



可自贴肤的超薄表皮电生理电极的制备及应用

胡文亚, 宋德魁, 施潇虎, 刘楠*

北京师范大学化学学院, 北京 100875

*通讯作者, E-mail: nanliu@bnu.edu.cn

收稿日期: 2022-01-24; 接受日期: 2022-03-21; 网络版发表日期: 2022-03-28

国家自然科学基金(编号: 21903007和22072006)资助项目

摘要 柔性可穿戴表皮电生理电极在人工智能和生命健康等领域具有重要的意义。稳定高质量的表皮电生理信号的获得是监测人体生理信息的关键。目前, 常用于临床诊断的Ag/AgCl凝胶电极还存在许多不足, 包括在长期使用时带来严重的不适感以及无法避免的运动伪影等。因此, 迫切需要开发可长期用于表皮穿戴的、有效避免运动伪影的电生理电极。具有与皮肤杨氏模量相近、厚度极薄($<1\ \mu\text{m}$)的可自贴肤的电极是满足上述需求的典型电极。本文详细介绍了该类表皮电生理电极的研究进展, 依据材料种类的不同分门别类综述了其设计思想、基本特征及穿戴时的优缺点, 同时, 论述了自贴肤超薄电极在医疗诊断和分析、人机交互中的应用, 并展望了其在电生理信号采集方面的机遇和挑战。

关键词 可穿戴电子, 超薄电极, 电子纹身, 表皮电生理信号

1 引言

电子皮肤是一种具有触感能力、与人体皮肤属性类似的柔性可穿戴电子系统^[1,2]。评估人体健康状况的重要临床指标——电生理信号, 是一类可以从人体组织和器官中捕获的最基本的生理信息^[3-5], 主要包括心电(ECG)、肌电(EMG)、眼电(EOG)和脑电(EEG)。其中, ECG与心肌细胞的传导有关, 反映了心脏的整体活动, 通常可以用作检测心律失常的指标^[6,7]。EMG是来源于肌纤维细胞活动的电信号, 因此与肌肉激活、肌肉疲劳等方面密切相关^[8]。EOG能够反映眼球运动和视网膜刺激, 该信号是由带正电的眼角膜与带负电的视网膜之间存在的电位差引起的^[9,10]。EEG信号为脑机接口提供了一种可行的方法。电生理信号提供的

丰富信息为可穿戴电子设备^[11]、医学诊疗^[12]、药物输运^[13]、运动训练^[14]、人机交互^[15]等领域开辟了一条新途径。

电极是捕获由低电位驱动产生的电生理信号的关键。根据应用场景的不同, 检测电生理信号的方式可分为表皮式和侵入式。侵入式电极捕获的电生理信号具有较高的信噪比(SNRs), 但是上述方法会对人体造成创伤。与此相反, 表皮式电极对人体的危害较小, 但也存在一些需要解决的问题。目前, Ag/AgCl凝胶电极是一种临床使用的表皮式电极, 虽然能够提供较高的信号质量, 但是凝胶易刺激皮肤引发不适, 并且在长时间佩戴后出现水分流失的问题, 增加了皮肤与电极之间的接触阻抗^[16], 此外, 硬质的凝胶电极与存在复杂褶皱的皮肤接触时还易引发相对位移, 从而产生较大

引用格式: Hu W, Song D, Shi X, Liu N. Preparation and application of self-adhesive ultra-thin epidermal electrophysiological electrodes. *Sci Sin Chim*, 2022, 52: 837–847, doi: 10.1360/SSC-2022-0019

的运动伪影^[17], 因此上述凝胶电极很难用于表皮穿戴式设备的长期监测和诊断. 随着柔性电子技术的发展, 柔性可穿戴表皮电生理电极受到广泛关注, 与Ag/AgCl凝胶电极相比, 该类电极不仅能够和皮肤紧密结合, 而且对皮肤的刺激较小, 更适合人体的日常可穿戴监测. 因此, 具有能与皮肤杨氏模量相近、厚度极薄($<1\ \mu\text{m}$)、生物兼容等特点的可自贴肤的超薄表皮电生理电极逐渐成为实现低运动伪影、高信噪比、长期稳定监测表皮电生理信号的理想选择^[18,19].

本文综述了该类表皮电生理电极的研究进展, 依据材料种类的不同分门别类的介绍了其设计思想、基本特征及穿戴时的优缺点, 同时, 阐述了自贴肤超薄电极在医疗诊断和分析、人机交互中的应用, 并对其在电生理信号采集方面的机遇和挑战进行了展望.

2 表皮电生理信号的采集

2.1 表皮电生理信号

人体器官表面采集的电生理信号是细胞水平上电活动所产生的生物电, 准确采集上述信号在医学诊疗、人机交互等领域具有重要意义. 采集电生理信号的电极可分为侵入式电极和表皮式电极. 贴附在人体体内器官上的侵入式电极通常需要外科手术进行植入, 这会给人体带来损伤, 同时在一定程度上对于材料的稳定性、生物兼容性要求较高. 而贴附在皮肤表面的表皮电极可以避免这一危害, 并且适合在日常生活中使用. 一般来说, 通过上述方法获得的电生理信号称为表皮电生理信号, 表皮电生理电极的发展在可穿戴式医疗设备等领域具有广泛的应用前景.

2.2 表皮电极的理想特性

为了能够连续获得高保真的电生理信号, 并用于长期可穿戴式设备, 理想的表皮电极应具有导电性、柔性、可拉伸性、厚度较薄、透气性和生物相容性等重要特性^[10].

具有良好导电性的电极能降低噪声干扰, 提高电极记录的信号质量, 有利于提高信号采集的信噪比. 传统的Ag/AgCl硬质凝胶电极具有较高的导电性, 但不能实现可穿戴的功能, 因此, 开发高导电性电极材料用于柔性、可拉伸的表皮电极至关重要^[20]. 柔性与材料的杨氏模量紧密相关, 人体皮肤的杨氏模量较低

(60~850 kPa)^[21], 为了防止皮肤受损并保证穿戴的舒适性, 表皮电极应具有与人体皮肤杨氏模量相似的特点. 电极的可拉伸性与柔性不同, 拉伸性反映的是材料适应弯曲、拉伸、扭曲等变形的能力. 人体皮肤只能够承受一定程度的机械应变($\sim 15\%$), 因此表皮电极必须具有与人体皮肤相匹配的机械性能, 具有较高拉伸性($>15\%$)的表皮电极能保持皮肤与电极之间的共形接触, 确保电极在皮肤变形期间稳定地检测信号^[22,23].

人体皮肤表面复杂的三维结构增加了电生理信号测量的难度, 电生理信号的采集质量与电极-皮肤界面接触程度紧密相关. 电极与皮肤的微观结构紧密贴合形成的共形接触有助于最大限度地减少运动伪影和背景噪声, 对于高保真电生理信号的检测至关重要. 厚度较薄的电极能够与皮肤的皱纹和凹陷处保持更大的接触面积, 从而保证与人体皮肤建立更好的共形接触^[3,24,25]. 同时, 厚度较薄的电极对可穿戴设备的舒适性也具有重要意义. 此外, 电极对皮肤的黏附十分关键, 当皮肤发生严重变形或出汗时, 较大的界面黏附力能降低界面阻抗, 提高信噪比^[26,27]. 因此, 可以通过调节电极的厚度、材料的粘性和杨氏模量^[28]等参数的方法, 使电极与皮肤共形接触, 达到一个自贴肤的状态, 从而获得更可靠的人体生理信息.

另外, 商用Ag/AgCl电极的导电凝胶在长期使用时会引起皮肤刺激或炎症, 长时间穿戴的表皮电生理电极通常不宜使用导电凝胶, 而采用干电极的形式. 因此, 为实现表皮电生理电极的长期穿戴, 电极的透气性和生物兼容性也起着至关重要的作用^[29,30].

3 表皮电极的制备及电生理检测

皮肤的复杂三维结构增加了表皮电生理信号采集的难度. 因此, 为满足高质量监测表皮电生理信号、长期表皮穿戴、低运动伪影等需求, 材料的合理选择和电极的优化设计对于可自贴肤的超薄表皮电生理电极十分关键. 在本节中, 我们将综述基于不同材料的表皮电生理电极的研究进展, 特别是基于金属材料、碳基材料、导电聚合物以及其它材料(如: 无机化合物、水凝胶、离子凝胶等)的电极(表1). 此外, 我们讨论了蛇形网络^[31,32]、金属纳米线渗透网络^[33,34]和裂纹结构^[35]等常见的电极结构优化设计策略.

表 1 不同材料表皮电极的总结

Table 1 Summary of epidermal electrodes of different materials

材料	电导率/电阻率	杨氏模量	拉伸性(%)	厚度	信噪比/幅度	参考文献
Au/聚酰亚胺	/	<150 kPa	>30	<7 μm	EMG: $\sim 100 \mu\text{V}$ vs. $\sim 100 \mu\text{V}$ (Conv. ^{a)})	[1]
Au	/	$\sim 85 \text{ MPa}$	>30	$\sim 0.8 \mu\text{m}$	EMG: $\sim 1 \text{ mV}$	[36]
Au纳米网/PVA	$5.3 \times 10^{-7} \Omega \text{ m}$	/	~ 48	$\sim 70 \text{ nm}$	EMG: $\sim 1 \text{ mV}$ vs. $\sim 1 \text{ mV}$ (Conv.)	[29]
AgNWs/PUNF	9190 S cm^{-1}	/	~ 310	$\sim 3 \mu\text{m}$	ECG: 24.31 dB vs. 24.86 dB (Conv.)	[37]
AgNWs/PANFs	$\sim 4 \Omega \text{ sq}^{-1}$	/	>50	$\sim 125 \text{ nm}$	At 10 Hz: $\sim 10^5 \Omega$ vs. $\sim 3 \times 10^5 \Omega$ (Conv.)	[44]
石墨烯/PMMA	/	$\sim 3.3 \text{ GPa}$	>40	$\sim 460 \text{ nm}$	ECG: 15.22 dB vs. 11 dB (Conv.)	[45]
石墨烯/丝素蛋白/ Ca^{2+}	/	/	~ 50	$\sim 80 \mu\text{m}$	ECG: $\sim 2 \text{ mV}$ vs. 2 mV (自愈合后)	[28]
PEDOT:PSS/石墨烯	4142 S cm^{-1}	$\sim 640 \text{ kPa}$	~ 30	100 nm	EMG: 21 dB vs. 14 dB (Conv.)	[52]
PEDOT/水凝胶/Au	$35 \pm 5 \Omega \text{ sq}^{-1}$	/	>20	$\sim 0.5 \text{ mm}$	At 10 Hz: $\sim 10^2 \Omega$ vs. $\sim 10^3 \Omega$ (金电极)	[54]
PAM/Ca-Alg/TPU/Au	/	$\sim 11.5 \text{ kPa}$	~ 35	$137 \mu\text{m}$	EMG: 43.03 dB vs. 17.8 dB (金电极)	[55]
pDAM/Au/PDMS	/	<100 kPa	~ 30	$160 \mu\text{m}$	能在水下连续15分钟稳定地收集ECG	[58]
PEDOT:PSS/SMS/PVA-GA	3.79 S cm^{-1}	401.9 kPa	400	$270 \sim 340 \mu\text{m}$	EMG: $\sim 0.8 \text{ mV}$ vs. $\sim 0.8 \text{ mV}$ (Conv.)	[59]

a) Conv., 传统商用Ag/AgCl电极.

3.1 金属材料

金属具有优良的电学和力学性能, 因此被广泛用作电极材料. 通过巧妙设计的特殊结构, 可以实现厚度至纳米级别的超薄电极. 金属蛇形网络和金属纳米线网络是经典的两类结构设计方案, 其中, 金属导电材料的选择以金和银最为常见.

2011年, Rogers等^[1]报道了一种由金属制备的厚度为几微米的一次性纹身电极. 在聚酰亚胺薄膜上电子束蒸发金属(Cr/Au), 并印刷转移至作为临时支架的水溶性聚乙烯醇(PVA)上, 贴附在皮肤上并用水冲洗溶解PVA能使电极以范德华力的方式与皮肤直接紧密接触, 而无需任何固定胶带. 在施加一定程度机械力时, 该电极可以实现自由可逆变形且不受运动的约束(图1a). 此外, 该电极能够连续使用6 h, 并且在手臂、颈部、前额等部位佩戴 24 h或更长时间的条件下不会对皮肤产生刺激. 为进一步减小电极的厚度, 2013年, Rogers等^[36]通过光刻和电子束蒸发沉积金属的湿法蚀刻方法获得了厚度仅有几百纳米的蛇形网络表皮电生理传感器. 蛇形网络(宽度为 $10 \mu\text{m}$)的结构设计使表皮电子系统与皮肤的接触得到优化(图1b), 提高了电极与皮肤间的共形接触程度. 该传感器能够在长达一周的时间里记录EMG、ECG. 在集成电子纹身基础上, Someya等^[29]使用了一种纳米网结构的纹身电极(图

1c), 即在静电纺丝的PVA纳米纤维基底上蒸镀Au, 去除PVA后的纳米网导体粘附在皮肤上. 纳米网络的设计可以显著降低引起皮肤炎症的风险. 该电极具有超薄($70 \sim 100 \text{ nm}$)、可拉伸(48%)、透气和良好的电学稳定性(10000次循环)等优点, 并且在为期一周的贴肤实验中不会引起皮肤炎症, 可直接用于人体皮肤电生理信号的长期监测. 该方法为用于系统、连续、长期健康监测的薄膜电子设备与皮肤的集成提供了一种新的可能性.

2019年, Someya等^[37]通过界面氢键设计了纳米纤维/纳米线(NFs/NWs)结构, 展示了一种制备多孔纳米网弹性导体的简便方法. 由银纳米线(AgNWs)和聚氨酯(PU)NFs组成的导体具有高导电性(9190 S cm^{-1})、高拉伸性(310%)和良好的耐久性(70%拉伸应变循环1000次后电阻增加82%)等特点. AgNWs之间的直接接触使其具有高导电性. AgNWs与PUNFs层状结构的协同作用和良好的附着力使其具有良好的力学性能(图1d). 此外, 该导体无需任何凝胶或胶带, 除了作为可呼吸的表皮电生理电极用于连续的记录电生理信号外, 也可以作为应变传感器用于精确的关节运动监测. Zhang等^[38]使用气泡吹制的方法制备了基于独立热塑性弹性体(TPE)的AgNWs薄膜电极(图1e). 该薄膜电极具有透明(83%)、超薄(150 nm)、可拉伸(62%)、透气性(水蒸气透过率为 $580.18 \text{ g m}^{-2} \text{ d}^{-1}$)的特点, 可以贴附

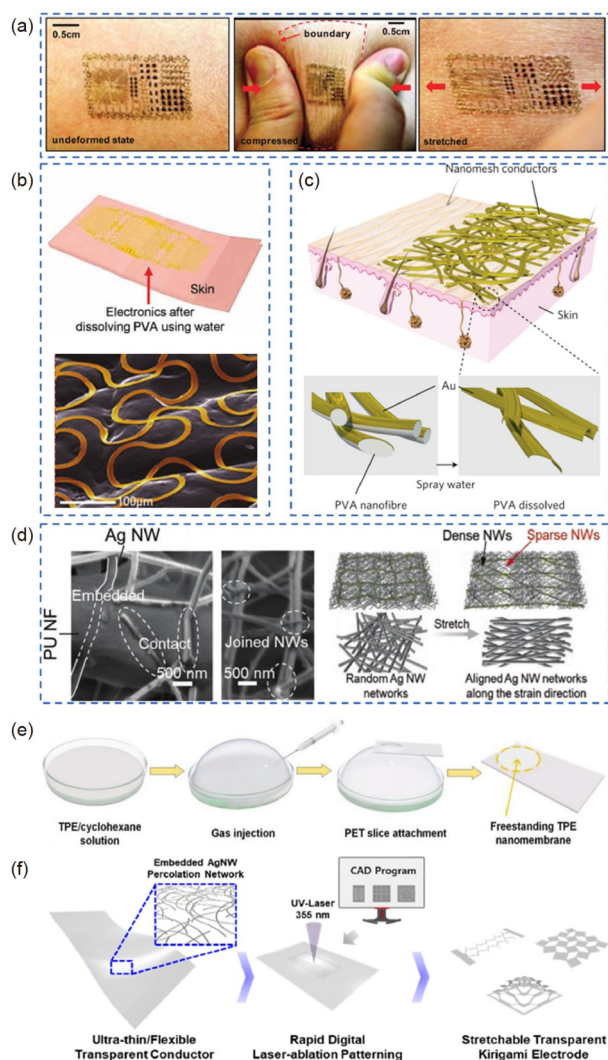


图 1 (a) 金属蛇形网络表皮电子系统: 未变形(左)、压缩(中)和拉伸(右)^[1]; (b) 表皮电子系统及其与皮肤适形接触的彩色SEM图像^[36]; (c) 纳米网导体示意图^[29]; (d) AgNWs形貌表征和示意图^[37]; (e) 独立式TPE纳米膜的制备工艺示意图^[38]; (f) 超薄/柔性AgNWs/cPI纳米复合材料的剪纸切割工艺示意图^[39] (网络版彩图)

Figure 1 (a) Metal-serpentine-network-based epidermal electronic systems: undeformed (left), compressed (middle), and stretched (right)^[1]; (b) a schematic diagram of epidermal electronic system and colorized SEM image of the conformal contact of the epidermal electronic system with the skin^[36]; (c) a schematic diagram of the nano-mesh conductors^[29]; (d) characterizations of morphology and schematic diagram of AgNWs^[37]; (e) schematic illustration of the freestanding TPE nano-membrane fabrication process^[38]; (f) schematic illustration of digital Kirigami cutting-process on the ultrathin/flexible AgNW/cPI nanocomposite^[39] (color online)

在人体皮肤上, 用于高质量的肌电图信号记录。此外, 由于具有超高灵敏度(969.3 kPa^{-1})和在宽频率范围内

(0~22000 Hz)的高信噪比(最大51 dB), 该装置还可作为振动传感器用于仿生电子耳膜。该电子设备为未来实现可穿戴医疗设备、人机界面提供了可行性。

此外, Ko等^[39]提出了一种通过剪纸艺术(Kirigami)实现透明、可拉伸电极制备的简单工艺(图1f)。在AgNWs/超薄无色聚酰亚胺(cPI)透明导体上应用Kirigami快速数字激光烧蚀图案化工艺, 可以赋予该薄膜电极弹性可拉伸的能力, 使其转变成多种可重构的形状, 在一万次拉伸循环后, 仍显示出优异的应变可逆性, 同时保持高透明度(>80%)和高导电性。该电极具有柔软、薄而适形的特性, 可以捕捉到人体皮肤不规则表面(如胸部、前额、太阳穴、前臂等)的各种电生理信号。另外, 还可以将其与四旋翼无人机集成, 通过手势控制无人机。

除上述材料外, 用于检测电生理信号的电极金属基材料还包括: Ag-In-Ga液态金属合金^[40,41]、Ag-Au核-鞘纳米线复合材料^[42]、基于不同弹性体的AgNWs^[43,44]等。虽然上述金属薄膜电极能够有效地记录电生理信号, 但是有很多制造过程需要光刻、高温或高真空的环境。因此, 开发低成本、简便的金属薄膜电极制造工艺具有重要的价值。

3.2 碳基材料

碳基材料具备优异的导电性、疏水表面和柔韧性等特点, 在柔性可穿戴表皮电生理电极领域受到广泛关注。迄今为止, 文献报道的基于碳基材料的超薄电极主要有石墨烯、碳纳米管复合材料。

2017年, Lu等^[45]第一次报道了亚微米厚的透明石墨烯电子纹身(GET), 通过蛇形网络结构的优化设计使GET具有一定的可拉伸性(40%), 成功检测了包括脑电、心电、肌电在内的表皮电生理信号。该电极由一种比光刻法更具时间和成本效益的“湿法转移, 干法图案化”的工艺方法制备(图2a), 即先使用湿法刻蚀以保持大面积生长石墨烯的高连续性, 随后转移至纹身纸上, 通过可编程机械切割绘图仪雕刻出细丝蛇形形状并剥离多余部分, 将其进行转移使石墨烯侧与皮肤接触, 最后通过湿润纹身纸背面使GET与其分离, 从而得到最终检测表皮电生理的石墨烯电极。这在最大程度上减少了GET的化学污染。该工作所制备的用聚甲基丙烯酸甲酯(PMMA)支撑的GET 具有超薄($463 \pm 30 \text{ nm}$), 高透明度(~85%)的特点(图2b)。GET可

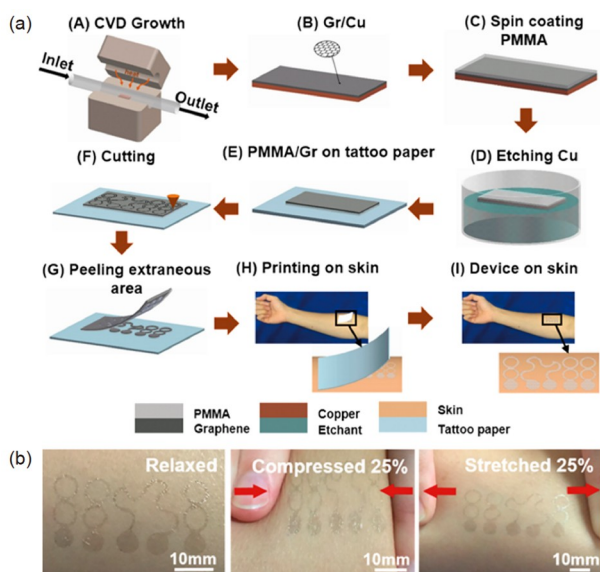


图2 石墨烯电子纹身. (a) GET制备流程; (b) GET的机械性能和光学性能^[45] (网络版彩图)

Figure 2 Graphene-based electronic tattoo. (a) Fabrication process of a GET; (b) mechanical and optical characterizations of the GET ^[45] (color online).

以像一次性纹身一样直接层压在人类皮肤上, 并且完全符合皮肤表面的微观形态. GET采用开放式网格结构, 透气性好, 且刚度可忽略不计. 裸露的GET能够附着在皮肤上数小时而不会断裂或分层. 使用液体绷带覆盖, GET可以在皮肤上保持长达数天的有效监测. 并且其皮肤界面阻抗与医学上通用的Ag/AgCl凝胶电极一致, 同时具备优越的舒适性、移动性和可靠性. GET的优异性还能促使该电极成功应用于皮肤温度、皮肤水合作用等相关方面的检测. 另外, Lu等^[46]相继报道了一个基于超薄、超软、透明且透气的GET的EOG传感器系统, 并将其应用于人机界面, 使眼球运动能够实时无线控制四旋翼直升机.

Kim等^[13]通过刷涂法将单壁碳纳米管(CNT)墨水均匀地分散在蚕丝蛋白纤维(SNF)上, 并将其从基板上剥离, 制备了CNT/ SNF电子纹身. CNT/SNF电子纹身将SNF的生物相容性和多孔性与CNT的高导电性相结合, 使SNF膜上均匀包覆CNT的材料具备单面导电的特性, 能够避免CNT与皮肤直接接触而引起的损伤. 此外, 一定尺寸条件下的该电极重量(0.4 mg)远小于所报道的表皮电子产品质量(90 mg), 同时具有较小的厚度尺寸($\sim 2 \mu\text{m}$), 在拉伸、压缩和扭曲机械变形条件下

表现出高度稳定的电学性能以及优异的机械耐久性(1000次循环). 优异的性能为材料的实际应用提供了丰富的发展空间. 该工作将CNT/ SNF电子纹身贴附在前臂分别测试在运动前后的ECG和EMG, 信号清晰没有明显的噪声, 同时肌肉多次弯曲所记录的EMG与商用的Ag/AgCl凝胶电极相当. 另外, 上述与皮肤共形接触的CNT/SNF电子纹身具有多功能性, 还能应用于热疗、温度传感器以及协助药物递送.

除了和上述SNF复合外, 能够和CNT复合的材料还包括石墨烯^[47]、聚二甲基硅氧烷(PDMS)^[48]、MXene^[49]等, 但是CNT存在损害皮肤的潜在风险.

3.3 导电聚合物

导电聚合物材料在生物电子领域具有良好的发展前景. 其中, PEDOT:PSS具有良好的生物相容性、可调的电性能等优点, 是一种常用的导电聚合物复合材料.

Mattoli和Greco等^[50]提出了一种基于导电聚合物PEDOT:PSS的一次性纹身干电极(图3a). 为了能够进一步满足实际应用的需求, Mattoli和Greco等^[51]在此基础上进行优化, 制备了一种直接在纹身纸上喷墨打印PEDOT:PSS的图案化电极. 该电极具有可拉伸性(10%)、厚度极薄($<1 \mu\text{m}$)、长期使用稳定性(48 h)等优点. 在四肢和面部不同部位记录的EMG和ECG信号证实了其电生理检测的可行性. 因此, 在诊断和治疗、脑机接口和监测运动中的身体健康等方面具有广阔的应用前景.

另外, 我们课题组^[52]通过PEDOT:PSS薄膜转移CVD生长石墨烯的方法, 利用石墨烯和PEDOT:PSS之间的协同效应, 制备了超薄(100 nm)的透明表皮干电极(图3b). 该PEDOT:PSS转移CVD石墨烯 (PTG)电极通过强 π - π 相互作用诱导石墨烯电荷转移并使PEDOT分子高度有序化, 从而获得高导电性(4142 S cm^{-1})和低薄层电阻($\sim 24 \Omega \text{ sq}^{-1}$). 另外, PTG电极能够与皮肤超共形接触精确测量电生理信号, 具有长时间、低运动伪影电生理信号记录的优异性能. 可穿戴的PTG电极除了可以实现ECG信号的检测, 对于微弱的EEG信号, 在人体正常活动时, 也可以达到连续12 h检测的效果. 这样一种超薄、透明、高导电的电极为未来表皮电子学的发展开辟了一条新的道路.

但是本征导电聚合物还存在一些缺点需要改进,

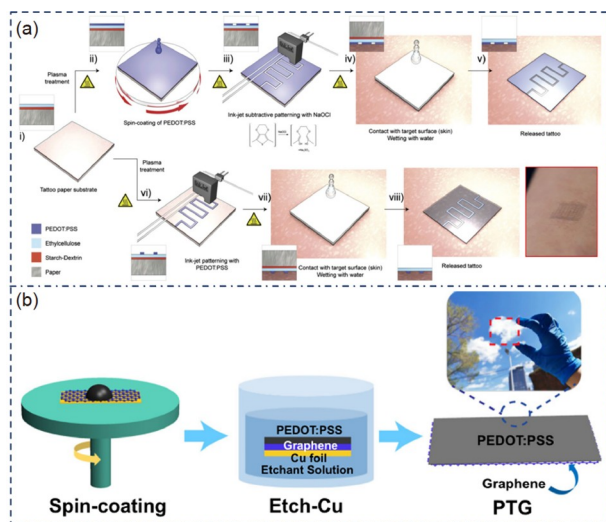


图3 (a) PEDOT:PSS纹身电极的制备、图案化和释放/转移皮肤上的示意图^[50]; (b) 制备PEDOT:PSS/石墨烯双层堆叠结构的示意图^[52] (网络版彩图)

Figure 3 (a) A schematic diagram of fabrication, patterning and release/transfer on the skin of PEDOT:PSS-based tattoo electrodes [50]; (b) Schematic illustration of the fabrication process of the double-layer-stacked structure of PEDOT:PSS/graphene [52] (color online)

例如: PEDOT:PSS拉伸性较小($\sim 5\%$)、导电性较低($< 1 \text{ S cm}^{-1}$)、杨氏模量较大($> 500 \text{ MPa}$)等, 通常需要掺杂或复合其他材料以满足在生物电子方面的应用。因此, 提升本征导电聚合物的柔软度、导电性以及界面粘附程度在未来的发展中具有重要意义。

3.4 其他材料

除了金属、碳基材料和导电聚合物材料外, 无机化合物、水凝胶、离子凝胶材料也可以作为表皮电极用于电生理信号的采集。

Akiwande等人^[53]报道了一种基于铂的二维二硫化物化合物(Pt-TMDs)的电子纹身, 该类电子纹身可以作为未来可穿戴生物电子集成系统的一个模块。上述工作主要是通过热辅助转换的化学气相沉积(CVD)的方法在聚合物基底上(如: 聚酰亚胺、PMMA)制备了大规模二硒化铂(PtSe_2)和二碲化铂(PtTe_2)层状材料的电子纹身(图4a)。该类电子纹身可以用于监测心脏和大脑的电活动、肌肉收缩、眼球运动等人体生命体征的生理信号。其中, 基于 PtTe_2 的电子纹身所获得的ECG信号信噪比(84 ± 5)远高于商用 Ag/AgCl 凝胶电极的信噪比(61 ± 5), 但是上述电子纹身获得的EMG信号质量远低于商用凝胶电极。在薄层电阻、皮肤接触和

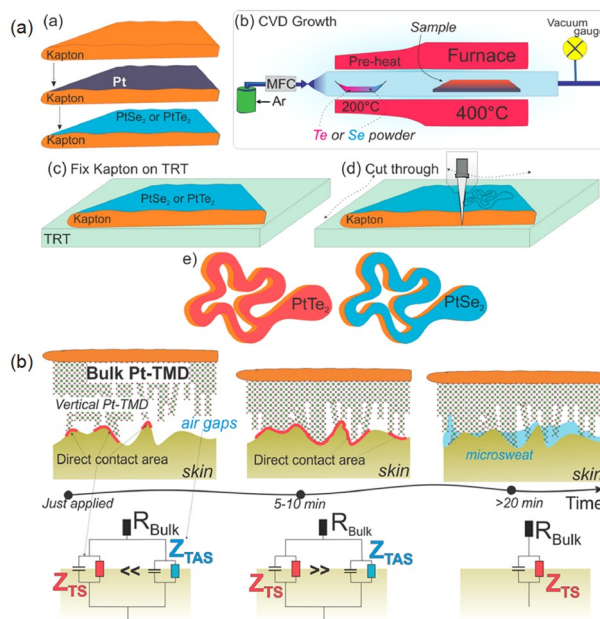


图4 (a) 基于Kapton的Pt-TMD纹身设计和制备流程的示意图概述; (b) Pt-TMD与皮肤界面随时间动态变化的示意图以及等效电路^[53] (网络版彩图)

Figure 4 (a) Schematic overview of Kapton-based Pt-TMD tattoo's design and fabrication process; (b) equivalent circuit and schematic illustration of the dynamic change of the interface between the Pt-TMD and skin over time [53] (color online).

电化学阻抗方面, PtTe_2 可与商用 Ag/AgCl 凝胶电极相媲美。 PtTe_2 电子纹身的薄层电阻比单层石墨烯纹身低100倍。当放置在皮肤上时, Pt-TMD 粗糙表面与皮肤的褶皱结构相接触, 由于界面间存在空气而具有较高的界面阻抗, 减小了纹身电极与表皮直接接触的面积。但是随着时间的推移, 由于界面间空气的减少, 纹身与皮肤可以形成更亲密的接触(图4b)。此外, 当使用透明敷料修复聚酰亚胺胶带(Kapton)电子纹身时, 汗水以及空气中的水分也会进入皮肤和 Pt-TMD 界面, 从而能够进一步减小皮肤与电极界面间的接触阻抗。

目前, 使用无机化合物材料制备的柔性可穿戴表皮电生理电极的报道较少。虽然上述 PtTe_2 电子纹身能够获得高质量的表皮电生理信号, 但是它存在许多不容忽视的问题, 主要包括金属Pt价格昂贵、CVD制备过程复杂以及生长的 PtTe_2 厚度难以控制等, 这些问题严格限制了Pt-TMDs电子纹身在表皮电子系统中的应用。

通过物理或化学作用结合起来的水凝胶具有良好的柔性、可拉伸性和生物相容性, 在生物电子学中备受关注^[54]。然而, 同时实现柔性、粘附性和高导电性

一直是一项重大挑战. Chen等人^[55]报道的机械互锁的水凝胶-弹性体杂化体是解决上述问题的可行方案. 采用低模量和高粘附性的聚丙烯酰胺/海藻酸钙水凝胶(PAM/Ca-Alg)作为基材, 多孔热塑性聚氨酯弹性体(TPU)用作承载导电膜的基质, 并通过机械互锁结构锁定水凝胶, 该杂化体可以作为表皮电极记录EMG、ECG, 这为柔性、可拉伸的生物电子提供了新的视角. 另外, 水下监测心脏状态对于医疗保健和运动管理领域至关重要. 具有水溶性特点的丝素蛋白不适合作为可拉伸电极基底在水下使用^[56,57]. Chen等人^[58]报道了用可拉伸的金属-聚合物复合膜(Au-PDMS)为基底, 以含多巴胺的无规共聚物(pDAM)作为涂层的防水电极. 稳定的水下电导率和对皮肤的紧密粘附使电极能够在水中收集可靠的ECG信号.

但是, 水凝胶存在着水分蒸发、电导率较差($0.01\sim 23\text{ S cm}^{-1}$)等问题^[59], 这限制了其在长时间表皮穿戴电生理电极中的应用. Zhou等人^[59]通过低共熔溶剂的方法将PEDOT:PSS复合材料与生物相容性的超分子溶剂(β -环糊精和柠檬酸, SMS)掺杂, 制备了一种具有优异的导电性($1\sim 37\text{ S cm}^{-1}$)、可拉伸(高达700%)的自粘附导电聚合物(SACP)复合材料. SACP薄膜电极可以检测肌电信号, 该电极所测得的信号质量可与商用的Ag/AgCl电极相媲美. 另外, 为实现水下传感, Wu^[60]等人通过利用离子-偶极相互作用和离子-离子相互作用设计了一种透明、水下自愈合、可拉伸、导电性稳定的离子凝胶. 该离子凝胶传感器能够实现在水环境中人体运动的检测. 离子液体和聚合物网络结合的离子凝胶具有不易挥发、良好的离子导电性以及电化学稳定的特性, 这些特性使离子凝胶在柔性电子领域具有替代水凝胶的潜力^[61].

离子凝胶材料在电子皮肤、柔性可穿戴设备中获得了广泛关注, 但是把具有多种特性的凝胶运用在不同复杂场景中仍面临着一定的挑战. 此外, 凝胶材料表皮电极的厚度一般在微米级别, 通常是调节凝胶材料的粘性等因素使电极-皮肤界面形成良好的共形接触, 进而提高信号检测质量.

4 电生理信号的应用

电生理信号在医疗诊断和分析、人机交互领域具有重要的实用价值和发展前景. 首先, 通过表皮电生理

电极获得的电生理信号包含了各种与人体生理和疾病相关的信息, 主要应用于医学临床诊断和分析. 其次, 另一类应用与人机交互(HMI)紧密相连. HMI技术对增强人体功能尤为重要. 近些年, 柔性可穿戴电极的发展和优化为采集高质量、高信噪比的电生理信号提供了卓越的便利性. 这为向家庭医疗的转变提供了一定的可能性, 同时, 它也展现出在人机交互应用领域新的机遇与挑战, 预示着未来将是人机互联的新时代.

4.1 医疗诊断和分析

电生理信号是反映人体器官和组织的生理状态的重要信号. 该信号可以提供与健康状况和临床治疗效果相关的重要信息. 目前, 电生理信号的监测已被广泛用于各种疾病的临床诊断, 如心血管疾病、脑部疾病和肌肉功能障碍^[3,62]. 柔性可穿戴表皮电生理电极的应用不仅能降低信号采集的潜在风险, 也能提高信号采集的质量.

ECG信号的监测可以发现并预警早期潜在的心脏异常问题(图5a)^[63,64]. 这在一定程度上能够提高此类疾病的治愈率, 减小心血管疾病对人类健康的威胁. 例如, 心电图具有的基本波形区域(P、Q、R、S、T)可以反映不同运动状态下人体正常心律、窦性心律不齐以及心房颤动、心室颤动和心室早搏的状态^[53,65]. 此外, ECG在指导相关疾病的治疗方面也具有实用价值. 心律不齐的原因主要与右心室流出到心外膜前部异常延迟的去极化有关, 这一变化可在心电图获得, 因此, 医生可以根据ECG准确定位异常区域, 从而治疗此类心脏病^[66]. 此外, 电生理信号还可以为其他疾病提供有效信息. 例如, EMG可用于评估肌肉疲劳^[7]、研究肌肉疼痛^[67]、吞咽治疗^[68](图5b)等等. 监测大脑中存在的电活动也可以帮助研究人员了解大脑功能. 但是EEG信号较弱且复杂, 传统的视觉评估方法不能满足此类诊断分析. 因此开发用于检测大脑异常电活动的计算机算法分析诊断系统十分必要^[69].

随着电极的逐渐优化发展, 柔性可穿戴的超薄电极能够更好的匹配表皮的复杂三维结构. 因此, 使用超薄电极能够以更高的质量记录电生理信号, 为精确诊断提供可行方案.

4.2 人机交互

随着科学的不断发展, 用于连接生物系统和外部



图5 (a, b) 医疗诊断和分析的应用。(a) 心脏异常问题预警^[64], (b) 吞咽治疗^[68]; (c~e) 人机交互的应用。(c) 控制假肢^[70]; (d) 文本拼写^[71]; (e) 控制轮椅^[72] (网络版彩图)

Figure 5 (a, b) Applications of medical diagnosis and analysis. (a) Early warning of abnormal heart problems ^[64]; (b) swallowing treatment ^[68]; (c~e) applications of human-machine interface. (c) controlling prosthetics ^[70]; (d) text-spelling ^[71]; (e) controlling wheelchair ^[72] (color online).

设备的人机交互(HMI)技术也随之深入发展。例如, ECG信号与心理状态和外部刺激相联系; 从手臂处获得的EMG信号与手势变化密不可分; EOG信号能够反映眼球运动。因此, 通过分析处理表皮电生理信号的手段可以定性、定量的反映人体意图, 从而用于控制外部设备。在未来, HMI技术存在辅助提高人类能力的潜能。

为精确控制外部设备, HMI控制假肢需要收集丰富的电生理信号。因此, 长期稳定地记录信号至关重要, 如果不能持续采集电生理信号, 计算机无法获得有效的特征信号, 将会严重影响控制效果。目前, 表皮电极是为HMI技术传递电生理信号的理想平台。其中,

柔性超薄电极的出现避免了传统刚性电极对人体的刺激, 有效提高了界面的稳定性。在电生理信号记录的基础上, 将信号进行解码转换为可理解的控制命令, 使截肢者和四肢瘫痪者能够控制假肢, 从而辅助运动功能的重建。Rogers等人^[70]开发了一种假肢控制的EMG系统。他们使用大面积多通道的表皮电极记录截肢者残肢表面的表面肌电信号。随后, 他们使用模式识别算法对残肢肌肉激活产生的不同肌电信号进行分类、解码, 以便使截肢者能够控制假肢肘部、手腕和手的运动(图5c)。传统EEG信号的采集需要依靠一个笨重的脑电帽来提高信号质量, 这无疑会给用户带来不舒适的体验。随着电极设计和材料的迭代更新, 最近的研究已经使用柔性可穿戴表皮电生理电极作为外部机械设备控制信号来源的平台。Rogers等人^[71]通过安装在耳廓和乳突上的超薄柔性纹身电极收集EEG信号, 并将其与EEG分析系统连用, 实现文本拼写(图5d)。此外, Yeo等人^[72]还将采集的高保真EOG信号用于无线轮椅的控制(图5e)。在受试者眼角水平和垂直方向处佩戴两组电极, 采集的信号数据将实时无线传输至计算机。最终实现当眼睛分别向上、向下、向左和向右移动时, 通过分析算法能将相应的EOG信号转换为轮椅的运动指令, 包括向前、停止、逆时针转动和顺时针转动。

除上述应用外, 电生理信号还能用于计算机游戏控制器^[1]、四旋翼无人机^[38]及手势识别^[4,73]等方面。

5 总结与展望

在如今科技飞速发展的时代, 表皮电子学的深入研究为便携式可穿戴电子设备、电子皮肤等系统带来了新机遇。近些年, 可自贴肤的超薄表皮电生理电极得到了快速发展, 与传统凝胶电极相比, 该类电极在可长期表皮穿戴、低运动伪影等方面有了极大的提升。本文通过综述柔性可穿戴表皮电生理电极的研究进展, 深入介绍了满足上述需求的自贴肤超薄电极的设计思想、特征及优缺点, 同时阐述了长期稳定获得高质量的表皮电生理信号在医疗诊断和治疗、人机交互领域的实际应用价值。

然而, 尽管在该类表皮电生理电极领域已经取得了重大进展, 但在实际发展和应用中仍存在一些尚未解决的问题和挑战需要研究人员的关注。对于表皮电

极来说, 稳定且舒适的电极-皮肤界面在日常生活中长期采集电生理信号是十分重要的. 因此, 有必要开发高导电性电极材料用于柔性、可拉伸、厚度较薄的表皮电极. 其中, 以较低的成本制作厚度较薄的表皮电极在实际应用也不容忽视. 光刻图案化、电子束沉积等传统方法的成本较高, 并且与涉及柔软基底的制造不能直接兼容. 刷涂法、喷墨打印、静电纺丝、“剪切和粘

贴”^[74]等新兴的制造工艺具有能替代上述较高成本方法的潜力. 此外, 非侵入性的可穿戴表皮电生理电极安全性较高且适宜在家庭医疗环境中使用. 因此, 可穿戴式表皮电生理电极需要朝着小型化和便携性的方向发展. 与此同时, 开发电生理传感与其他类型传感器(例如: 温度传感器、应变传感器等)集成的多功能表皮电子系统也是未来发展的一种趋势.

参考文献

- Kim DH, Lu N, Ma R, Kim YS, Kim RH, Wang S, Wu J, Won SM, Tao H, Islam A, Yu KJ, Kim T, Chowdhury R, Ying M, Xu L, Li M, Chung HJ, Keum H, McCormick M, Liu P, Zhang YW, Omenetto FG, Huang Y, Coleman T, Rogers JA. *Science*, 2011, 333: 838–843
- Yu X, Xie Z, Yu Y, Lee J, Vazquez-Guardado A, Luan H, Ruban J, Ning X, Akhtar A, Li D, Ji B, Liu Y, Sun R, Cao J, Huo Q, Zhong Y, Lee CM, Kim SY, Gutruf P, Zhang C, Xue Y, Guo Q, Chempakasseril A, Tian P, Lu W, Jeong JY, Yu YJ, Cornman J, Tan CS, Kim BH, Lee KH, Feng X, Huang Y, Rogers JA. *Nature*, 2019, 575: 473–479
- Zhu M, Wang H, Li S, Liang X, Zhang M, Dai X, Zhang Y. *Adv Healthcare Mater*, 2021, 10: 2100646
- Wang Y, Yin L, Bai Y, Liu S, Wang L, Zhou Y, Hou C, Yang Z, Wu H, Ma J, Shen Y, Deng P, Zhang S, Duan T, Li Z, Ren J, Xiao L, Yin Z, Lu N, Huang YA. *Sci Adv*, 2020, 6: eabd0996
- Barone DG, Malliaras GG. *Nat Biomed Eng*, 2019, 3: 165–166
- Chung HU, Rwei AY, Hourlier-Fargette A, Xu S, Lee KH, Dunne EC, Xie Z, Liu C, Carlini A, Kim DH, Ryu D, Kulikova E, Cao J, Odland IC, Fields KB, Hopkins B, Banks A, Ogle C, Grande D, Park JB, Kim J, Irie M, Jang H, Lee JH, Park Y, Kim J, Jo HH, Hahm H, Avila R, Xu Y, Namkoong M, Kwak JW, Suen E, Paulus MA, Kim RJ, Parsons BV, Human KA, Kim SS, Patel M, Reuther W, Kim HS, Lee SH, Leedle JD, Yun Y, Rigali S, Son T, Jung I, Arafat H, Soundararajan VR, Ollech A, Shukla A, Bradley A, Schau M, Rand CM, Marsillio LE, Harris ZL, Huang Y, Hamvas A, Paller AS, Weese-Mayer DE, Lee JY, Rogers JA. *Nat Med*, 2020, 26: 418–429
- Song D, Shi X, Liu N. *J Funct Mater Dev*, 2021, 27: 383–395 (in Chinese) [宋德魁, 施潇虎, 刘楠. 功能材料与器件学报, 2021, 27: 383–395]
- Nawrocki RA, Jin H, Lee S, Yokota T, Sekino M, Someya T. *Adv Funct Mater*, 2018, 28: 1803279
- Pu X, Guo H, Chen J, Wang X, Xi Y, Hu C, Wang ZL. *Sci Adv*, 2017, 3: e1700694
- Wu H, Yang G, Zhu K, Liu S, Guo W, Jiang Z, Li Z. *Adv Sci*, 2021, 8: 2001938
- Zhang B, Lei J, Qi D, Liu Z, Wang Y, Xiao G, Wu J, Zhang W, Huo F, Chen X. *Adv Funct Mater*, 2018, 28: 1801683
- Luo H, Gao B. *Engineered Regeneration*, 2021, 2: 163–170
- Gogurla N, Kim Y, Cho S, Kim J, Kim S. *Adv Mater*, 2021, 33: 2008308
- Wang Y, Wang L, Yang T, Li X, Zang X, Zhu M, Wang K, Wu D, Zhu H. *Adv Funct Mater*, 2014, 24: 4666–4670
- Mehrali M, Bagherifard S, Akbari M, Thakur A, Mirani B, Mehrali M, Hasany M, Orive G, Das P, Emneus J, Andresen TL, Dolatshahi-Pirouz A. *Adv Sci*, 2018, 5: 1700931
- Yetisen AK, Martinez-Hurtado JL, Ünal B, Khademhosseini A, Butt H. *Adv Mater*, 2018, 30: 1706910
- Ershad F, Thukral A, Yue J, Comeaux P, Lu Y, Shim H, Sim K, Kim NI, Rao Z, Guevara R, Contreras L, Pan F, Zhang Y, Guan YS, Yang P, Wang X, Wang P, Wu X, Yu C. *Nat Commun*, 2020, 11: 3823
- Kim JH, Kim SR, Kil HJ, Kim YC, Park JW. *Nano Lett*, 2018, 18: 4531–4540
- Han WB, Ko GJ, Jang TM, Hwang SW. *ACS Appl Electron Mater*, 2021, 3: 485–503
- Guo J, Yu Y, Zhang D, Zhang H, Zhao Y. *Research*, 2021, 2021: 7065907
- Guimarães CF, Gasperini L, Marques AP, Reis RL. *Nat Rev Mater*, 2020, 5: 351–370
- Yu B, Kang SY, Akthakul A, Ramadurai N, Pilkenton M, Patel A, Nashat A, Anderson DG, Sakamoto FH, Gilchrest BA, Anderson RR, Langer R. *Nat Mater*, 2016, 15: 911–918
- Arumugam V, Naresh MD, Sanjeevi R. *J Biosci*, 1994, 19: 307–313
- Wang S, Li M, Wu J, Kim DH, Lu N, Su Y, Kang Z, Huang Y, Rogers JA. *J Appl Mech*, 2012, 79: 031022

- 25 Jeong JW, Yeo WH, Akhtar A, Norton JJS, Kwack YJ, Li S, Jung SY, Su Y, Lee W, Xia J, Cheng H, Huang Y, Choi WS, Bretl T, Rogers JA. *Adv Mater*, 2013, 25: 6839–6846
- 26 Baik S, Lee HJ, Kim DW, Kim JW, Lee Y, Pang C. *Adv Mater*, 2019, 31: 1803309
- 27 Wang Y, Shang L, Chen G, Sun L, Zhang X, Zhao Y. *Sci Adv*, 2020, 6: eaax8258
- 28 Wang Q, Ling S, Liang X, Wang H, Lu H, Zhang Y. *Adv Funct Mater*, 2019, 29: 1808695
- 29 Miyamoto A, Lee S, Cooray NF, Lee S, Mori M, Matsuhisa N, Jin H, Yoda L, Yokota T, Itoh A, Sekino M, Kawasaki H, Ebihara T, Amagai M, Someya T. *Nat Nanotech*, 2017, 12: 907–913
- 30 Yokus MA, Jur JS. *IEEE Trans Biomed Eng*, 2015, 63: 423–430
- 31 Xu B, Akhtar A, Liu Y, Chen H, Yeo WH, Park SI, Boyce B, Kim H, Yu J, Lai HY, Jung S, Zhou Y, Kim J, Cho S, Huang Y, Bretl T, Rogers JA. *Adv Mater*, 2016, 28: 4462–4471
- 32 Oh JY, Bao Z. *Adv Sci*, 2019, 6: 1900186
- 33 Han S, Hong S, Ham J, Yeo J, Lee J, Kang B, Lee P, Kwon J, Lee SS, Yang MY, Ko SH. *Adv Mater*, 2014, 26: 5808–5814
- 34 Lim S, Son D, Kim J, Lee YB, Song JK, Choi S, Lee DJ, Kim JH, Lee M, Hyeon T, Kim DH. *Adv Funct Mater*, 2015, 25: 375–383
- 35 Liu Z, Yu M, Lv J, Li Y, Yu Z. *ACS Appl Mater Interfaces*, 2014, 6: 13487–13495
- 36 Yeo WH, Kim YS, Lee J, Ameen A, Shi L, Li M, Wang S, Ma R, Jin SH, Kang Z, Huang Y, Rogers JA. *Adv Mater*, 2013, 25: 2773–2778
- 37 Jiang Z, Nayeem MOG, Fukuda K, Ding S, Jin H, Yokota T, Inoue D, Hashizume D, Someya T. *Adv Mater*, 2019, 31: 1903446
- 38 Yang X, Li L, Wang S, Lu Q, Bai Y, Sun F, Li T, Li Y, Wang Z, Zhao Y, Shi Y, Zhang T. *Adv Electron Mater*, 2020, 6: 2000306
- 39 Won P, Park JJ, Lee T, Ha I, Han S, Choi M, Lee J, Hong S, Cho KJ, Ko SH. *Nano Lett*, 2019, 19: 6087–6096
- 40 Lopes PA, Paisana H, De Almeida AT, Majidi C, Tavakoli M. *ACS Appl Mater Interfaces*, 2018, 10: 38760–38768
- 41 Alberto J, Leal C, Fernandes C, Lopes PA, Paisana H, de Almeida AT, Tavakoli M. *Sci Rep*, 2020, 10: 5539
- 42 Choi S, Han SI, Jung D, Hwang HJ, Lim C, Bae S, Park OK, Tschabrunn CM, Lee M, Bae SY, Yu JW, Ryu JH, Lee SW, Park K, Kang PM, Lee WB, Nezafat R, Hyeon T, Kim DH. *Nat Nanotech*, 2018, 13: 1048–1056
- 43 Fang Y, Li Y, Wang X, Zhou Z, Zhang K, Zhou J, Hu B. *Small*, 2020, 16: 2000450
- 44 Liu L, Li HY, Fan YJ, Chen YH, Kuang SY, Li ZB, Wang ZL, Zhu G. *Small*, 2019, 15: 1900755
- 45 Ameri SK, Ho R, Jang H, Tao L, Wang Y, Wang L, Schnyer DM, Akinwande D, Lu N. *ACS Nano*, 2017, 11: 7634–7641
- 46 Ameri SK, Kim M, Kuang IA, Perera WK, Alshiekh M, Jeong H, Topcu U, Akinwande D, Lu N. *npj 2D Mater Appl*, 2018, 2: 19
- 47 Kim T, Park J, Sohn J, Cho D, Jeon S. *ACS Nano*, 2016, 10: 4770–4778
- 48 Jung HC, Moon JH, Baek DH, Lee JH, Choi YY, Hong JS, Lee SH. *IEEE Trans Biomed Eng*, 2012, 59: 1472–1479
- 49 Sharifuzzaman M, Zahed MA, Sharma S, Rana SMS, Chhetry A, Shin YD, Asaduzzaman M, Zhang S, Yoon S, Hui X, Yoon H, Park JY. *Adv Funct Mater*, 2021, 32: 2107969
- 50 Zucca A, Cipriani C, Sudha C, Tarantino S, Ricci D, Mattoli V, Greco F. *Adv Healthcare Mater*, 2015, 4: 983–990
- 51 Ferrari LM, Sudha S, Tarantino S, Esposti R, Bolzoni F, Cavallari P, Cipriani C, Mattoli V, Greco F. *Adv Sci*, 2018, 5: 1700771
- 52 Zhao Y, Zhang S, Yu T, Zhang Y, Ye G, Cui H, He C, Jiang W, Zhai Y, Lu C, Gu X, Liu N. *Nat Commun*, 2021, 12: 4880
- 53 Kireev D, Okogbue E, Jayanth RT, Ko TJ, Jung Y, Akinwande D. *ACS Nano*, 2021, 15: 2800–2811
- 54 Nagamine K, Chihara S, Kai H, Kaji H, Nishizawa M. *Sens Actuat B-Chem*, 2016, 237: 49–53
- 55 Pan S, Zhang F, Cai P, Wang M, He K, Luo Y, Li Z, Chen G, Ji S, Liu Z, Loh XJ, Chen X. *Adv Funct Mater*, 2020, 30: 1909540
- 56 Huang J, Wang L, Jin Y, Lu P, Wang LL, Bai N, Li G, Zhu P, Wang Y, Zhang J, Wu Z, Guo CF. *Adv Funct Mater*, 2020, 30: 2001518
- 57 Chen G, Matsuhisa N, Liu Z, Qi D, Cai P, Jiang Y, Wan C, Cui Y, Leow WR, Liu Z, Gong S, Zhang KQ, Cheng Y, Chen X. *Adv Mater*, 2018, 30: 1800129
- 58 Ji S, Wan C, Wang T, Li Q, Chen G, Wang J, Liu Z, Yang H, Liu X, Chen X. *Adv Mater*, 2020, 32: 2001496
- 59 Tan P, Wang H, Xiao F, Lu X, Shang W, Deng X, Song H, Xu Z, Cao J, Gan T, Wang B, Zhou X. *Nat Commun*, 2022, 13: 358
- 60 Yu Z, Wu P. *Adv Mater*, 2021, 33: 2008479
- 61 Wang M, Zhang P, Shamsi M, Thelen JL, Qian W, Truong Khanh V, Ma J, Hu J, Dickey MD. *Nat Mater*, 2022, 21: 359–365
- 62 Song D, Li X, Li XP, Jia X, Min P, Yu ZZ. *J Colloid Interface Sci*, 2019, 555: 751–758
- 63 Hannun AY, Rajpurkar P, Haghighpanahi M, Tison GH, Bourn C, Turakhia MP, Ng AY. *Nat Med*, 2019, 25: 65–69
- 64 Choi MK, Park OK, Choi C, Qiao S, Ghaffari R, Kim J, Lee DJ, Kim M, Hyun W, Kim SJ, Hwang HJ, Kwon SH, Hyeon T, Lu N, Kim DH. *Adv*

- Healthcare Mater*, 2016, 5: 80–87
- 65 Xu L, Gutbrod SR, Bonifas AP, Su Y, Sulkin MS, Lu N, Chung HJ, Jang KI, Liu Z, Ying M, Lu C, Webb RC, Kim JS, Laughner JI, Cheng H, Liu Y, Ameen A, Jeong JW, Kim GT, Huang Y, Efimov IR, Rogers JA. *Nat Commun*, 2014, 5: 3329
 - 66 Nademanee K, Veerakul G, Chandanamatha P, Chaothawee L, Ariyachaipanich A, Jirasirojanakorn K, Likittanasombat K, Bhuripanyo K, Ngarmukos T. *Circulation*, 2011, 123: 1270–1279
 - 67 Arendt-Nielsen L, Graven-Nielsen T, Sværre H, Svensson P. *Pain*, 1996, 64: 231–240
 - 68 Kim MK, Kantarcigil C, Kim B, Baruah RK, Maity S, Park Y, Kim K, Lee S, Malandraki JB, Avlani S, Smith A, Sen S, Alam MA, Malandraki G, Lee CH. *Sci Adv*, 2019, 5: eaay3210
 - 69 Acharya UR, Oh SL, Hagiwara Y, Tan JH, Adeli H. *Comput Biol Med*, 2018, 100: 270–278
 - 70 Tian L, Zimmerman B, Akhtar A, Yu KJ, Moore M, Wu J, Larsen RJ, Lee JW, Li J, Liu Y, Metzger B, Qu S, Guo X, Mathewson KE, Fan JA, Cornman J, Fatina M, Xie Z, Ma Y, Zhang J, Zhang Y, Dolcos F, Fabiani M, Gratton G, Bretl T, Hargrove LJ, Braun PV, Huang Y, Rogers JA. *Nat Biomed Eng*, 2019, 3: 194–205
 - 71 Norton JJS, Lee DS, Lee JW, Lee W, Kwon O, Won P, Jung SY, Cheng H, Jeong JW, Akce A, Umunna S, Na I, Kwon YH, Wang XQ, Liu ZJ, Paik U, Huang Y, Bretl T, Yeo WH, Rogers JA. *Proc Natl Acad Sci USA*, 2015, 112: 3920–3925
 - 72 Mishra S, Norton JJS, Lee Y, Lee DS, Agee N, Chen Y, Chun Y, Yeo WH. *Biosens Bioelectron*, 2017, 91: 796–803
 - 73 Zhang L, Kumar KS, He H, Cai CJ, He X, Gao H, Yue S, Li C, Seet RCS, Ren H, Ouyang J. *Nat Commun*, 2020, 11: 4683
 - 74 Wang Y, Qiu Y, Ameri SK, Jang H, Dai Z, Huang YA, Lu N. *npj Flex Electron*, 2018, 2: 6

Preparation and application of self-adhesive ultra-thin epidermal electrophysiological electrodes

Wenya Hu, Dekui Song, Xiaohu Shi, Nan Liu^{*}

College of Chemistry, Beijing Normal University, Beijing 100875, China

^{*}Corresponding author (email: nanliu@bnu.edu.cn)

Abstract: Flexible and wearable epidermal electrophysiological electrodes are of great significance in the field of artificial intelligence and life health. The acquisition of stable epidermal electrophysiological signals with high-quality is the key to wearable monitoring of electrophysiological signals of human bodies. Ag/AgCl gel-electrodes commonly used in clinical diagnosis still have a large number of shortcomings, including serious discomfort and inevitable motion artifacts during long-term use. Therefore, it is urgent to develop electrophysiological electrodes that can be worn on the epidermis for a long time and can effectively avoid motion artifacts. The self-adhesive electrode with a Young's modulus similar to that of the skin and an extremely thin thickness ($<1\ \mu\text{m}$) is a typical electrode that meets the above requirements. This paper introduces the research progress of this type of epidermal electrophysiological electrodes in detail. According to the different types of materials, the design idea, basic characteristics, advantages and disadvantages of wearing are summarized. Meanwhile, the applications of self-adhesive ultra-thin electrodes in medical diagnosis and analysis and human-machine interface are discussed, and we are looking forward to the opportunities and challenges of the electrode in collecting electrophysiological signals.

Keywords: wearable electronics, ultra-thin electrodes, electronic tattoo, epidermal electrophysiological signals

doi: [10.1360/SSC-2022-0019](https://doi.org/10.1360/SSC-2022-0019)