.
- [2] XIONG X Y, LIANG J, WU W. Principle and recent progress of triboelectric pressure sensors for wearable applications. *Nano Energy*, 2023, **113**: 108542.
- [3] BOUTRY C M, KAIZAWA Y, SCHROEDER B C, *et al.* A stretchable and biodegradable strain and pressure sensor for orthopaedic application. *Nature Electronics*, 2018, **1**(5): 314.
- [4] SHI Z Y, MENG L X, SHI X L, *et al.* Morphological engineering of sensing materials for flexible pressure sensors and artificial intelligence applications. *Nano-Micro Letters*, 2022, **14**(1): 141.
- [5] XU T, SONG Q, LIU K, *et al.* Nanocellulose-assisted construction of multifunctional MXene-based aerogels with engineering biomimetic texture for pressure sensor and compressible electrode. *Nano-Micro Letters*, 2023, **15**(1): 98.
- [6] YANG Y N, WANG R R, SUN J. MXenes in flexible force sensitive sensors: a review. *Journal of Inorganic Materials*, 2019, **35**(1): 8.
- [7] CHOI J, KWON D, KIM B, *et al.* Wearable self-powered pressure sensor by integration of piezo-transmittance microporous elastomer with organic solar cell. *Nano Energy*, 2020, **74**: 104749.
- [8] CHEN S W, WU N, LIN S Z, *et al.* Hierarchical elastomer tuned self-powered pressure sensor for wearable multifunctional cardiovascular electronics. *Nano Energy*, 2020, **70**: 104460.
- [9] DING L, JIANG R, TANG Z L, *et al.* MXene: nanoengineering and application as electrode materials for supercapacitors. *Journal of Inorganic Materials*, 2022, **38**(6): 619.
- [10] WANG Y Z, GUO T C, TIAN Z N, *et al.* MXenes for energy

- harvesting. *Advanced Materials*, 2022, **34**(21): 2108560.
- [11] HO D H, CHOI Y Y, JO S B, *et al.* Sensing with MXenes: progress and prospects. *Advanced Materials*, 2021, **33**(47): 2005846.
- [12] SU T Y, LIU N S, GAO Y H, *et al.* MXene/cellulose nanofiber-foam based high performance degradable piezoresistive sensor with greatly expanded interlayer distances. *Nano Energy*, 2021, **87**: 106151.
- [13] NAGUIB M, BARSOUM M W, GOGOTSI Y. Ten years of progress in the synthesis and development of MXenes. *Advanced Materials*, 2021, **33**(39): 2103393.
- [14] VAHIDMOHAMMADI A, ROSEN J, GOGOTSI Y. The world of two-dimensional carbides and nitrides (MXenes). *Science*, 2021, **372**(6547): eabf1581.
- [15] WANG Y X, YUE Y, CHENG F, *et al.* $\text{Ti}_3\text{C}_2\text{T}_x$ MXene-based flexible piezoresistive physical sensors. *ACS Nano*, 2022, **16**(2): 1734.
- [16] CHEN J X, LI Z L, NI F L, *et al.* Bio-inspired transparent MXene electrodes for flexible UV photodetectors. *Materials Horizons*, 2020, **7**(7): 1828.
- [17] LI M, HUANG Q. Recent progress and prospects of ternary layered carbides/nitrides MAX phases and their derived two-dimensional nanolaminates MXenes. *Journal of Inorganic Materials*, 2019, **35**(1): 1.
- [18] NAGUIB M, MASHTALIR O, CARLE J, *et al.* Two-dimensional transition metal carbides. *ACS Nano*, 2012, **6**(2): 1322.
- [19] ZHANG J F, CAO H Y, WANG H B. Research progress of novel two-dimensional material MXene. *Journal of Inorganic Materials*, 2017, **32**(6): 561.
- [20] URBANKOWSKI P, ANASORI B, MAKARYAN T, *et al.* Synthesis of two-dimensional titanium nitride Ti_4N_3 (MXene). *Nanoscale*, 2016, **8**(22): 11385.
- [21] LI M, LU J, LUO K, *et al.* Element replacement approach by reaction with lewis acidic molten salts to synthesize nanolaminated MAX phases and MXenes. *Journal of the American Chemical Society*, 2019, **141**(11): 4730.
- [22] LI T F, YAO L L, LIU Q L, *et al.* Fluorine-free synthesis of high-purity $\text{Ti}_3\text{C}_2\text{T}_x$ ($\text{T}=\text{OH}$, O) via alkali treatment. *Angewandte Chemie International Edition*, 2018, **57**(21): 6115.
- [23] WU Z G, WEI L S, TANG S W, *et al.* Recent progress in $\text{Ti}_3\text{C}_2\text{T}_x$ MXene-based flexible pressure sensors. *ACS Nano*, 2021, **15**(12): 18880.
- [24] KAMYSBAYEV V, FILATOV A S, HU H C, *et al.* Covalent surface modifications and superconductivity of two-dimensional metal carbide MXenes. *Science*, 2020, **369**(6506): 979.
- [25] CHAE Y, KIM S J, CHO S Y, *et al.* An investigation into the factors governing the oxidation of two-dimensional Ti_3C_2 MXene. *Nanoscale*, 2019, **11**(17): 8387.
- [26] SEREDYCH M, SHUCK C E, PINTO D, *et al.* High-temperature behavior and surface chemistry of carbide MXenes studied by thermal analysis. *Chemistry of Materials*, 2019, **31**(9): 3324.
- [27] PERSSON I, HALIM J, HANSEN T W, *et al.* How much oxygen can a MXene surface take before it breaks? *Advanced Functional Materials*, 2020, **30**(47): 1909005.
- [28] ZHAO X F, VASHISTH A, BLIVIN J W, *et al.* pH, nanosheet concentration, and antioxidant affect the oxidation of $\text{Ti}_3\text{C}_2\text{T}_x$ and Ti_2CT_x MXene dispersions. *Advanced Materials Interfaces*, 2020, **7**(20): 2000845.
- [29] LONG S S, FENG Y C, HE F L, *et al.* Biomass-derived, multifunctional and wave-layered carbon aerogels toward wearable pressure sensors, supercapacitors and triboelectric nanogenerators. *Nano Energy*, 2021, **85**: 105973.
- [30] MA Y N, YUE Y, ZHANG H, *et al.* 3D synergistical MXene/reduced graphene oxide aerogel for a piezoresistive sensor. *ACS Nano*, 2018, **12**(4): 3209.
- [31] YUE Y, LIU N S, LIU W J, *et al.* 3D hybrid porous MXene-sponge network and its application in piezoresistive sensor. *Nano Energy*, 2018, **50**: 79.
- [32] SUN X, YAO F L, LI J J. Nanocomposite hydrogel-based strain and pressure sensors: a review. *Journal of Materials Chemistry A*, 2020, **8**(36): 18605.
- [33] ZHANG Y Z, LEE K H, ANJUM D H, *et al.* MXenes stretch hydrogel sensor performance to new limits. *Science Advances*, 2018, **4**(6): eaaf0098.
- [34] ZHANG Y L, CHEN K X, LI Y S, *et al.* High-strength, self-healable, temperature-sensitive, MXene-containing composite hydrogel as a smart compression sensor. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2019, **11**(50): 47350.
- [35] LIAO H, GUO X L, WAN P B, *et al.* Conductive MXene nanocomposite organohydrogel for flexible, healable, low-temperature tolerant strain sensors. *Advanced Functional Materials*, 2019, **29**(39): 1904507.
- [36] ZHENG Y J, YIN R, ZHAO Y, *et al.* Conductive MXene/cotton fabric based pressure sensor with both high sensitivity and wide sensing range for human motion detection and E-skin. *Chemical Engineering Journal*, 2021, **420**: 127720.
- [37] MA C, YUAN Q, DU H S, *et al.* Multiresponsive MXene ($\text{Ti}_3\text{C}_2\text{T}_x$)-decorated textiles for wearable thermal management and human motion monitoring. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2020, **12**(30): 34226.
- [38] CHAO M Y, HE L Z, GONG M, *et al.* Breathable $\text{Ti}_3\text{C}_2\text{T}_x$ MXene/protein nanocomposites for ultrasensitive medical pressure sensor with degradability in solvents. *ACS Nano*, 2021, **15**(6): 9746.
- [39] WANG K, LOU Z, WANG L L, *et al.* Bioinspired interlocked structure-induced high deformability for two-dimensional titanium carbide (MXene)/natural microcapsule-based flexible pressure sensors. *ACS Nano*, 2019, **13**(8): 9139.
- [40] LIU L X, CHEN W, ZHANG H B, *et al.* Flexible and multifunctional silk textiles with biomimetic leaf-like MXene/silver nanowire nanostructures for electromagnetic interference shielding, humidity monitoring, and self-derived hydrophobicity. *Advanced Functional Materials*, 2019, **29**(44): 1905197.
- [41] RIM Y S, BAE S H, CHEN H J, *et al.* Recent progress in materials and devices toward printable and flexible sensors. *Advanced Materials*, 2016, **28**(22): 4415.
- [42] QIN R Z, HU M J, LI X, *et al.* A new strategy for the fabrication of a flexible and highly sensitive capacitive pressure sensor. *Microsystems & Nanoengineering*, 2021, **7**(1): 100.
- [43] TAN X, WANG S, YOU Z, *et al.* High performance porous triboelectric nanogenerator based on silk fibroin@MXene composite aerogel and PDMS sponge. *ACS Materials Letters*, 2023, **5**(7): 1929.
- [44] TAN D C, JIANG C M, SUN N, *et al.* Piezoelectricity in monolayer MXene for nanogenerators and piezotronics. *Nano Energy*, 2021, **90**: 106528.
- [45] HAN R, ZHENG L, LI G Z, *et al.* Self-poled poly(vinylidene fluoride)/MXene piezoelectric energy harvester with boosted power generation ability and the roles of crystalline orientation and polarized interfaces. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2021, **13**(39): 46738.
- [46] LEI D D, ZHANG Q X, LIU N S, *et al.* An ion channel-induced self-powered flexible pressure sensor based on potentiometric transduction mechanism. *Advanced Functional Materials*, 2022, **32**(5): 2108856.
- [47] ZHAN H L, XIONG Z Y, CHENG C, *et al.* Solvation-involved nanoionics: new opportunities from 2D nanomaterial laminar membranes. *Advanced Materials*, 2020, **32**(18): 1904562.
- [48] YUE Y, LIU N S, SU T Y, *et al.* Self-powered nanofluidic pressure sensor with a linear transfer mechanism. *Advanced Functional Materials*, 2023, **33**(13): 2211613.