



用于触觉感知的自供能可拉伸压电橡胶皮肤电子器件

姚宽明 姚靖仪 海照 李登峰 解兆谦 于欣格

Stretchable self-powered epidermal electronics from piezoelectric rubber for tactile sensing

Yao Kuan-Ming Yao Jing-Yi Hai Zhao Li Deng-Feng Xie Zhao-Qian Yu Xin-Ge

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 69, 178701 (2020) DOI: 10.7498/aps.69.20200664

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200664>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

压电材料全矩阵材料常数超声谐振谱反演技术中的变温模式识别

Mode identification via temperature variation in resonant ultrasonic spectroscopy technique for piezoelectric material

物理学报. 2017, 66(2): 027703 <https://doi.org/10.7498/aps.66.027703>

分子包埋纳米粒子薄膜阻变特性研究进展

Latest studies on resistance switching of molecular thin films embedded with nanoparticles

物理学报. 2017, 66(1): 017101 <https://doi.org/10.7498/aps.66.017101>

石墨烯射频器件研究进展

Research progress of graphene radio frequency devices

物理学报. 2017, 66(21): 218502 <https://doi.org/10.7498/aps.66.218502>

石墨烯沟道全自旋逻辑器件开关特性

Switching characteristics of all-spin logic devices based on graphene interconnects

物理学报. 2017, 66(20): 208501 <https://doi.org/10.7498/aps.66.208501>

六方氮化硼表面石墨烯纳米带生长与物性研究

Synthesis and characterization of graphene nanoribbons on hexagonal boron nitride

物理学报. 2019, 68(16): 168102 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20191036>

石墨烯剪纸的大变形拉伸力学行为研究

Investigation on the large tensile deformation and mechanical behaviors of graphene kirigami

物理学报. 2017, 66(6): 066201 <https://doi.org/10.7498/aps.66.066201>

专题: 柔性电子

用于触觉感知的自供能可拉伸
压电橡胶皮肤电子器件*姚宽明¹⁾ 姚靖仪¹⁾ 海照¹⁾ 李登峰¹⁾ 解兆谦^{2)†} 于欣格^{1)‡}

1) (香港城市大学生物医学工程系, 香港)

2) (大连理工大学工程力学系, 工业装备结构分析国家重点实验室, 大连 116023)

(2020年5月4日收到; 2020年6月12日收到修改稿)

柔软、轻薄的皮肤电子器件是当今的研究热点之一, 在健康监测、疾病预防及治疗方面有诸多应用. 但是目前柔性能量供给器件从厚度和尺寸上仍然无法满足皮肤电子的集成要求. 本文主要阐述一种应用压电橡胶复合材料的柔性皮肤电子器件, 采用压电陶瓷材料锆钛酸铅 (PZT)、聚二甲基硅氧烷 (PDMS) 和石墨烯的混合体系组成柔性传感器. 混合后的压电橡胶材料柔软, 轻薄, 延展性良好, 结合优化力学性能的蛇形结构叉指电极以及 PDMS 柔性基底, 使该器件柔软、可拉伸, 能与皮肤无缝紧密贴合. 该触觉感知柔性皮肤电子器件不仅可以准确测量 2.84—11.72 kPa 范围的压力, 且能够适应弯曲、拉伸等机械变化, 并且在不同方向上的拉伸应变达到 20% 时都仍然能保持良好的压电性能, 证明该器件可以在人体日常动作造成的皮肤应变下保持良好的稳定性能. 该器件可以贴于体表以监测并区分触摸、点按、轻拍、敲击等动作, 输出的电能量足够点亮 15 个 LED 灯泡, 在自供能皮肤电子领域有巨大发展和应用潜力.

关键词: 压电材料, 石墨烯, 柔性电子, 可穿戴设备**PACS:** 87.85.-d, 84.60.-h, 85.50.-n, 81.05.ue**DOI:** 10.7498/aps.69.20200664

1 引言

近年来, 柔性电子器件和设备由于其具有轻薄, 柔软, 可拉伸, 可无缝贴合人体皮肤或组织、器官的特点正受到越来越多的关注, 成为研究热点之一. 柔性电子器件可穿戴、可贴于皮肤, 被称为皮肤电子 (epidermal electronics), 在生物医学工程等领域已有许多应用, 为新一代的健康监测、疾病诊断^[1] 和治疗方法^[2] 提供了可能性和硬件平台. 得益于在材料^[3,4]、制备工艺^[5-8]、先进力学结构设计^[9-12] 和无线通讯技术^[13,14] 等方面的进步和有机结合, 在近年来的研究中, 柔性电子器件在体温^[15]、

湿度^[16]、血压^[17-19]、呼吸^[20]、心电图^[21]、体液成分^[22-24]、机械声^[25-27] 信号等健康数据的传感与监测, 以及光遗传学^[28-30]、神经再生治疗^[2]、活检诊断^[1]、新生儿重症监护^[31]、心血管健康监测^[32]、人机交互界面^[33,34]等方面都得到了大量应用与快速发展.

大多数柔性电子传感器设备都依赖于外部供能, 例如通过导线连接到外部电源, 或者通过射频天线进行无线供能^[34], 但或多或少都受到外部供能设备的限制, 难以独立、稳定、无物理束缚地进行工作. 在部分研究中集成于器件中的微型锂电池^[26]等储能设备也被用于为器件供电, 但需要以牺牲其体积和部分轻便性为代价. 为解决柔性电子

* 香港城市大学研究基金 (批准号: 9610423, 9667199) 和中央高校基本科研业务费 (批准号: DUT20RC(3)032) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: zxie@dlut.edu.cn‡ 通信作者. E-mail: xingeyu@cityu.edu.hk

器件自供能的问题, 热电 (pyroelectric)、摩擦电 (triboelectric) 与压电 (piezoelectric) 纳米发电等微观能量收集机理成为可为柔性电子设备内部供能的最具发展潜力的选项. 其中, 压电纳米发电机 (piezoelectric nanogenerator, PENG) 与摩擦电纳米发电机 (triboelectric nanogenerator, TENG) 能够将日常生活中随处可见但又大量浪费的机械能转化为电能输出, 因此将 PENG, TENG 与皮肤电子结合 [35,36], 使可穿戴、无需外部供电的自供能柔性皮肤电子器件成为可能.

压电材料将压力传化为电能的原理是正压电效应, 可由压电本构方程 [37] 描述:

$$\begin{bmatrix} \delta \\ D \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} s^E & d^t \\ d & \varepsilon^T \end{bmatrix} \begin{bmatrix} T \\ E \end{bmatrix}, \quad (1)$$

其中, δ 为应变, T 为应力, D 为电位移, E 为电场强度, s 为弹性柔量, ε 为介电常数, d 为压电系数. 根据逆压电效应, 压电材料也可由输入电能产生压力和形变, 因此压电材料也被广泛应用于致动器、超声换能器、微机器人等领域. 压电材料种类繁多, 而本文研究中主要应用的是使用最为广泛的一种无机压电陶瓷锆钛酸铅 (PZT). 与本质柔软的有机

压电材料如聚偏二氟乙烯 (polyvinylidene fluoride, PVDF) 不同, 无机压电材料机械刚度较大, 不易任意变形, 但较为敏感, 压电应变常数高; 与无机压电晶体不同, 无机压电陶瓷材料需要经过电场极化才能产生压电性质. PENG 器件通常采用“三明治”结构, 即在压电材料上下分别连接双层电极 [38,39], 但由于大面积的电极会减弱柔性器件的机械变形能力尤其是其可拉伸性, 因此平面内的电极结构成为了增强 PENG 可拉伸性有力的替代选项 [40]. Liu 等 [36] 报道了一种基于平面内的叉指电极结构的可贴于皮肤的柔性、可拉伸 PENG 器件, 应用石墨烯、PZT 粉末与硅胶材料混合的三元橡胶实现了压电功能层的柔性化, 并系统探讨了掺杂石墨烯的比例对于阻抗减小、电能输出的影响. 但由于其电极设计缺陷, 仅在一个方向上具有较好可拉伸性, 且由于压电材料层较厚, 其输出电压及电流较低. 本研究将在此基础上进一步优化其平面内电极的力学性能, 应用蛇纹线图案设计 (图 1(b)) 使金属电极在平面内两个正交方向上均具有可拉伸性 (图 1(d)); 简化器件结构的同时减小压电材料层的厚度 (图 1(a)), 使柔性压电皮肤电子器件总

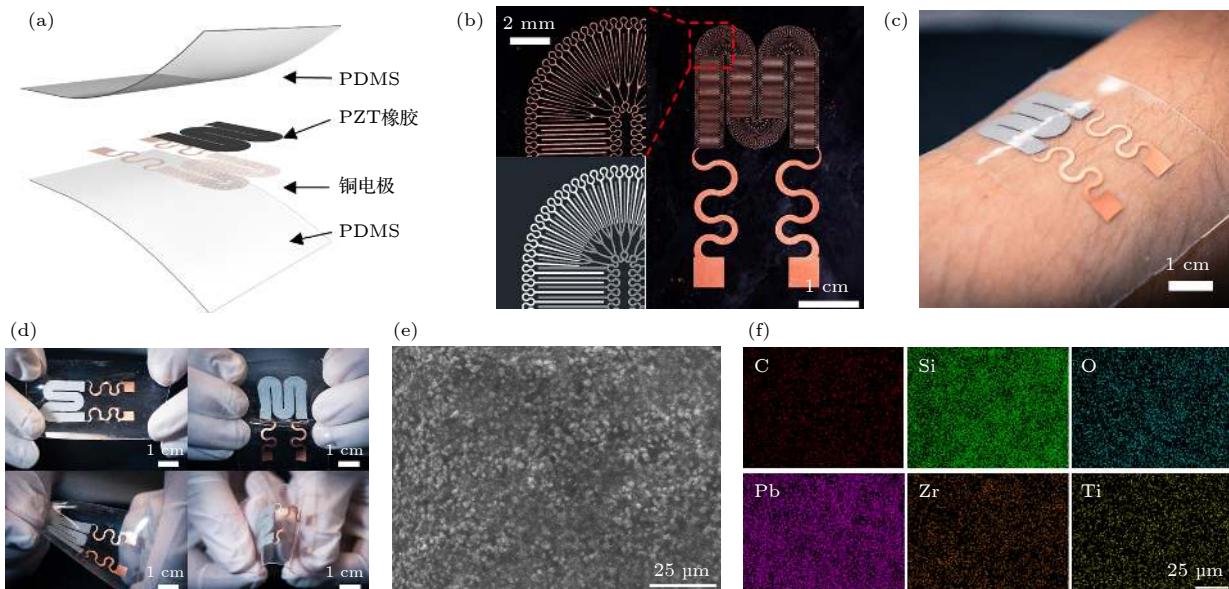


图 1 柔性压电皮肤电子器件 (a) 器件结构图; (b) 蛇纹线结构叉指电极整体、细节及其设计图; (c) 器件贴于皮肤表面的照片; (d) 对器件分别进行纵向、横向拉伸及扭转、弯曲变形的照片; (e) 三元压电橡胶表面形貌的 SEM 图像; (f) SEM 图像范围内 C, Si, O, Pb, Zr, Ti 元素的能量色散 X 射线 EDX 分布图

Fig. 1. The flexible piezoelectric epidermal electronic device: (a) Explosive view of the structure of the device; (b) overall and detailed photos of the serpentine structured interdigital electrodes and the design; (c) photograph showing the device attached to the skin; (d) photographs showing the device under longitudinal and latitudinal stretching, twisting and bending, respectively; (e) the SEM image of the surface morphology of the graphene/PZT/PDMS ternary piezoelectric rubber; (f) energy dispersive X-ray spectroscopy (EDX) images illustrating the distribution of C, Si, O, Pb, Zr and Ti.

厚度由 1.2 mm 降低到 0.4 mm, 更适于无感穿戴 (图 1(c)) 的同时显著提高其在不同压力下的电压及电流输出峰值.

2 柔性压电皮肤电子器件的制备

石墨烯压电橡胶皮肤电子器件的制作过程主要分为两大步骤, 第一步是三元压电橡胶材料的制备. 图 1(a) 展示了由上下两层聚二甲基硅氧烷 (PDMS) 薄膜 (各约 170 μm), PZT 橡胶 (厚度约 55 μm), 蛇纹线叉指铜电极 (厚度约 5 μm) 组成的多层薄膜皮肤电子器件结构. PZT 橡胶主要成分为 PZT 粉末 (平均直径 0.9 μm , 西安益生电子有限公司), PDMS (Sylgard 184, Dow Corning Corporation), 以及石墨烯 (平均厚度 1.75 nm, 纯度 > 99%, 苏州恒珠石墨科技有限公司). 首先将 30 mg 石墨烯粉末, 10 g PZT 粉末及 2.2 g PDMS (交联剂质量比为 11:1) 形成混合物于玛瑙研钵中并在室温下充分研磨 1 h, 使各成分之间充分混合均匀形成三元压电橡胶前体. 研磨完成后的三元压电橡胶表面形貌及组分由扫描电子显微镜 (SEM) 图像 (图 1(e)) 及其图像范围内各元素 (C, Si, O, Pb, Zr, Ti) 的能量色散 X 射线光谱学 (EDX) 分布图 (图 1(f)) 进行表征, 以说明其混合体系组分分布的均匀性. 将制备完成的石墨烯含量约 0.25 wt.% 的 PZT/PDMS 复合材料倒入烧杯中, 静置于用于制备压电薄膜.

第二步是器件的组装过程. 首先将作为硬基底的石英玻璃片分别用丙酮、乙醇和去离子水清洗表面. 烘干之后将按 $\omega(\text{PDMS 硅油}) : \omega(\text{交联剂}) = 30:1$ 配好的 PDMS 前体旋涂于玻璃片表面 (600 r/min, 30 s) 使其形成 PDMS 薄膜, 并将其放在真空箱中抽真空 20 min 直到气泡消失. 最后在鼓风干燥箱中在 70 $^{\circ}\text{C}$ 加热 40 min 形成固化后的 PDMS 膜, 作为与人体皮肤接触的软基底界面. 紧接着将厚度为 5 μm 的铜片平整地贴在 PDMS 薄膜上, 用丙酮和去离子水清洁其表面并烘干. 在铜片表面上旋涂 (3000 r/min, 30 s) 一层正性光刻胶 (AZ 5214, AZ Electronic Materials), 并在 110 $^{\circ}\text{C}$ 进行前烘 3 min. 随后用紫外深度光刻机 (URE-2000/35 AL, 中国科学院光电技术研究所) 对器件表面的光刻胶曝光 45 s, 使其形成设计好的几何图案. 曝光后用显影液 (AZ 300MIF) 进

行显影, 仅留下蛇纹线叉指电极图案的光刻胶覆盖于铜片表面, 并在 110 $^{\circ}\text{C}$ 进行后烘 3 min 使其完全固化. 用三氯化铁 (FeCl_3) 溶液刻蚀除去未被光刻胶覆盖的铜片区域, 并将剩余的光刻胶用丙酮溶液溶解除去. 清洗并烘干后, 具有蛇纹线结构的叉指铜电极已制备于柔性基底上. 将已经研磨充分的石墨烯压电橡胶前体用丝网印刷的方式均匀涂抹在蛇纹线结构的铜电极区域并加热固化. 最后在电子器件上封装一层 PDMS (交联剂质量比为 10:1) 薄膜并将其固化. 在封装好的压电皮肤电子器件两电极间施加 32 V 的直流电压, 并在 85 $^{\circ}\text{C}$ 条件下对石墨烯压电橡胶进行极化 30 min. 至此, 已制作完成厚度仅为 400 μm 的柔性压电皮肤电子器件.

3 实验结果与讨论

为探究该柔性压电皮肤电子器件在不同压力作用下的电学性能, 本研究中将器件置于硬质玻璃基板上并用具有直径为 2 cm 的圆形接触面的振荡器以固定频率 (1 Hz), 不同力度撞击该器件的石墨烯压电橡胶涂布区域, 并对其在撞击下稳定输出的电压及电流大小. 振荡器撞击力度由拉压力传感器 (CHLBS-min, 触达传感器有限公司) 测得, 电压与电流信号分别由多功能数据采集系统 (DAQ 6510, Keithley Instruments) 和高精度数据测量仪 (PowerLab 16/35, AD Instruments) 测量得到, 采样率均为 10 kHz. 测量结果如图 2 所示, 撞击压力为 2.84 ± 0.17 , 3.68 ± 0.11 , 4.05 ± 0.10 , 7.63 ± 0.13 和 (11.72 ± 0.05) kPa 时, 其输出平均峰值开路电压分别为 4.18 ± 0.10 , 5.06 ± 0.15 , 5.30 ± 0.11 , 5.47 ± 0.18 , 5.98 ± 0.19 和 (6.23 ± 0.25) V, 平均峰值短路电流分别为 0.99 ± 0.08 , 1.05 ± 0.06 , 1.17 ± 0.03 , 1.26 ± 0.05 , 1.63 ± 0.07 和 (1.96 ± 0.13) μA . 不同于在较大撞击压力下呈现饱和趋势的开路电压峰值, 短路电流在 2.84—11.72 kPa 压力下呈现类似线性的趋势 (图 2(d)), 能够明显区分不同的撞击压力. 实验中, 由于结构的改进, 石墨烯压电橡胶面积的增大及厚度的大幅降低, 在 11.72 kPa 的压力下其最大输出功率已达到 12 μW , 较先前研究^[36]中于 20.9 kPa 压力下的输出 (32 nW) 提高了 380 倍, 功率密度则约为 607 $\mu\text{W}/\text{cm}^3$, 接近先前研究^[36]中行走时才能产生

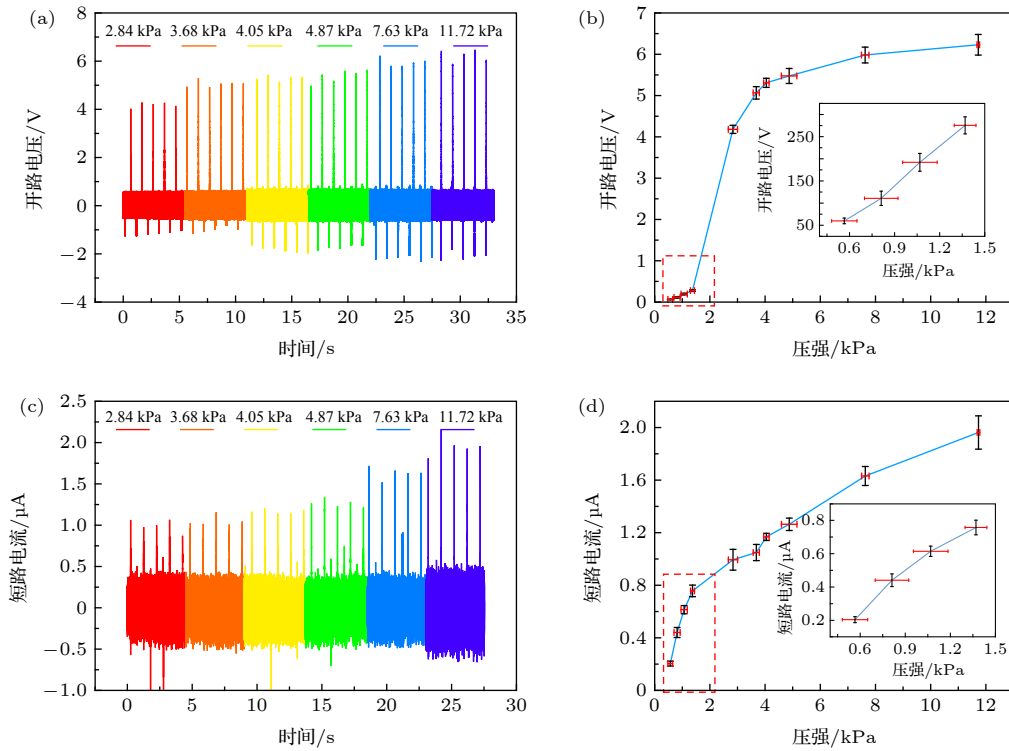


图 2 压电器件在 1 Hz 撞击频率下随撞击压力变化的电学性能 (a) 不同撞击压力下开路电压输出的实时测量值; (b) 以压力为变量的开路电压平均峰值曲线, 内插图为 1 kPa 及以下的小数量级压力下 (虚线框内部分) 的开路电压输出曲线放大图; (c) 不同撞击压力下短路电流输出的实时测量值; (d) 以压力为变量的短路电流平均峰值曲线, 内插图为 1 kPa 及以下的小数量级压力下 (虚线框内部分) 的短路电流输出曲线放大图

Fig. 2. Electrical performance of the piezoelectric device with varying applied pressure under a hitting frequency of 1 Hz: (a) Real-time measured open-circuit voltage output under varying applied pressure; (b) average peak open-circuit voltage as a function of pressure (inset: OC voltage output at about 1 kPa pressure and below); (c) real-time measured short-circuit current output under varying applied pressure; (d) average peak short-circuit current as a function of pressure (inset: SC current output at about 1 kPa pressure and below).

的功率密度 ($972 \mu\text{W}/\text{cm}^3$) 的 60% 以上. 在 1 kPa 附近及 1 kPa 以下数量级 ($\sim(0.57 \pm 0.08) \text{ kPa}$) 的压力范围内, 该器件仍然能够稳定工作, 并呈现较为明显的趋势以分辨不同的压力 (图 2(b) 和图 2(d) 小图).

在电学性能显著提升的同时, 本文的柔性压电皮肤电子器件在力学性能上也有优化改进. 现有的柔性压电器件多采用整体大面积的金属电极与“三明治”夹层结构^[41-43], 仅能进行面外弯曲变形, 而面内的直线叉指金属电极结构设计^[44,45]也基本不具备延展能力 (例如金的弹性应变极限仅 0.3%). 如图 1(b) 所示, 该器件的面内双电极采用横向的蛇形整体形状轮廓, 叉指间内部连接则采用纵向蛇纹线设计, 以整体与细节结合的蛇纹线图案设计并结合可延展功能材料的方式实现纵向与横向的可拉伸性. 变形过程中, 蛇形导线通过几何结构展开提供器件的可延展性, 同时保证了高电学性能、易

微加工性. 通过系统的力学设计将进一步提高整体器件的可延展性, 这也是本项研究下一步的主要工作. 为测试该器件在不同拉伸应变下的电学性能, 将器件工作区域 (石墨烯压电橡胶区域) 以人体皮肤日常活动中的典型应变程度^[46] (0, 5%, 10%, 15%, 20%) 进行拉伸, 并贴于人造皮肤组织 (PDMS, 500 kPa, 750 mm \times 500 mm \times 5 mm) 上, 以固定频率 (4.2 Hz) 和压力 ($(23.17 \pm 1.76) \text{ kPa}$) 敲击器件工作区域, 并测量记录其实时开路电压数值. 在纵向拉伸情况下, 实验结果如图 3(a) 和图 3(b) 所示. 在 0, 5%, 10%, 15%, 20% 的纵向拉伸应变下, 其输出开路电压平均峰值分别为 10.97 ± 0.22 , 10.61 ± 0.49 , 10.64 ± 0.37 , 9.56 ± 0.24 和 $(9.09 \pm 0.44) \text{ V}$. 由图 3(b) 柱状图可明显看出, 在纵向拉伸应变 $\leq 10\%$ 时, 其输出电压峰值基本不受影响, 能够稳定保持在 10 V 以上; 而当纵向拉伸应变 $\geq 15\%$ 时, 由于电极叉指间距增大, 由于敲击引起

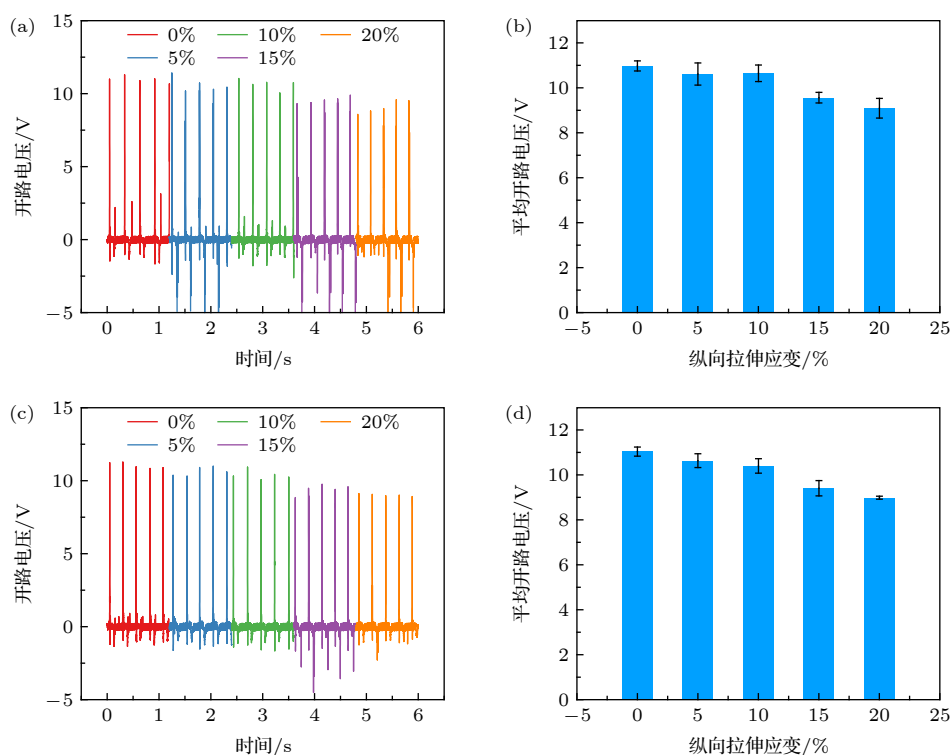


图 3 压电器件在纵向以及横向不同拉伸应变下, 在同一撞击压力 ((23.17 ± 1.76) kPa) 下的电学性能 (a) 纵向拉伸下的开路电压输出实时测量值; (b) 纵向拉伸下的开路电压平均峰值统计图; (c) 横向拉伸下的开路电压输出实时测量值; (d) 横向拉伸下的开路电压平均峰值统计图

Fig. 3. Electrical performance of the piezoelectric device with identical applied pressure ((23.17 ± 1.76) kPa) under varying longitudinal and latitudinal stretching strain: (a) Real-time measured open-circuit voltage output under varying longitudinal stretching strain; (b) average peak open-circuit voltage as a function of longitudinal strain; (c) real-time measured open-circuit voltage output under varying latitudinal strain; (d) average peak open-circuit voltage as a function of latitudinal strain.

的压电橡胶形变程度降低, 其电压峰值略有衰减. 在应变达到 20% (约为日常活动中最大程度的皮肤应变) 时, 其开路电压峰值约为无拉伸状况下的 82.86%, 仍能够保持较高水平的电压输出. 而在横向拉伸情况下的实验结果如图 3(c) 和图 3(d) 所示, 当横向拉伸应变为 0, 5%, 10%, 15%, 20% 时, 其输出开路电压平均峰值分别为 11.04 ± 0.20 , 10.64 ± 0.31 , 10.40 ± 0.32 , 9.41 ± 0.34 和 (8.99 ± 0.07) V. 可以看出, 横向拉伸情况下的电学性能与纵向拉伸情况下总体趋势非常接近, 在横向拉伸应变 $\leq 10\%$ 时其开路电压输出大小能保持在无拉伸情况时的 94.20% 以上, 而在 20% 的横向应变情况下也仍能保持 81.43%. 整体而言, 横向拉伸时该器件的开路电压输出幅值较纵向拉伸而言衰减速度略快一些, 但该器件在两个方向的拉伸应变达到 20% 时仍能够保持无拉伸状况时 80% 以上的电能输出, 证明柔性压电皮肤电子器件能够良好适应人体皮肤在日常活动中产生的各种形变, 并保持电学性能相对稳定.

为探究该柔性压电皮肤电子器件在实际应用中的性能, 将该器件贴在一志愿者前臂内侧, 在实际使用中测试其在不同机械刺激程度下的电学性能及分辨不同机械刺激的能力. 如图 4(a) 所示, 实验中用手指对贴于志愿者前臂皮肤上的器件压电橡胶涂覆区域分别进行触摸、点按、轻拍和敲击 (频率均约为 3 Hz) 4 种不同程度的机械刺激. 当触摸器件时, 其开路电压平均峰值为 (1.84 ± 0.04) V, 短路电流平均峰值为 (0.36 ± 0.04) μ A; 点按时分别为 (4.41 ± 0.11) V, (0.55 ± 0.08) μ A; 轻拍时分别为 (7.61 ± 0.37) V, (0.92 ± 0.04) μ A; 敲击时则分别为 (12.55 ± 0.44) V 和 (1.17 ± 0.06) μ A. 其开路电压及短路电流实时数据和统计值如图 4(b) 和图 4(c) 及图 4(d) 和图 4(e) 所示. 可以看出, 在贴于人体皮肤实际应用时该器件对于不同程度的机械刺激的电压及电流信号幅值有着相当明显的区别, 能够实时监测并清楚分辨作用于器件工作区域的不同机械刺激. 通过工作一个月后的柔性压电皮肤电子器件的触觉传感开路

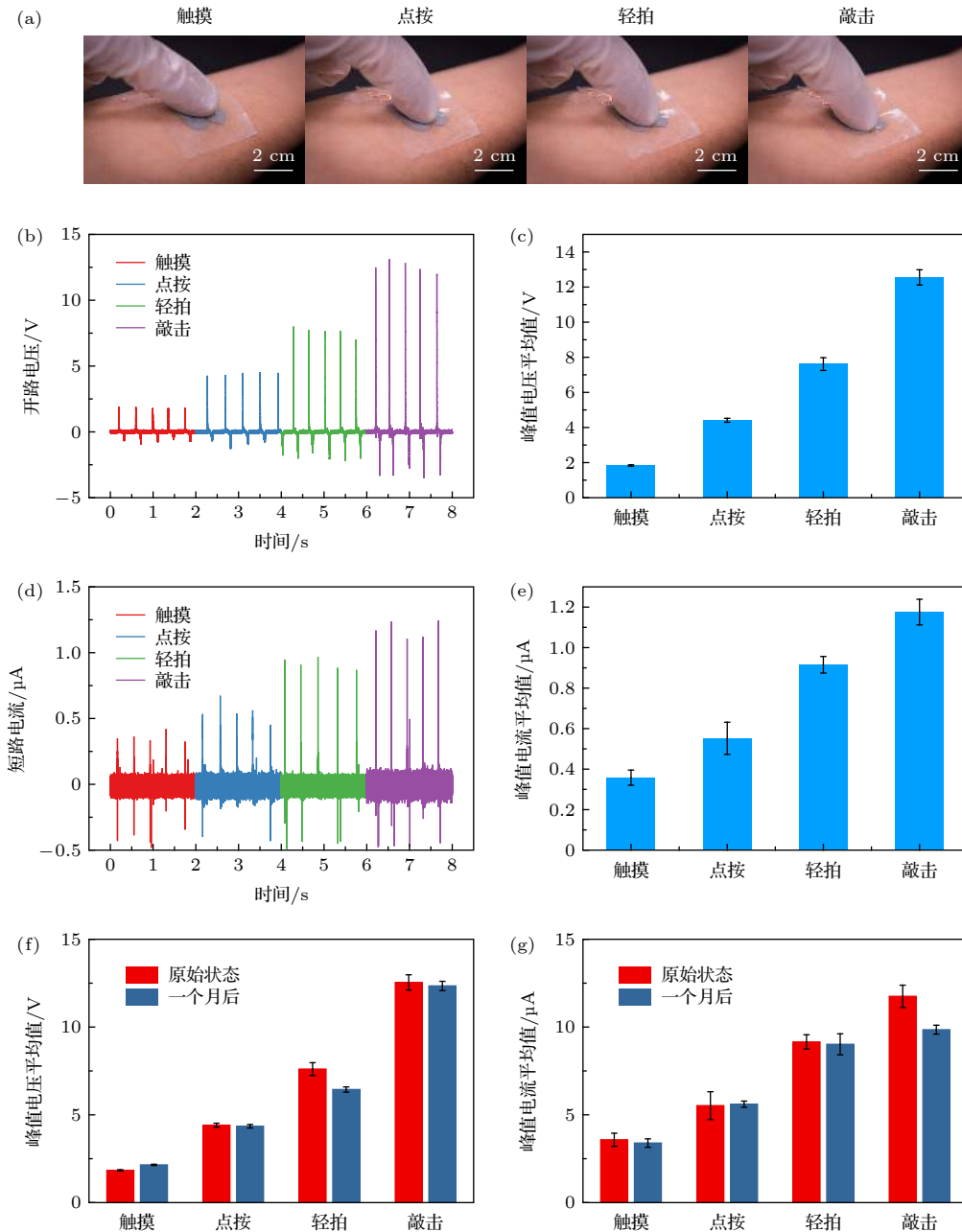


图 4 压电器件贴于人体表面实际测试时的电学性能 (a) 4 种不同力度的接触方式: 触摸、点按、轻拍、敲击; (b) 开路电压输出的实时测量值; (c) 开路电压平均峰值统计图; (d) 短路电流输出的实时测量值; (e) 短路电流平均峰值统计图; (f) 器件经历长时间后的触觉传感开路电压与原始性能的对比如; (g) 器件经历长时间后的触觉传感短路电流与原始性能的对比如

Fig. 4. Electrical performance of the piezoelectric device when attached to human skin: (a) Photos of four different contact method: touching, poking, tapping and hitting; (b) real-time measured open-circuit voltage outputs; (c) average peak open-circuit voltages; (d) real-time measured short-circuit current outputs; (e) average peak short-circuit currents; (f) comparison between open-circuit voltage outputs of devices in original state and after one-month use when used for tactile sensing; (g) comparison between short-circuit current outputs of devices in original state and after one-month use when used for tactile sensing.

电压与短路电流的输出性能与初始状况 (制备完成时) 下的性能进行横向对比 (图 4(f) 和图 4(g)), 以测试器件的长时间工作稳定性. 测试结果表明, 经历长时间工作后的柔性压电皮肤电子器件在受到不同类型的机械刺激时的平均开路电压与短路电流峰值仍具有相同的趋势, 较初始状况下的相同类

型刺激的电流/电压输出大小波动不大, 仍能清楚分辨不同类型的机械刺激, 证明该器件的长期电学稳定性良好. 同时, 作为自供能器件, 其在手指敲击刺激下的瞬时功率达到 $14.68 \mu\text{W}$, 功率密度达到约 $729 \mu\text{W}/\text{cm}^3$, 体现出良好的在人体皮肤表面将机械能转化为电能的能力. 在将该柔性压电皮肤

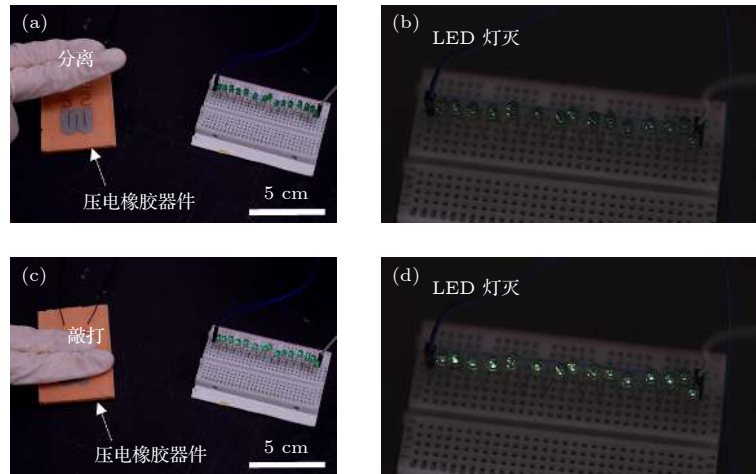


图 5 压电器件输出电能为 15 个 LED 灯泡供电测试 (a), (b) 在手指与压电器件分离时, LED 灯灭; (c), (d) 手指敲打压电器件瞬间, 15 个 LED 灯泡全部亮起

Fig. 5. Demonstration test of supplying energy for 15 LED bulbs only by the piezoelectric device: (a), (b) LEDs are blacked out when fingers lift off from the device; (c), (d) 15 LEDs are all lightened up at the moment fingers hit the device.

电子器件通过整流电桥连接于串联的发光二极管(LED)上时, 其在敲打机械刺激下输出的电能足够点亮多达 15 个 LED 灯泡, 如图 5 所示, 足以证明该器件可作为高效的压电纳米发电机, 具有为皮肤电子功能器件进行独立供能的巨大潜力。

4 结 论

本文研究展示了一个结构简单、易于制备、柔软轻便、可无缝贴合皮肤的可穿戴自供能柔性压电皮肤电子器件。应用掺杂石墨烯的 PZT 压电橡胶, 有效降低了压电材料的阻抗从而提升了其在机械刺激下的功率密度。通过优化力学结构设计的平面内蛇纹线叉指电极, 结合大幅降低厚度的石墨烯压电橡胶层, 在大幅提升自发电功率的同时使器件更轻 (1.08 g)、更薄 (0.4 mm), 在不同方向上均具有较好可拉伸性 (约 20%), 更加适于无感穿戴与日常活动的机械能收集。本文详细介绍了石墨烯压电橡胶材料及柔性压电皮肤电子器件的制备流程, 并系统展示了一系列该器件的实验测试结果。实验结果显示, 石墨烯压电橡胶材料在撞击压力作用下的开路电压与短路电流峰值大小随压力增大而增大, 短路电流测量结果与撞击压力大小成类似线性的关系, 能够清楚区分不同的压力大小。在横向和纵向拉伸情况下, 10% 以内的拉伸应变不会对该器件的电压输出大小造成明显影响, 而拉伸应变达到 20% 时其开路电压输出幅值均能维持在未拉伸情

况下的 80% 以上, 显示了该器件对人体日常活动中产生的皮肤应变有较好适的应性。其后将柔性压电皮肤电子器件贴于人体皮肤表面进行实际使用测试, 结果显示其开路电压与短路电流输出值大小可清楚分辨手指对其进行触摸、点按、轻拍和敲击 4 种不同力度的机械刺激, 具备作为可穿戴式机械传感器的能力; 同时, 其在手指敲击下的瞬时功率可达 $14.68 \mu\text{W}$, 石墨烯压电橡胶的功率密度达 $729 \mu\text{W}/\text{cm}^3$, 输出电能足够点亮 15 个 LED 灯泡, 证明了其收集机械能并转化为电能的能力及为可穿戴皮肤功能电子设备进行独立、稳定供能的潜力。

相信通过材料、结构等方面的优化改进, 随着制备工艺的成熟与产业化, 本文展示的自供能柔性皮肤电子器件能够为未来的柔性电子、皮肤电子产业提供更好的自供能能源管理策略, 实现可独立、稳定、长时间工作的健康数据传感与监测等功能, 助力生物医学工程、人机交互界面工程等领域的研究与发展。

感谢香港城市大学生物医学工程系刘一明的讨论和对实验的帮助。

参考文献

- [1] Yu X, Wang H, Ning X, et al. 2018 *Nat. Biomed. Eng.* **2** 165
- [2] Koo J, MacEwan M R, Kang S K, et al. 2018 *Nat. Med.* **24** 1830
- [3] Ray T R, Choi J, Bandodkar A J, et al. 2019 *Chem. Rev.* **119**

- 5461
- [4] Wang C, Wang C, Huang Z, et al. 2018 *Adv. Mater.* **30** 1801368
- [5] Carlson A, Bowen A M, Huang Y, et al. 2012 *Adv. Mater.* **24** 5284
- [6] Sim K, Chen S, Li Z, et al. 2019 *Nat. Electron.* **2** 471
- [7] Liu Y, Xu Y, Avila R, et al. 2019 *Nanotechnology* **30** 414001
- [8] Rogers J A, Nuzzo R G 2005 *Mater. Today* **8** 50
- [9] Widlund T, Yang S, Hsu Y Y, et al. 2014 *Int. J. Solids Struct.* **51** 4026
- [10] Wang B, Bao S, Vinnikova S, et al. 2017 *npj Flex. Electron.* **1** 1
- [11] Xie Z, Ji B, Huo Q 2018 *J. Appl. Mech. Trans. ASME* **85** 045001
- [12] Chen H, Zhu F, Jang K I, et al. 2018 *J. Mech. Phys. Solids* **120** 199
- [13] Guo Q, Koo J, Xie Z, et al. 2019 *Adv. Funct. Mater.* **29** 1905451
- [14] Xie Z, Avila R, Huang Y, et al. 2019 *Adv. Mater.* **32** 1902767
- [15] Webb R C, Bonifas A P, Behnaz A, et al. 2013 *Nat. Mater.* **12** 938
- [16] Yang J, Shi R, Lou Z, et al. 2019 *Small* **15** 1902801
- [17] Boutry C M, Beker L, Kaizawa Y, et al. 2019 *Nat. Biomed. Eng.* **3** 47
- [18] Wang C C, Li X, Hu H, et al. 2018 *Nat. Biomed. Eng.* **2** 687
- [19] Ma Y, Choi J, Hourlier-Fargette A, et al. 2018 *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* **115** 11144
- [20] Liu Y, Zhao L, Avila R, et al. 2020 *Mater. Today Phys.* **13** 100199
- [21] Wang Y, Qiu Y, Ameri S K, et al. 2018 *npj Flex. Electron.* **2** 1
- [22] Torrente-Rodríguez R M, Tu J, Yang Y, et al. 2020 *Matter* **2** 921
- [23] Kim S B, Lee K H, Raj M S, et al. 2018 *Small* **14** 1802876
- [24] Bandodkar A J, Gutruf P, Choi J, et al. 2019 *Sci. Adv.* **5** eaav3294
- [25] Goni O, Lee S, Jin H, et al. 2020 *PNAS* **117** 7063
- [26] Lee K H, Ni X, Lee J H J Y, et al. 2019 *Nat. Biomed. Eng.* **4** 148
- [27] Liu Y, Norton J J S, Qazi R, et al. 2016 *Sci. Adv.* **2** e1601185
- [28] Shin G, Gomez A M, Al-Hasani R, et al. 2017 *Neuron* **93** 509
- [29] Gutruf P, Rogers J A 2018 *Curr. Opin. Neurobiol.* **50** 42
- [30] Park S Il, Brenner D S, Shin G, et al. 2015 *Nat. Biotechnol.* **33** 1280
- [31] Chung H U, Kim B H, Lee J Y, et al. 2019 *Science (80-.)* **363** eaau0780
- [32] Hong Y J, Jeong H, Cho K W, et al. 2019 *Adv. Funct. Mater.* **29** 1808247
- [33] Huang Z, Hao Y, Li Y, et al. 2018 *Nat. Electron.* **1** 473
- [34] Yu X, Xie Z, Yu Y, et al. 2019 *Nature* **575** 473
- [35] Liu Y, Wang L, Zhao L, et al. 2020 *Adv. Electron. Mater.* **6** 1901174
- [36] Liu Y, Zhao L, Wang L, et al. 2019 *Adv. Mater. Technol.* **4** 1900744
- [37] Erturk A, Inman D J 2011 Chichester
- [38] Lin Z H, Yang Y, Wu J M, et al. 2012 *J. Phys. Chem. Lett.* **3** 3599
- [39] Niu X, Jia W, Qian S, et al. 2019 *ACS Sustain. Chem. Eng.* **7** 979
- [40] Liu Y, Wang L, Zhao L, et al. 2020 *InfoMat* **2** 318
- [41] Jung J H, Lee M, Hong J Il, et al. 2011 *ACS Nano* **5** 10041
- [42] Kim K H, Lee K Y, Seo J S, et al. 2011 *Small* **7** 2577
- [43] Hwang G T, Park H, Lee J H, et al. 2014 *Adv. Mater.* **26** 4880
- [44] Park K Il, Son J H, Hwang G T, et al. 2014 *Adv. Mater.* **26** 2514
- [45] Dagdeviren C, Yang B D, Su Y, et al. 2014 *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* **111** 1927
- [46] Arumugam V, Naresh M D, Sanjeevi R 1994 *J. Biosci.* **19** 307

SPECIAL TOPIC—Flexible electronics

Stretchable self-powered epidermal electronics from piezoelectric rubber for tactile sensing^{*}

Yao Kuan-Ming¹⁾ Yao Jing-Yi¹⁾ Hai Zhao¹⁾ Li Deng-Feng¹⁾
Xie Zhao-Qian^{2)†} Yu Xin-Ge^{1)‡}

1) (*Department of Biomedical Engineering, City University of Hong Kong, Hong Kong, China*)

2) (*State Key Laboratory of Structural Analysis for Industrial Equipment, Department of Engineering Mechanics, Dalian University of Technology, Dalian 116023, China*)

(Received 4 May 2020; revised manuscript received 12 June 2020)

Abstract

Soft, thin, skin-integrated electronics, i.e. epidermal electronics, has become a hotspot in biomedical engineering and drawn great attention for their applications in health monitoring, disease diagnosis and therapies. However, soft powering system is still a challenge for epidermal electronics, since the thickness and weight of the existing flexible energy harvesting and storage devices are very hard to meet the requirements of epidermal electronics. Here we present a stretchable and flexible self-powering epidermal electronic device based on rubbery piezoelectric composites formed by a ternary blend of PDMS, lead zirconate titanate (PZT) and graphene. The mixed PZT rubber is soft, ultra-thin and light weight and intrinsically stretchable. By combining soft PDMS substrate and advanced mechanics designed interdigital electrodes/interconnects, a stretchable and skin-integrated device for tactile sensing is realized. The soft device can not only accurately measure a board range of force from 2.84 kPa to 11.72 kPa but also exhibit great flexibility that can maintain stable performance under various mechanical deformations, such as bending, stretching and twisting. On-skin demonstration tests reveal that this self-powering device can clearly distinguish the differences among mechanical stimulations such as touching, poking, tapping and hitting. Furthermore, the self-powering nature of these devices allows energy to be harvested from daily body actives, for instance, hard touching by hand can lighten up to 15 light-emitting diodes.

Keywords: piezoelectric materials, graphene, flexible electronics, wearable devices

PACS: 87.85.-d, 84.60.-h, 85.50.-n, 81.05.ue

DOI: 10.7498/aps.69.20200664

^{*} Project supported by the City University of Hong Kong Research Grant, China (Grant Nos. 9610423, 9667199) and the Fundamental Research Funds for the Central Universities, China (Grant No. DUT20RC(3)032).

[†] Corresponding author. E-mail: zxie@dlut.edu.cn

[‡] Corresponding author. E-mail: xingeyu@cityu.edu.hk