



(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公告本

(11)證書號數：TW I858025 B

(45)公告日：中華民國 113 (2024) 年 10 月 11 日

(21)申請案號：109106826

(22)申請日：中華民國 109 (2020) 年 03 月 03 日

(51)Int. Cl. : C09J133/14 (2006.01)

(30)優先權：2019/03/07 歐洲專利局 19161196.1

(71)申請人：德商漢高股份有限及兩合公司(德國) HENKEL AG & CO. KGAA (DE)
德國(72)發明人：耐格 卡拉 NEGELE, CARLA (DE)；范 德 慕倫 英奇 VAN DER MEULEN,
INGE (NL)；吉利森 史提因 GILLISSEN, STIJN (BE)；羅斯雀克 托比亞斯
ROSCHEK, TOBIAS (DE)；戈洛 法蘭克 GOETHEL, FRANK (DE)；貝絲勒 愛
麗莎 BESLER, ALISSA (DE)；施奈德 安雅 SCHNEIDER, ANJA (DE)

(74)代理人：陳長文

(56)參考文獻：

TW 201446508A

TW 201819575A

審查人員：李宜儒

申請專利範圍項數：36 項 圖式數：14 共 42 頁

(54)名稱

乾電極黏合劑

(57)摘要

本發明係關於一種電極黏合劑，其為允許在不刺激皮膚及損失信號品質的情況下進行長時間生物信號監測的基於離子傳導性(甲基)丙烯酸酯之壓敏黏合劑。

The present invention relates to an electrode adhesive, which is an ionically conductive (meth)acrylate based pressure sensitive adhesive allowing prolonged biosignal monitoring times without skin irritation and loss of signal quality.



I858025

【發明摘要】

【中文發明名稱】

乾電極黏合劑

【英文發明名稱】

DRY ELECTRODE ADHESIVE

【中文】

本發明係關於一種電極黏合劑，其為允許在不刺激皮膚及損失信號品質的情況下進行長時間生物信號監測的基於離子傳導性(甲基)丙烯酸酯之壓敏黏合劑。

【英文】

The present invention relates to an electrode adhesive, which is an ionically conductive (meth)acrylate based pressure sensitive adhesive allowing prolonged biosignal monitoring times without skin irritation and loss of signal quality.

【指定代表圖】

無

【代表圖之符號簡單說明】

無

【發明說明書】

【中文發明名稱】

乾電極黏合劑

【英文發明名稱】

DRY ELECTRODE ADHESIVE

【技術領域】

【0001】 本發明係關於電極黏合劑，其為允許在不刺激皮膚及損失信號品質的情況下進行長時間生物信號監測之離子傳導性壓敏黏合劑。

【先前技術】

【0002】 各種類型之電極用於量測生物信號，諸如心電描記法(ECG)、腦電描記法(EEG)及肌電描記法(EMG)。

【0003】 例如，當前使用之ECG電極經由凝膠與皮膚連接，凝膠充當電解質且將身體信號轉移至電極。然而，其隨時間推移而乾涸且無法用於長期量測。大部分情況下，不推薦使用其超過24小時。另外，其不具有長儲存時間，大部分情況下在打開之後最多一個月，且此外，其需要特殊包裝以防止其乾涸。

【0004】 尤其，當前使用之凝膠電極具有高鹽濃度，其為低阻抗及良好信號品質所必需的，然而同時，其對許多患者造成皮膚刺激。此外，此等電極含有相對較高量的水。高含水量為此等電極傾向於乾涸，且因此無法用於長期量測(最多三天)之一個原因，因為信號品質隨著含水量減少而降低。當前凝膠電極用圍繞內部凝膠之壓敏皮膚黏合劑之環與皮膚連接。

【0005】 當前市面上亦存在突片電極，其經由凝膠型黏合劑與皮膚

連接。此等電極不需要額外皮膚黏合劑，因為凝膠自身黏附至皮膚。然而，此等電極亦包含鹽及水，且可隨時間推移乾涸且因此不適合於長期量測。此等電極中之黏合劑的內聚性通常較差，在移除電極後導致內聚失效。

【0006】 或者，包含傳導性填充劑，諸如碳黑之壓敏黏合劑可用於電極以量測生物信號。此類電極之缺點為需要高碳黑濃度，其導致黏合力損失。此外，在無離子傳導黏合劑之情況下，此類電極之信號品質較差。

【0007】 在另一電極解決方案中，電極含有包含碳黑及鹽之組合的黏合劑。需要傳導性填充劑之電泳校準以便在此解決方案中獲得足夠阻抗。然而，此電泳活化步驟使得電極生產昂貴且複雜。

【0008】 因此，需要用於量測生物信號之電極，其可在不損失信號或黏合力之情況下使用一週，同時不乾涸或使皮膚過敏或刺激皮膚。

【發明內容】

【0009】 本發明係關於一種離子傳導性壓敏黏合劑組合物，其包含 a) (甲基)丙烯酸酯樹脂，其包含按該(甲基)丙烯酸酯樹脂之總重量計至少 10 重量%的包含 OH-基(羥基)之(甲基)丙烯酸酯單體；及 b) 離子液體。

【0010】 本發明亦關於由根據本發明之離子傳導性壓敏黏合劑組合物形成之乾膜。

【0011】 本發明涵蓋將根據本發明之離子傳導性壓敏黏合劑組合物或乾膜在皮膚應用中用作接觸介質，作為自皮膚量測生物信號之電極的一部分。

【圖式簡單說明】

【0012】

圖1說明具有或不具有苯甲酸1-乙基-3-甲基咪唑鎘作為離子液體的含有不同官能基之壓敏黏合劑之阻抗譜。

圖2說明含有各種根據本發明之離子液體的壓敏黏合劑之阻抗譜。

圖3a說明塗佈有含有額外碳黑粒子之根據本發明之離子傳導性壓敏黏合劑的銀電極。

圖3b說明用經由含有乙酸1-乙基-3-甲基咪唑鎘之離子傳導性壓敏黏合劑與皮膚連接之銀電極記錄的ECG譜。

圖4說明含有可變量之PEG及硫酸乙酯1-乙基-3-甲基咪唑鎘的根據本發明之壓敏黏合劑之阻抗譜。

圖5說明具有改變之碳黑及乙酸膽鹼的根據本發明之壓敏黏合劑之阻抗譜。

圖6說明Ag/AgCl電極上根據實例23 (實線)及5 (點線)之組合物之阻抗譜。

圖7說明實例4、5、13之去顫過載恢復測試曲線。

圖8說明對於具有根據實例5之電極黏合劑之電極對，根據ANSI/AAMI EC12:2000/(R)2015之去顫過載恢復放電曲線。

圖9說明對於具有根據實例23之電極黏合劑之電極對，根據ANSI/AAMI EC12:2000/(R)2015之去顫過載恢復放電曲線。

圖10說明對於具有不同黏合劑組合物之電極樣品(實例5及23)，在電流偏壓期間之電壓增加。

圖11說明對於具有電極黏合劑之電極樣品(實例23)，在長期電流偏壓(200 nA)期間之電壓增加。

圖12說明對於具有電極黏合劑之電極樣品(實例23)，在長期電流偏

壓(2 μ A)期間之電壓增加。

圖13說明具有根據本發明之電極黏合劑之電極樣品(實例23)的偏移不穩定性及內部雜訊量測結果。

圖14說明含有具有不同程度之OH官能度之乾電極黏合劑之配對電極的阻抗譜。

【實施方式】

【0013】 本發明更詳細地描述於以下段落中。除非相反地清楚明確指示，否則如此描述之各態樣可與任何其他態樣組合。特定而言，任何指明為較佳或有利之特徵可與任何其他指明為較佳或有利之特徵組合。

【0014】 在本發明之情形下，除非上下文另外規定，否則根據以下定義解釋所使用之術語。

除非上下文另外明確指明，否則如本文所用，單數形式「一(a/an)」及「該」包括單數個與複數個提及物。

如本文所使用之術語「包含(comprising/comprises)」及「由……構成(comprised of)」與「包括(including/includes)」或「含有(containing/contains)」同義，且為包括性或開放性的，且不排除額外的未敘述成員、元素或方法步驟。

【0015】 數字端點之列舉包括包含於各別範圍內之所有數字及分數，以及所列舉的端點。

除非另外指明，否則本文提及之所有百分比、份數、比例及其類似者均以重量計。

【0016】 當以範圍、較佳範圍或較佳上限值及較佳下限值之形式表達量、濃度或其他值或參數時，應理解在不考慮所獲得之範圍是否清楚地

在上下文中清楚地提及之情況下，特定地揭示藉由組合任何上限值或較佳值與任何下限值或較佳值而獲得之任何範圍。

【0017】 在本說明書中所引用之所有參考文獻均以全文引用之方式併入本文中。

【0018】 除非另外定義，否則用於揭示本發明之所有術語包括技術及科學術語均具有如本發明所屬領域之一般熟習此項技術者通常所理解的意義。藉助於進一步提供指導，術語定義係為了更好地理解本發明之教示而包括在內。

【0019】 根據本發明之乾電極黏合劑為具有低阻抗及良好皮膚相容性之離子傳導性壓敏黏合劑(PSA)。

【0020】 根據本發明之離子傳導性壓敏黏合劑係基於具有高透氣性之極性溶劑基丙烯酸壓敏黏合劑及產生離子傳導性之無毒、無刺激性離子液體。

【0021】 根據本發明之離子傳導性壓敏黏合劑組合物可用作乾膜，其藉由在電極與皮膚之間充當功能接觸而為長期監測生物信號提供解決方案。相比於當前市面上之凝膠型電極，其無法乾涸且其不引起皮膚刺激。此外，在不添加任何水的情況下，根據本發明之PSA之阻抗極低。

【0022】 本發明係關於包含(甲基)丙烯酸酯樹脂及離子液體之離子傳導性壓敏黏合劑組合物，該(甲基)丙烯酸酯樹脂含有包含OH-基(羥基)之(甲基)丙烯酸酯單體。

【0023】 根據本發明之離子傳導性壓敏黏合劑組合物包含(甲基)丙烯酸酯樹脂，其包含按該(甲基)丙烯酸酯樹脂之總重量計至少10重量%的包含OH-基之(甲基)丙烯酸酯單體。

【0024】 用於本發明之適合之(甲基)丙烯酸酯樹脂較佳由選自由以下組成之群的單體形成：丙烯酸羥乙酯、丙烯酸羥丙酯、丙烯酸羥丁酯、甲基丙烯酸甲酯、丙烯酸丁酯、丙烯酸乙基己酯、丙烯酸、(甲基)丙烯酸C1-C18烷基酯、(甲基)丙烯酸醯胺、乙酸乙烯酯、N-乙基己內醯胺、丙烯酸腈、乙基醚、(甲基)丙烯酸苯甲酯、(甲基)丙烯酸環己酯、(甲基)丙烯酸縮水甘油酯及其混合物，較佳由選自由以下組成之群的單體形成：丙烯酸羥乙酯、甲基丙烯酸甲酯、丙烯酸丁酯、丙烯酸乙基己酯及其混合物，且更佳地，該(甲基)丙烯酸酯樹脂由丙烯酸羥乙酯、(甲基)丙烯酸甲酯、丙烯酸丁酯及丙烯酸乙基己酯形成。

【0025】 用於本發明之適合之市售(甲基)丙烯酸酯樹脂包括但不限於獲自Henkel之Loctite DURO-TAK 222A、Loctite DURO-TAK 87-202A；Loctite DURO-TAK 87-402A；Loctite DURO-TAK 73-626A。

【0026】 本申請人已發現包含(甲基)丙烯酸酯樹脂(含有至少10%包含OH-基之(甲基)丙烯酸酯單體)之PSA提供良好阻抗，且電極不乾涸，且其可用於較長時段量測(較高OH含量增加聚合物之水蒸氣穿透率，其有助於增加透氣性及延長磨損時間)。

【0027】 較佳地，該(甲基)丙烯酸酯樹脂中包含OH-基之該(甲基)丙烯酸酯單體之含量為(甲基)丙烯酸酯樹脂之總重量的至少15重量%，更佳至少20%，更佳至少25%，且最佳至少30%，但不超過65%，較佳不超過60%，更佳不超過55%，且最佳不超過50%。

【0028】 當該(甲基)丙烯酸酯樹脂中包含OH-基之(甲基)丙烯酸酯單體為(甲基)丙烯酸酯樹脂之總重量的大於65重量%時，較高OH-基含量可不利地影響黏合特性。

【0029】 根據本發明之離子傳導性壓敏黏合劑組合物可包含組合物之總重量之5至80重量%、較佳15至75%且更佳30至70%之該(甲基)丙烯酸酯樹脂。

【0030】 較低(甲基)丙烯酸酯樹脂量可導致不佳黏合特性且對成膜特性不利，而過高量可導致不佳傳導性。

【0031】 根據本發明之離子傳導性壓敏黏合劑組合物包含離子液體，較佳為產生離子傳導性之無毒、無刺激性離子液體。

【0032】 更特定言之，根據本發明之離子傳導性壓敏黏合劑組合物包含選自由以下組成之群的離子液體：乙酸咪唑鎊、磺酸咪唑鎊、氯化咪唑鎊、硫酸咪唑鎊、磷酸咪唑鎊、硫氰酸咪唑鎊、二氰胺咪唑鎊、苯甲酸咪唑鎊、三氟甲磺酸咪唑鎊、三氟甲磺酸膽鹼、糖酸膽鹼、胺磺酸膽鹼、乙酸吡錠、磺酸吡錠、氯化吡錠、硫酸吡錠、磷酸吡錠、硫氰酸吡錠、二氰胺吡錠、苯甲酸吡錠、三氟甲磺酸吡錠、乙酸吡咯啉鎊、磺酸吡咯啉鎊、氯化吡咯啉鎊、硫酸吡咯啉鎊、磷酸吡咯啉鎊、硫氰酸吡咯啉鎊、二氰胺吡咯啉鎊、苯甲酸吡咯啉鎊、三氟甲磺酸吡咯啉鎊、乙酸鎂、磺酸鎂、氯化鎂、硫酸鎂、磷酸鎂、硫氰酸鎂、二氰胺鎂、苯甲酸鎂、三氟甲磺酸鎂、乙酸鋁、磺酸鋁、氯化鋁、硫酸鋁、磷酸鋁、硫氰酸鋁、二氰胺鋁、苯甲酸鋁、三氟甲磺酸鋁、乙酸銻、磺酸銻、氯化銻、硫酸銻、磷酸銻、硫氰酸銻、二氰胺銻、苯甲酸銻、三氟甲磺酸銻、乙酸銻、磺酸銻、氯化銻、硫酸銻、磷酸銻、硫氰酸銻、二氰胺銻、苯甲酸銻、三氟甲磺酸銻及其混合物。

【0033】 較佳地，該離子液體選自由以下組成之群：乙酸1-乙基-3-甲基咪唑鎊、甲烷磺酸1-乙基-3-甲基咪唑鎊、三氟甲烷磺酸1-乙基-3-甲基咪唑鎊、氯化1-乙基-3-甲基咪唑鎊、硫酸乙酯1-乙基-3-甲基咪唑鎊、磷酸二乙酯1-乙基-3-甲基咪唑鎊、硫氰酸1-乙基-3-甲基咪唑鎊、二氰胺

1-乙基-3-甲基咪唑鎊、苯甲酸1-乙基-3-甲基咪唑鎊、三氟甲烷磺酸膽鹼、糖酸膽鹼、乙醯胺基磺酸膽鹼、*N*-環己基胺基磺酸膽鹼、硫酸甲酯參(2-羥乙基)甲基銨、四氟硼酸1-乙基-3-甲基咪唑鎊、1-烯丙基-3-甲基咪唑鎊雙(三氟甲磺醯基)醯亞胺、乙酸膽鹼及其混合物。

【0034】更佳地，離子液體選自由以下組成之群：苯甲酸1-乙基-3-甲基咪唑鎊、四氟硼酸1-乙基-3-甲基咪唑鎊、甲烷磺酸1-乙基-3-甲基咪唑鎊、氯化1-乙基-3-甲基咪唑鎊、三氟甲烷磺酸1-乙基-3-甲基咪唑鎊、三氟甲烷磺酸膽鹼、乙酸1-乙基-3-甲基咪唑鎊、乙酸膽鹼、磷酸二乙酯1-乙基-3-甲基咪唑鎊、1-烯丙基-3-甲基咪唑鎊雙(三氟甲磺醯基)醯亞胺、硫酸乙酯1-乙基-3-甲基咪唑鎊、硫氰酸1-乙基-3-甲基咪唑鎊、二氰胺1-乙基-3-甲基咪唑鎊、糖酸膽鹼、乙醯胺基磺酸膽鹼及其混合物。

【0035】上文所提及之離子液體較佳，因為其具有針對根據本發明之(甲基)丙烯酸酯樹脂之良好溶解度及低毒性。

【0036】在一個實施例中，使用兩種或更多種離子液體，在此實施例中，該等離子液體係選自由以下組成之群：乙酸1-乙基-3-甲基咪唑鎊、甲烷磺酸1-乙基-3-甲基咪唑鎊、三氟甲烷磺酸1-乙基-3-甲基咪唑鎊、氯化1-乙基-3-甲基咪唑鎊、硫酸乙酯1-乙基-3-甲基咪唑鎊、磷酸二乙酯1-乙基-3-甲基咪唑鎊、硫氰酸1-乙基-3-甲基咪唑鎊、二氰胺1-乙基-3-甲基咪唑鎊、苯甲酸1-乙基-3-甲基咪唑鎊、三氟甲烷磺酸膽鹼、糖酸膽鹼、乙醯胺基磺酸膽鹼、*N*-環己基胺基磺酸膽鹼、硫酸甲酯參(2-羥乙基)甲基銨、四氟硼酸1-乙基-3-甲基咪唑鎊、1-烯丙基-3-甲基咪唑鎊雙(三氟甲磺醯基)醯亞胺、乙酸膽鹼；

【0037】較佳地，兩種或更多種離子液體係選自由以下組成之群：

苯甲酸1-乙基-3-甲基咪唑鎊、四氟硼酸1-乙基-3-甲基咪唑鎊、甲烷磺酸1-乙基-3-甲基咪唑鎊、氯化1-乙基-3-甲基咪唑鎊、三氟甲烷磺酸1-乙基-3-甲基咪唑鎊、三氟甲烷磺酸膽鹼、乙酸1-乙基-3-甲基咪唑鎊、乙酸膽鹼、磷酸二乙酯1-乙基-3-甲基咪唑鎊、1-烯丙基-3-甲基咪唑鎊雙(三氟甲磺醯基)醯亞胺、硫酸乙酯1-乙基-3-甲基咪唑鎊、硫氰酸1-乙基-3-甲基咪唑鎊、二氰胺1-乙基-3-甲基咪唑鎊、糖酸膽鹼、乙醯胺基磺酸膽鹼。

【0038】 用於本發明之適合之市售離子液體包括但不限於Basionics ST80、Basionics Kat1、Basionics BC01、Basionics VS11、Basionics VS03及Efka IO 6785，其全部獲自BASF。

【0039】 以組合物之總重量計，根據本發明之離子傳導性壓敏黏合劑組合物可包含0.1至35重量%、較佳0.5至25重量%、且更佳1至15重量%之離子液體。

【0040】 若離子液體之量過低，則黏合劑可不展示任何離子傳導性且信號會喪失，而過高量可不提供信號品質改善，但可增加皮膚刺激幾率且降低黏合特性。

【0041】 根據本發明之離子傳導性壓敏黏合劑組合物可進一步包含離子傳導性促進劑，較佳為產生額外離子傳導性之無毒、無刺激性離子傳導性促進劑。

【0042】 離子傳導性促進劑在室溫下為半固體或固體且可溶解於離子液體中。其與根據本發明之(甲基)丙烯酸酯樹脂具有良好相容性。

【0043】 適用於本發明之離子傳導性促進劑選自氯化膽鹼、酒石酸氫膽鹼、檸檬酸二氫膽鹼、磷酸膽鹼、葡萄糖酸膽鹼、反丁烯二酸膽鹼、碳酸膽鹼、焦磷酸膽鹼、氯化鈉、氯化鋰、氯化鉀、氯化鈣、氯化鎂、氯化

鋁、氯化銀、氯化銨、氯化烷基銨、氯化二烷基銨、氯化三烷基銨、氯化四烷基銨及其混合物。

【0044】 根據本發明，根據本發明之離子傳導性壓敏黏合劑組合物可包含以組合物之總重量計0.1至35重量%、較佳0.5至25重量%、且更佳1至15重量%之離子傳導性促進劑。

【0045】 若離子傳導性促進劑之量過低，則壓敏黏合劑可不展示任何離子傳導性且信號會喪失，而過高量可不提供信號品質改善，但可增加皮膚刺激幾率且降低黏合特性。

根據本發明之離子傳導性壓敏黏合劑組合物可進一步包含導電粒子。

【0046】 較佳地，導電粒子係選自由以下組成之群：金屬粒子及金屬奈米粒子、含金屬粒子及奈米粒子、石墨粒子及奈米粒子、碳粒子及奈米粒子、碳奈米線、導電聚合物粒子及奈米粒子及其混合物，更佳選自由以下組成之群：含銀粒子、銀粒子、銅粒子、含銅粒子、銀奈米線、銅奈米線、石墨粒子、碳粒子及其混合物，且甚至更佳選自石墨粒子、碳粒子及其混合物。

【0047】 石墨粒子及碳粒子較佳，因為其不引起皮膚刺激，但提供足夠傳導性。

【0048】 用於本發明之適合之市售導電粒子包括但不限於獲自Timcal之Ensaco 250G、Timrex KS6；獲自Necarbo之Printex XE2B；獲自Imerys之C-Nergy Super C65及獲自Cabot之Vulcan XC72R。

【0049】 根據本發明之離子傳導性壓敏黏合劑組合物可包含以組合物之總重量計0.1至35重量%、較佳0.5至25重量%且更佳1至15重量%之該

等導電粒子。

【0050】 若導電粒子之量過低，則其可導致不佳傳導性，而過高量可導致黏合特性喪失。

【0051】 根據本發明之離子傳導性壓敏黏合劑組合物可進一步包含聚醚多元醇。較佳地，聚醚多元醇係選自聚乙二醇(PEG)、聚丙二醇(PPG)、聚丁二醇(PTMG)及其混合物。

【0052】 本申請人已發現，添加聚醚多元醇係離子傳導性之格外良好主體(由於開放及可撓性分子鏈)，且因此對阻抗具有積極影響。本申請人已發現，少量聚醚多元醇具有積極影響，其關於組合物之皮膚相容性為有益的。

【0053】 較佳地，聚醚多元醇之重均分子量(Mw)可為300至1000 g/mol，較佳為350至750 g/mol且更佳為380至420 g/mol，其中分子量係藉由凝膠滲透層析法，根據DIN 55672-1:2007-08以THF作為溶離劑來量測。

【0054】 用於本發明之適合之市售聚醚多元醇包括但不限於獲自BASF之Kollisolv PEG 400。

【0055】 根據本發明之離子傳導性壓敏黏合劑組合物可包含以組合物之總重量計0.1至35重量%、較佳0.5至25重量%且更佳1至15重量%之聚醚多元醇。

【0056】 過高聚醚多元醇量可導致黏合特性損失。

【0057】 根據本發明之離子傳導性壓敏黏合劑組合物可進一步包含溶劑。

【0058】 用於本發明之適合之溶劑可選自由以下組成之群：水、乙

酸乙酯、乙酸丁酯、丁基二乙二醇、2-丁氧基乙醇、乙二醇、二乙二醇、丙二醇、二丙二醇、甲醇、異丙醇、丁醇、二元酯、己烷、庚烷、2,4-戊二酮、甲苯、二甲苯、苯、己烷、庚烷、甲基乙基酮、甲基異丁基酮、二乙醚及其混合物，較佳地，該溶劑選自由以下組成之群：乙酸乙酯、乙酸丁酯、乙二醇、丙二醇及其混合物。

【0059】 用於本發明之適合之市售溶劑包括但不限於獲自Brenntag之乙酸乙酯及乙二醇、獲自Shell Chemicals之乙酸丁酯及獲自Lyondell之丙二醇。

【0060】 根據本發明之離子傳導性壓敏黏合劑組合物可包含以組合物之總重量計10至90重量%、較佳20至80重量%且更佳30至70重量%之溶劑。

【0061】 若溶劑之量過低，則此可導致可加工性問題，因為黏度過高且(甲基)丙烯酸酯樹脂可能不完全可溶。而過高量可導致功能損失，且黏合劑之黏度過低而無法處理。

【0062】 根據本發明之離子傳導性壓敏黏合劑組合物的阻抗值較佳為在1000 Hz下低於1,000,000 Ohm，較佳為在1000 Hz下低於100,000 Ohm且更佳為在1000 Hz下低於40,000 Ohm，其中該阻抗係藉由連接兩個各塗佈有25 μm 離子傳導性壓敏黏合劑之電極(接觸面積為0.25 cm^2)來量測。

【0063】 在根據本發明之組合物中，(甲基)丙烯酸酯樹脂及離子液體之組合產生低阻抗。離子液體提供離子傳導性，然而，若離子液體與(甲基)丙烯酸酯樹脂不可混溶，則將在壓敏黏合劑中不可見任何離子傳導性。在其中將PEG添加至組合物之實施例中，來自PEG之額外醚基使得系

統更具極性且增強(甲基)丙烯酸酯樹脂中離子液體之離子傳導性。

【0064】 根據本發明之離子傳導性壓敏黏合劑組合物具有高透氣性。若水可容易地穿透黏合層，則獲得良好透氣性。為獲得此效應，需要相當極性的樹脂，在此情況下，OH-官能基支持及改善透氣性。

【0065】 根據本發明之黏合劑具有24小時內約4600 g/m²之透氣性值。作為比較，標準丙烯酸PSA具有24小時內約2000 g/m²之透氣性值。根據ASTM D1653經由濕蒸氣穿透率(MVTR)量測來量測透氣性。

【0066】 本發明亦關於由根據本發明之離子傳導性壓敏黏合劑組合物形成之乾膜。

【0067】 可如下進行乾膜形成：藉由將離子傳導性壓敏黏合劑組合物塗佈於支撐基板(諸如膜)上，且將膜在例如120°C之烘箱中乾燥3分鐘以移除溶劑，且在支撐基板上形成離子傳導性壓敏黏合劑之乾膜。

【0068】 可使用已知的用於製備壓敏黏合劑之方法。特定言之，實例包括滾塗、凹版塗佈、反向塗佈、滾動刷塗、噴塗及氣刀塗佈法、浸沒及簾式塗佈法以及藉由模壓塗佈機進行之擠壓塗佈法。本發明亦關於將根據本發明之離子傳導性壓敏黏合劑組合物在皮膚應用中用作接觸介質，作為自皮膚量測生物信號之電極的一部分。

【0069】 本發明亦涵蓋將根據本發明之乾膜在皮膚應用中用作接觸介質，作為自皮膚量測生物信號之電極的一部分。

【0070】 阻抗為電極功能之關鍵參數。拋棄式ECG電極之要求及量測程序係由ANSI/AAMI EC12:2000/(R)2015定義。對於經由黏合側彼此連接之兩個電極，電極在10 Hz下之阻抗需要平均低於2000 Ohm。

【0071】 包含根據本發明之離子傳導性壓敏黏合劑之電極的阻抗值

為在10 Hz下低於100,000 Ohm，較佳為在10 Hz下低於10,000 Ohm且更佳為在10 Hz下低於2,000 Ohm，其中該阻抗係藉由將兩個電極經由其黏合側彼此連接來量測。

【0072】 ECG電極之另一重要測試為去顫過載恢復(DOR) (根據ANSI/AAMI EC12:2000/(R)2015量測)。在此上下文中，去顫過載恢復係指在10 μ F電容器(充電至200V)經由樣品(其由經由黏合側彼此連接之兩個電極組成；電極在此處對應於非傳導基板上之Ag/AgCl傳導層上的黏合劑)放電時，跨電極之電壓下降。對於成功測試，此必須連續3次滿足。允許之電壓範圍展示於下表1中，值為在一時刻之最大允許電壓或在一時間間隔內之最大允許電壓差：

表1

時間	要求(mV)	
2秒	<	2000
7秒	<	100
7-17秒	< Δ	11
17-27秒	< Δ	11

【0073】 去顫過載恢復可受離子液體/鹽，尤其是離子液體/鹽之陰離子的選擇影響。氯離子在Ag/AgCl電極上提供快速去顫過載恢復時間。原則上，可使用每一氯離子，然而，離子液體(例如氯化EMIM或氯化膽鹼)之氯離子由於其與黏合材料之良好相容性而為較佳的。然而，黏合劑組合物中之氯化EMIM可能不產生足以符合阻抗要求之體傳導率。出人意料地，具有提供良好體傳導率之陰離子的離子液體(例如二氰胺EMIM)不展示快速去顫過載恢復。因此，為了理想的電極行為，需要在良好體傳導率與快速放電特性之間發現良好平衡。根據本發明之離子傳導性PSA中之兩種或更多種不同離子液體或鹽之組合可為滿足電極之所有效能要求的解

決方案。

【0074】 已發現氯化物鹽已在較低量(<2 wt%根據本發明之乾黏合膜)下提供快速放電特性，因為具有包含氯化物之黏合劑的電極具有kOhm範圍內之DC電阻，而具有不含氯化物之黏合劑的電極具有約10 MOhm之DC電阻。僅低DC電阻率允許樣品在短時間內放電，且因此，可符合去顫過載恢復要求。

【0075】 在根據本發明之組合物中，(甲基)丙烯酸酯樹脂及離子液體之組合使得電極樣品快速放電，且對於在黏合劑與傳導層之間具有匹配界面之電極，符合去顫過載要求。

實例

材料：

獲自 Henkel AG & Co. KGaA 之 LOCTITE DURO-TAK 222A 、
LOCTITE DURO-TAK 1053 及 LOCTITE DURO-TAK 387-2518

獲自 Henkel AG & Co. KGaA 之 LOCTITE EDAG 6038E SS

獲自 BASF 之 苯甲酸 1-乙基-3-甲基咪唑鎊

獲自 Proionic 之 三氟甲烷磺酸 1-乙基-3-甲基咪唑鎊

獲自 BASF 之 二氰胺 1-乙基-3-甲基咪唑鎊

獲自 BASF 之 氯化 1-乙基-3-甲基咪唑鎊

獲自 Sigma-Aldrich 之 四氟硼酸 1-乙基-3-甲基咪唑鎊

獲自 Proionic 之 甲磺酸 1-乙基-3-甲基咪唑鎊

獲自 IoLiTec 之 磷酸二乙酯 1-乙基-3-甲基咪唑鎊

獲自 Sigma-Aldrich 之 AMIM 雙(三氟甲磺醯基)醯亞胺

獲自 BASF 之 硫酸乙酯 1-乙基-3-甲基咪唑鎊

獲自BASF之硫氰酸1-乙基-3-甲基咪唑鎊

獲自Fluka之PEG400

獲自Sigma-Aldrich之氯化膽鹼

獲自Sigma-Aldrich之氫氧化膽鹼溶液

獲自Sigma-Aldrich之水合糖精鈉

三氟甲磺酸，Sigma-Aldrich

獲自Sigma-Aldrich之Acesulfam K

獲自Imerys之C-Nergy Super C65

獲自Akzo Nobel之氫化動物脂烷基(2-乙基己基)二甲基甲磺鹽銨
(Arquad HTL8-MS)

三氟甲磺酸膽鹼係根據*Chem. Commun.*, 2011,47, 6401-6403製備。

糖酸膽鹼及乙醯胺基磺酸膽鹼係根據*J. Phys. Chem. B* 2007, 111,
19, 5254-5263製備。

實例1及比較實例1-5

離子液體於具有不同官能度之壓敏黏合劑中之阻抗

實例1

【0076】 將2 g Loctite Duro-TAK 222A (固體含量：41%)及0.091 g 苯甲酸1-乙基-3-甲基咪唑鎊在調節混合器中在2000 rpm下混合3分鐘。

比較實例3

【0077】 將2 g Loctite Duro-TAK 1053 (固體含量：48%)及0.108 g 苯甲酸1-乙基-3-甲基咪唑鎊在調節混合器中在2000 rpm下混合3分鐘。

比較實例5

【0078】 將2 g Loctite Duro-TAK 387-2516 (固體含量：42%)及

0.094 g 苯甲酸1-乙基-3-甲基咪唑鎊在調節混合器中在2000 rpm下混合3分鐘。

【0079】將混合物塗佈至離型襯墊上且在室溫下乾燥30分鐘，產生厚度為20 μm 之PSA膜。隨後，將塗膜取樣(drawdown)在120°C下固化3分鐘且用另一離型襯墊覆蓋。表2列出用於混合物之(甲基)丙烯酸酯樹脂及離子液體、(甲基)丙烯酸酯樹脂之OH-官能度(以(甲基)丙烯酸酯樹脂之總重量計之OH-官能性(甲基)丙烯酸酯單體的量)及離子液體之量(乾PSA膜之重量%)。

表2：苯甲酸1-乙基-3-甲基咪唑鎊(苯甲酸EMIM) PSA樣品

	(甲基)丙烯酸酯樹脂	OH-官能度 (重量%)	離子液體	離子液體量 (重量%)
比較實例1	DURO-TAK 222A	>20	-	-
實例1			苯甲酸EMIM	10
比較實例2	DURO-TAK 1053	<10	-	-
比較實例3			苯甲酸EMIM	10
比較實例4	DURO-TAK 387- 2516	<10	-	-
比較實例5			苯甲酸EMIM	10

【0080】對於阻抗量測(圖1)，將乾PSA膜轉移至鋁(Al)箔上。切割兩片PSA-Al膜且黏在一起以形成具有0.25 cm^2 面積及40 μm PSA厚度之Al-PSA-Al電容器。用獲自Metrohm Autolab之恆電位器在 9×10^5 至0.1 Hz之頻率範圍內量測阻抗。圖1展示高程度的OH官能化產生較低阻抗，尤其與離子液體組合。

實例2-15及比較實例6

具有高OH官能度之壓敏黏合劑中之離子液體的比較

【0081】將5 g Loctite Duro-TAK 222A (固體含量：41%)及0.228 g各種離子液體在調節混合器中在2000 rpm下混合3分鐘。

【0082】 將混合物(表3)塗佈至離型襯墊上且在室溫下乾燥30分鐘，產生厚度為20-30 μm 之PSA膜。隨後，將塗膜取樣在120°C下固化3分鐘且用另一離型襯墊覆蓋。

表3：伴以各種離子液體之DURO-TAK 222A

	(甲基)丙烯酸酯樹脂	離子液體	離子液體量 (重量%)
比較實例1	DURO-TAK 222A	-	-
實例2	DURO-TAK 222A	四氟硼酸EMIM	10
實例3	DURO-TAK 222A	甲磺酸EMIM	10
實例4	DURO-TAK 222A	氯化EMIM	10
實例5	DURO-TAK 222A	三氟甲磺酸EMIM	10
實例6	DURO-TAK 222A	三氟甲磺酸膽鹼	10
實例7	DURO-TAK 222A	乙酸EMIM	10
實例8	DURO-TAK 222A	乙酸膽鹼	10
實例9	DURO-TAK 222A	磷酸二乙酯EMIM	10
實例10	DURO-TAK 222A	AMIM雙(三氟甲磺醯基)醯亞胺	10
實例11	DURO-TAK 222A	硫酸乙酯EMIM	10
實例12	DURO-TAK 222A	硫氰酸EMIM	10
實例13	DURO-TAK 222A	二氰胺EMIM	10
實例14	DURO-TAK 222A	糖酸膽鹼	10
實例15	DURO-TAK 222A	乙醯胺基磺酸膽鹼	10
比較實例6	DURO-TAK 222A	氫化動物脂烷基(2-乙基己基)二甲基甲磺醯銨	10

阻抗量測：

【0083】 對於阻抗量測(圖2)，將乾PSA膜轉移至Al箔上。切割兩片PSA-Al膜且黏在一起以形成具有0.25 cm^2 面積及40-60 μm PSA厚度之Al-PSA-Al電容器。用獲自Metrohm Autolab之恆電位器在 9×10^5 至0.1 Hz之頻率範圍內量測阻抗。

【0084】 圖2說明將離子液體添加至OH官能化壓敏黏合劑會顯著降低阻抗。在曲線中可見之平穩段對應於黏合劑之體電阻且藉由離子液體移至較低值。對阻抗降低具有最大影響之離子液體為二氰胺EMIM、硫氰酸EMIM及三氟甲磺酸EMIM。

皮膚相容性研究：

【0085】 使用OS-REp模型(Open Source Reconstructed Epidermis)在活體外皮膚刺激測試中量測壓敏黏合劑組合物之皮膚相容性。將25 μ L 活性壓敏黏合劑組合物施加至表皮模型。在培育42小時及與MTT (200 μ l, 1 mg/ml MTT (3-(4,5-二甲基噻唑-2-基)-2,5-二苯基溴化四唑鎘))一起培育3小時之後，進行甲臆提取且量測570-590 nm處之光學密度。藉由光學密度計算細胞之相對活力。

【0086】 皮膚刺激測試為根據OECD TG 439之OS-REp測試之修改版本，OECD TG 439為鑑別刺激性純物質及鹽之方案。

【0087】 潛在刺激物與皮膚模型之通常接觸時間為35分鐘。隨後，將洗掉待測試之物質且開始42小時之培育時間。對於細胞之相對活力，>50%之物質可被視為非刺激性的。

【0088】 由於測試了無法被洗掉的壓敏黏合劑，接觸時間顯著更長(42小時替代35分鐘)，表明本發明測試條件更苛刻。表4說明結果，其展示傳導性PSA具有極好皮膚相容性。相比於根據本發明之黏合劑，含有四級銨鹽而非離子液體之比較實例6展示增加之刺激潛能。

表4：活體外皮膚刺激結果概述

	活力(%，根據表皮測試)
比較實例1	86 \pm 4
實例1	78 \pm 4
實例8	84 \pm 8
實例11	63 \pm 8
實例12	95 \pm 18
實例13	80 \pm 10
比較實例6	20 \pm 8

實例7、16及17

ECG 信號監測

【0089】對攜帶型MedX5 ECG裝置進行ECG量測，該裝置可用於所有類型之標準電極。經30秒之時段記錄ECG譜且可用MedX5提供之軟體Heartscan 2.0查看。

【0090】為了製備乾電極，使用商業Henkel銀墨Loctite ECI 1010 E&C印刷銀電極且用根據本發明之離子傳導性PSA層壓。圖3a說明用於ECG量測之電極組。電極用PSA層壓，該PSA出於更好的可見性而用離子液體(根據本發明之黏合劑)及碳黑填充。

【0091】記錄用不同濃度之乙酸EMIM填充之PSA的ECG譜(表5)。

表5：用於ECG信號監測之樣品

	(甲基)丙烯酸酯樹脂	離子液體	離子液體量 (重量%)	電極設置(材料； 表面積)
實例16	DURO-TAK 222A	乙酸EMIM	5	Ag；2.84 cm ²
實例7			10	
實例17			15	

【0092】圖3b說明記錄之ECG譜。使用置於人類前臂內側處之三個電極(工作電極、相對電極及參考電極)(兩個在左臂上，一個在右臂上)記錄ECG信號，且量測左臂與右臂之間的導聯。在手臂靜止(無移動)及連續上下移動手臂(移動)時進行監測。在所有情況下獲得良好ECG信號，尤其對於較高離子液體濃度而言。

實例18-19及比較實例7

PSA: PEG400 摻合物中離子傳導性的增強

比較實例7

【0093】將4.15 g Loctite Duro-TAK 222A (固體含量：41%)、0.3 g PEG400 (Sigma Aldrich)及0.29 g 乙酸乙酯在調節混合器中在2000 rpm 下混合3分鐘。

實例18

【0094】 將4.88 g Loctite Duro-TAK 222A(固體含量：41%)及0.1 g 硫酸乙酯1-乙基-3-甲基咪唑鎊在調節混合器中在2000 rpm下混合3分鐘。

實例19

【0095】 將4.15 g Loctite Duro-TAK 222A (固體含量：41%)、0.3 g PEG400、0.1 g 硫酸乙酯1-乙基-3-甲基咪唑鎊及0.43 g 乙酸乙酯在調節混合器中在2000 rpm下混合3分鐘。

【0096】 將混合物(表6)塗佈至離型襯墊上且在室溫下乾燥30分鐘，產生厚度為20 μm 之PSA膜。隨後，將塗膜取樣在120°C下固化3分鐘且用另一離型襯墊覆蓋。

表6：具有或不具有硫酸乙酯EMIM之DURO-TAK 222A PEG400摻合物

	(甲基)丙烯酸酯樹脂	PEG400 (乾PSA膜之重量%)	離子液體	離子液體量(重量%)
比較實例1	DURO-TAK 222A	-	-	-
比較實例7	DURO-TAK 222A	15	-	-
實例18	DURO-TAK 222A	-	硫酸乙酯 EMIM	5
實例19	DURO-TAK 222A	15	硫酸乙酯 EMIM	5

【0097】 對於阻抗量測(圖4)，將乾PSA膜轉移至Al箔上。切割兩片PSA-Al膜且黏在一起以形成具有0.25 cm^2 面積及40 μm PSA厚度之Al-PSA-Al電容器。用獲自Metrohm Autolab之恆電位器在 9×10^5 至0.1 Hz之頻率範圍內量測阻抗。

實例20-22

將碳黑添加至離子傳導性壓敏黏合劑

實例20

【0098】將9.79 g Loctite Duro-TAK 222A (固體含量：41%)及0.22 g乙酸膽鹼在調節混合器中在2000 rpm下混合3分鐘。

實例21

【0099】使用玻璃珠在快速混合器中混合0.45 g 碳黑(C-Nergy Super C65)及1.36 g乙酸丁酯(3分鐘，3500 rpm)，以製備漿料。在每次添加0.5 g之步驟中添加9.32 g Loctite Duro-Tak 222A。在各PSA添加步驟之後，將組合物在快速混合器中在3500 rpm下混合1分鐘。隨後，添加0.23 g乙酸膽鹼且在調節混合器中在2000 rpm下混合3分鐘。

實例22

【0100】使用玻璃珠在快速混合器中混合0.70 g 碳黑(C-Nergy Super C65)及2.5 g乙酸丁酯(3分鐘，3500 rpm)，以製備漿料。在每次添加0.5 g之步驟中添加9.07 g Loctite Duro-Tak 222A。在各PSA添加步驟之後，將組合物在快速混合器中在3500 rpm下混合1分鐘。隨後，添加0.23 g乙酸膽鹼且在調節混合器中在2000 rpm下混合3分鐘。

【0101】將混合物(表7)塗佈至離型襯墊上且在室溫下乾燥30分鐘，產生厚度為20 μm之PSA膜。隨後，將塗膜取樣在120°C下固化3分鐘且用另一離型襯墊覆蓋。

表7 含有乙酸膽鹼及不同量之碳黑的DURO-TAK 222A

	(甲基)丙烯酸 酯樹脂	離子液體	離子液體量 (重量%)	碳黑量(乾PSA 膜之重量%)
比較實例1	DURO-TAK 222A	-	-	-
實例20	DURO-TAK 222A	乙酸膽鹼	5	-
實例21	DURO-TAK 222A	乙酸膽鹼	5	10
實例22	DURO-TAK 222A	乙酸膽鹼	5	15

【0102】對於阻抗量測(圖5)，將乾PSA膜轉移至Al箔上。切割兩片PSA-Al膜且黏在一起以形成具有 0.25 cm^2 面積及 $40\text{ }\mu\text{m}$ PSA厚度之Al-PSA-Al電容器。用獲自Metrohm Autolab之恆電位器在 9×10^5 至 0.1 Hz 之頻率範圍內量測阻抗。

實例23

具有離子液體組合之乾電極黏合劑之配對電極的阻抗

【0103】將 5 g LOCTITE Duro-TAK 222A(固體含量： 41%)及 0.171 g 三氟甲烷磺酸1-乙基-3-甲基咪唑鎊及 0.057 g 氯化1-乙基-3-甲基咪唑鎊在調節混合器中在 2000 rpm 下混合3分鐘。將混合物塗佈至離型襯墊上且在室溫下乾燥30分鐘，產生厚度為 $20\text{ }\mu\text{m}$ 之PSA膜。隨後，將塗膜取樣在 120°C 下固化3分鐘且用另一離型襯墊覆蓋。

【0104】對於阻抗量測，藉由將乾PSA膜轉移至塗佈有Ag/AgCl層(獲自Henkel之Loctite EDAG 6038E SS)之TPU基板來製備電極。切割具有 3.1 cm^2 面積之電極且彼此連接，以形成具有 3.1 cm^2 面積及 $40\text{ }\mu\text{m}$ PSA厚度之Ag/AgCl-PSA-Ag/AgCl電容器。用鱷魚夾連接電極對且用獲自Metrohm Autolab之恆電位器在 9×10^5 至 0.01 Hz 之頻率範圍內量測電容器之阻抗。

【0105】圖6說明具有根據實例23(實線)及實例5(點線)之乾黏合劑組合物之電極的阻抗譜。具有在黏合劑中不含氯化物之Ag/AgCl傳導層之電極的阻抗譜展示與存在阻塞電極對應的低頻率下之強電容增加，且因此展示高DC電阻，因為(幾乎)未發生跨電極/黏合劑界面之電荷轉移。相比之下，具有包含氯化物之黏合劑的電極允許Ag/AgCl傳導層與電極黏合劑之間的反應，產生電荷轉移(在適合之低電壓下)且因此產生低DC電阻，

其使得能夠在去顫過載恢復(DOR)實驗期間快速放電。

【0106】對於實例4、5及13測試去顫過載恢復。在此測試中，量測不同電極黏合劑組合物(實例5 (圓形)、實例13 (方形)、實例4 (三角形))在放電期間隨時間推移之電壓。圖7展示在放電期間跨電極之電壓。對於實例5及13，電壓始終高於100mV，表明未發生足夠放電(表7之條件2缺失_在7秒之後<100mV)，而樣品4容易地符合測試要求。

【0107】圖8說明對於具有根據實例5之電極黏合劑的電極對，根據ANSI/AAMI EC12:2000/(R)2015之三個連續去顫過載恢復放電曲線。具有根據實例5之電極黏合劑之電極對的測試條件概述說明於下表8中。不滿足四個要求中之三個，展示需要允許更快放電之黏合劑。

表8

			實例5		
時間	要求(mV)		第1次放電	第2次放電	第3次放電
2秒	<	2000	759	765	765
7秒	<	100	718	730	734
7-17秒	< Δ	11	39	29	25
17-27秒	< Δ	11	25	21	16

【0108】圖9說明對於具有根據實例23之電極黏合劑的電極對，根據ANSI/AAMI EC12:2000/(R)2015之三個連續去顫過載恢復放電曲線。具有根據實例23之電極黏合劑之電極對的測試條件概述說明於下表9中。

表9

			實例23		
時間	要求(mV)		第1次放電	第2次放電	第3次放電
2秒	<	2000	26.9	25.9	20.2
7秒	<	100	15.8	15.4	14.6
7-17秒	< Δ	11	5.7	4.6	4
17-27秒	< Δ	11	2.3	2.1	1.7

【0109】此處，滿足所有要求，展示添加使得能夠進行DC傳導之

具有氯離子作為陰離子之離子液體之益處。

【0110】 ANSI/AAMI EC12:2000/(R)2015描述電極之使用時間限於樣品(經由黏合劑彼此連接之兩個電極)在 <100 mV之所得電壓下可經 200 nA電流偏壓之時間。不應量測 >100 mV之DC偏移。此值與電流偏壓曲線之起點相關。

【0111】 圖10說明對於具有根據本發明之不同黏合劑組合物的電極樣品，在電流偏壓期間之電壓增加：實例23-實線及實例5-點線。

【0112】 實例23對應於具有DC傳導性之樣品。電壓由歐姆定律(Ohm's law)定義。此電壓可長期維持。由於DC傳導性對應於界面處之可逆電化學反應，電壓將保持相對恆定，只要在界面處可獲得反應物。實例5不提供跨界面之顯著DC傳導性。因此，電壓對應於界面電容充電且因此隨時間顯著增加。

【0113】 提供DC傳導性之電極亦展示較長電流偏壓容限及較低DC偏移值。較佳地，電極黏合劑展示DC傳導性以及低阻抗。

【0114】 圖11說明對於具有根據本發明之電極黏合劑之電極樣品(實例23)，在長期電流偏壓(200 nA)期間之電壓增加。

【0115】 由於長量測時間，此處未連續記錄電壓，而是僅量測一天之某些時間(在週末間斷)。樣品F、E、C、G對應於在串聯時已經電流偏壓之標稱相同樣品。因此，如所預期，結果極類似。初始變化(DC偏移)在兩天後消失，產生穩定平穩期。在約5天後，電壓開始升高。然而，電壓仍遠低於 100 mV之要求限度。因此，對於8天量測，此測試明顯符合(且將最可能亦在較長時間內符合)。

【0116】 圖12說明對於具有電極黏合劑之電極樣品(實例23)，在長

期電流偏壓(2 μA)期間之電壓增加。

【0117】 2 μA 對應於規範要求之電流的十倍。此測試旨在定性加速測試。結果與40-45小時出現之增加大致對應。在較高電流下進行因子分解(且認為相關值為飛行電荷)，其將對應於正常測試中之6天(其中5天為可見的)。此處之電壓由於歐姆定律而較高(且因此可隱藏增加之開端)。

【0118】 ANSI/AAMI EC12:2000/(R)2015要求小於150 μV 之峰間電壓(在1分鐘穩定化之後)以確保低雜訊ECG信號。經由ECG系統記錄的具有電極黏合劑之電極樣品之AC信號通常具有低於10 μV 之峰間電壓。

【0119】 圖13說明具有根據本發明之電極黏合劑之電極樣品(實例23)的偏移不穩定性及內部雜訊量測結果。

【0120】 量測值對應於藉由互連電極而非人體之ECG量測值。總頻寬為約8 μV 且因此比規範中要求的(150 μV)低得多。

實例24

含有具有不同程度之OH官能度之乾電極黏合劑之配對電極的阻抗

【0121】 具有包含10重量% EMIM-鹽及包含不同量的包含OH-基之(甲基)丙烯酸酯單體之(甲基)丙烯酸酯樹脂的根據本發明之乾電極黏合劑之配對電極的阻抗；測試根據本發明之以下量：15.0重量%、18.8重量%、22.5重量%、30.0重量%及50.0重量%且相比於量0重量%及7.5重量%。阻抗值標準化至30 μm 之膜厚度及4 cm^2 之面積。測試結果說明於圖14中。

【0122】 圖14展示上文所述之黏合劑的阻抗曲線。一般趨勢為對於較高OH含量，阻抗曲線移至較低值，表明對ECG應用之適合性提高。

【發明申請專利範圍】

【請求項1】

一種離子傳導性壓敏黏合劑組合物，其包含

a) (甲基)丙烯酸酯樹脂，其包含按該(甲基)丙烯酸酯樹脂之總重量計至少10重量%的包含OH-基之(甲基)丙烯酸酯單體；及

b)離子液體。

【請求項2】

如請求項1之離子傳導性壓敏黏合劑組合物，其中該離子液體選自由以下組成之群：乙酸咪唑鎊、磺酸咪唑鎊、氯化咪唑鎊、硫酸咪唑鎊、磷酸咪唑鎊、硫氰酸咪唑鎊、二氰胺咪唑鎊、苯甲酸咪唑鎊、三氟甲磺酸咪唑鎊、三氟甲磺酸膽鹼、糖酸膽鹼(choline saccharinate)、胺磺酸膽鹼、乙酸吡錠、磺酸吡錠、氯化吡錠、硫酸吡錠、磷酸吡錠、硫氰酸吡錠、二氰胺吡錠、苯甲酸吡錠、三氟甲磺酸吡錠、乙酸吡咯啉鎊、磺酸吡咯啉鎊、氯化吡咯啉鎊、硫酸吡咯啉鎊、磷酸吡咯啉鎊、硫氰酸吡咯啉鎊、二氰胺吡咯啉鎊、苯甲酸吡咯啉鎊、三氟甲磺酸吡咯啉鎊、乙酸鎂、磺酸鎂、氯化鎂、硫酸鎂、磷酸鎂、硫氰酸鎂、二氰胺鎂、苯甲酸鎂、三氟甲磺酸鎂、乙酸銨、磺酸銨、氯化銨、硫酸銨、磷酸銨、硫氰酸銨、二氰胺銨、苯甲酸銨、三氟甲磺酸銨及其混合物。

【請求項3】

如請求項1之離子傳導性壓敏黏合劑組合物，其中該(甲基)丙烯酸酯樹脂中包含OH-基之該(甲基)丙烯酸酯單體之含量為該(甲基)丙烯酸酯樹脂之總重量的至少15重量%但不超過65%。

【請求項4】

如請求項1之離子傳導性壓敏黏合劑組合物，其中該(甲基)丙烯酸酯樹脂中包含OH-基之該(甲基)丙烯酸酯單體之含量為該(甲基)丙烯酸酯樹脂之總重量的至少20%但不超過60%。

【請求項5】

如請求項1之離子傳導性壓敏黏合劑組合物，其中該(甲基)丙烯酸酯樹脂中包含OH-基之該(甲基)丙烯酸酯單體之含量為該(甲基)丙烯酸酯樹脂之總重量的至少25%但不超過55%。

【請求項6】

如請求項1之離子傳導性壓敏黏合劑組合物，其中該(甲基)丙烯酸酯樹脂中包含OH-基之該(甲基)丙烯酸酯單體之含量為該(甲基)丙烯酸酯樹脂之總重量的至少30%但不超過50%。

【請求項7】

如請求項1至6中任一項之離子傳導性壓敏黏合劑組合物，其中該(甲基)丙烯酸酯樹脂由選自由以下組成之群的單體形成：丙烯酸羥乙酯、丙烯酸羥丙酯、丙烯酸羥丁酯、甲基丙烯酸甲酯、丙烯酸丁酯、丙烯酸乙基己酯、丙烯酸、(甲基)丙烯酸C1-C18烷基酯、(甲基)丙烯酸醯胺、乙酸乙烯酯、N-乙基己內醯胺、丙烯腈、乙基醚、(甲基)丙烯酸苯甲酯、(甲基)丙烯酸環己酯、(甲基)丙烯酸縮水甘油酯及其混合物。

【請求項8】

如請求項1至6中任一項之離子傳導性壓敏黏合劑組合物，其中該(甲基)丙烯酸酯樹脂由選自由以下組成之群的單體形成：丙烯酸羥乙酯、(甲基)丙烯酸甲酯、丙烯酸丁酯、丙烯酸乙基己酯及其混合物。

【請求項9】

如請求項1至6中任一項之離子傳導性壓敏黏合劑組合物，其中該(甲基)丙烯酸酯樹脂以按該組合物之總重量計的5至80重量%存在。

【請求項10】

如請求項1至6中任一項之離子傳導性壓敏黏合劑組合物，其中該(甲基)丙烯酸酯樹脂以按該組合物之總重量計的15至75重量%存在。

【請求項11】

如請求項1至6中任一項之離子傳導性壓敏黏合劑組合物，其中該(甲基)丙烯酸酯樹脂以按該組合物之總重量計的30至70重量%存在。

【請求項12】

如請求項1至6中任一項之離子傳導性壓敏黏合劑組合物，其中該離子液體選自由以下組成之群：乙酸1-乙基-3-甲基咪唑鎊、甲烷磺酸1-乙基-3-甲基咪唑鎊、三氟甲烷磺酸1-乙基-3-甲基咪唑鎊、氯化1-乙基-3-甲基咪唑鎊、硫酸乙酯1-乙基-3-甲基咪唑鎊、磷酸二乙酯1-乙基-3-甲基咪唑鎊、硫氰酸1-乙基-3-甲基咪唑鎊、二氰胺1-乙基-3-甲基咪唑鎊、苯甲酸1-乙基-3-甲基咪唑鎊、三氟甲烷磺酸膽鹼、糖酸膽鹼、乙醯胺基磺酸膽鹼、*N*-環己基胺基磺酸膽鹼、硫酸甲酯參(2-羥乙基)甲基銨、四氟硼酸1-乙基-3-甲基咪唑鎊、1-烯丙基-3-乙基咪唑鎊雙(三氟甲磺醯基)醯亞胺、乙酸膽鹼及其混合物。

【請求項13】

如請求項1至6中任一項之離子傳導性壓敏黏合劑組合物，其中該離子液體選自由以下組成之群：苯甲酸1-乙基-3-甲基咪唑鎊、四氟硼酸1-乙基-3-甲基咪唑鎊、甲烷磺酸1-乙基-3-甲基咪唑鎊、氯化1-乙基-3-甲基咪

唑鎊、三氟甲烷磺酸1-乙基-3-甲基咪唑鎊、三氟甲烷磺酸膽鹼、乙酸1-乙基-3-甲基咪唑鎊、乙酸膽鹼、磷酸二乙酯1-乙基-3-甲基咪唑鎊、1-烯丙基-3-甲基咪唑鎊雙(三氟甲磺醯基)醯亞胺、硫酸乙酯1-乙基-3-甲基咪唑鎊、硫氰酸1-乙基-3-甲基咪唑鎊、二氰胺1-乙基-3-甲基咪唑鎊、糖酸膽鹼、乙醯胺基磺酸膽鹼及其混合物。

【請求項14】

如請求項1至6中任一項之離子傳導性壓敏黏合劑組合物，其中該離子液體以按該組合物之總重量計的0.1至35重量%存在。

【請求項15】

如請求項1至6中任一項之離子傳導性壓敏黏合劑組合物，其中該離子液體以按該組合物之總重量計的0.5至25重量%存在。

【請求項16】

如請求項1至6中任一項之離子傳導性壓敏黏合劑組合物，其中該離子液體以按該組合物之總重量計的1至15重量%存在。

【請求項17】

如請求項1至6中任一項之離子傳導性壓敏黏合劑組合物，其進一步包含離子傳導性促進劑，其選自氯化膽鹼、酒石酸氫膽鹼、檸檬酸二氫膽鹼、磷酸膽鹼、葡糖酸膽鹼、反丁烯二酸膽鹼、碳酸膽鹼、焦磷酸膽鹼及其混合物。

【請求項18】

如請求項17之離子傳導性壓敏黏合劑組合物，其中該離子傳導性促進劑以按該組合物之總重量計的0.1至35重量%。

【請求項19】

如請求項17之離子傳導性壓敏黏合劑組合物，其中該離子傳導性促進劑以按該組合物之總重量計的0.5至25重量%存在。

【請求項20】

如請求項17之離子傳導性壓敏黏合劑組合物，其中該離子傳導性促進劑以按該組合物之總重量計的1至15重量%存在。

【請求項21】

如請求項1至6中任一項之離子傳導性壓敏黏合劑組合物，其進一步包含導電粒子。

【請求項22】

如請求項1至6中任一項之離子傳導性壓敏黏合劑組合物，其進一步包含導電粒子，其選自由以下組成之群：金屬粒子及金屬奈米粒子、含金屬粒子及奈米粒子、石墨粒子及奈米粒子、碳粒子及奈米粒子、碳奈米線、導電聚合物粒子及奈米粒子及其混合物。

【請求項23】

如請求項1至6中任一項之離子傳導性壓敏黏合劑組合物，其進一步包含導電粒子，其選自由以下組成之群：含銀粒子、銀粒子、銅粒子、含銅粒子、銀奈米線、銅奈米線、石墨粒子、碳粒子及其混合物。

【請求項24】

如請求項1至6中任一項之離子傳導性壓敏黏合劑組合物，其進一步包含導電粒子，其選自石墨粒子、碳粒子及其混合物。

【請求項25】

如請求項1至6中任一項之離子傳導性壓敏黏合劑組合物，其進一步包含聚醚多元醇。

【請求項26】

如請求項25之離子傳導性壓敏黏合劑組合物，其中該聚醚多元醇係選自聚乙二醇、聚丙二醇及聚丁二醇。

【請求項27】

如請求項25之離子傳導性壓敏黏合劑組合物，其中該聚醚多元醇具有300至1000之重均分子量，其中該分子量係藉由凝膠滲透層析法，根據DIN 55672-1:2007-08以THF作為溶離劑來量測。

【請求項28】

如請求項25之離子傳導性壓敏黏合劑組合物，其中該聚醚多元醇具有350至750之重均分子量，其中該分子量係藉由凝膠滲透層析法，根據DIN 55672-1:2007-08以THF作為溶離劑來量測。

【請求項29】

如請求項25之離子傳導性壓敏黏合劑組合物，其中該聚醚多元醇具有380至420之重均分子量，其中該分子量係藉由凝膠滲透層析法，根據DIN 55672-1:2007-08以THF作為溶離劑來量測。

【請求項30】

如請求項1至6中任一項之離子傳導性壓敏黏合劑組合物，其進一步包含選自由以下組成之群的溶劑：水、乙酸乙酯、乙酸丁酯、丁基二乙二醇、2-丁氧基乙醇、乙二醇、二乙二醇、丙二醇、二丙二醇、甲醇、異丙醇、丁醇、二元酯、己烷、庚烷、2,4-戊二酮、甲苯、二甲苯、苯、己烷、庚烷、甲基乙基酮、甲基異丁基酮、二乙醚及其混合物。

【請求項31】

如請求項1至6中任一項之離子傳導性壓敏黏合劑組合物，其進一步

包含選自由以下組成之群的溶劑：乙酸乙酯、乙酸丁酯、乙二醇、丙二醇及其混合物。

【請求項32】

如請求項1至6中任一項之離子傳導性壓敏黏合劑組合物，其中該黏合劑之阻抗值為在1000 Hz下低於1,000,000 Ohm，其中該阻抗係藉由連接兩個各塗佈有25 μm 離子傳導性壓敏黏合劑且接觸面積為0.25 cm^2 之電極來量測。

【請求項33】

如請求項1至6中任一項之離子傳導性壓敏黏合劑組合物，其中該黏合劑之阻抗值為在1000 Hz下低於100,000 Ohm，其中該阻抗係藉由連接兩個各塗佈有25 μm 離子傳導性壓敏黏合劑且接觸面積為0.25 cm^2 之電極來量測。

【請求項34】

如請求項1至6中任一項之離子傳導性壓敏黏合劑組合物，其中該黏合劑之阻抗值為在1000 Hz下低於40,000 Ohm，其中該阻抗係藉由連接兩個各塗佈有25 μm 離子傳導性壓敏黏合劑且接觸面積為0.25 cm^2 之電極來量測。

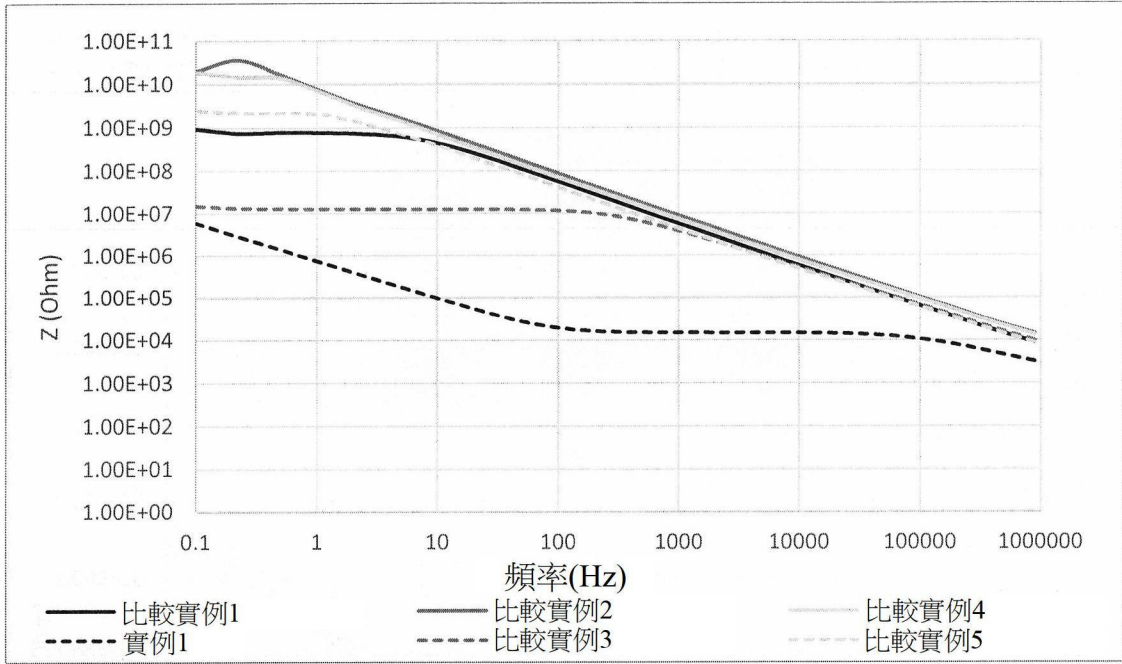
【請求項35】

一種乾膜，其由如請求項1至34中任一項之離子傳導性壓敏黏合劑組合物形成。

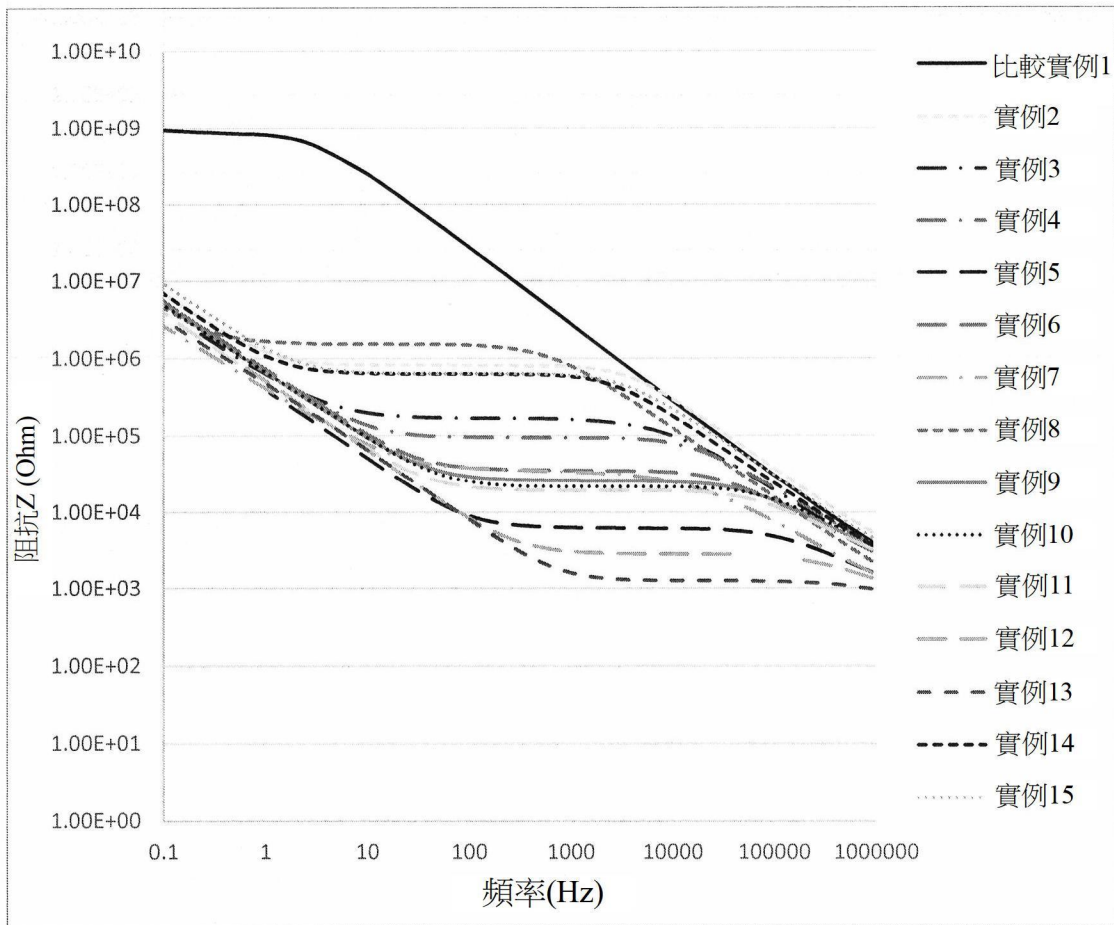
【請求項36】

一種如請求項1至34中任一項之離子傳導性壓敏黏合劑組合物或如請求項35之乾膜之用途，其在皮膚應用中用作接觸介質，作為自皮膚量測生物信號之電極的一部分。

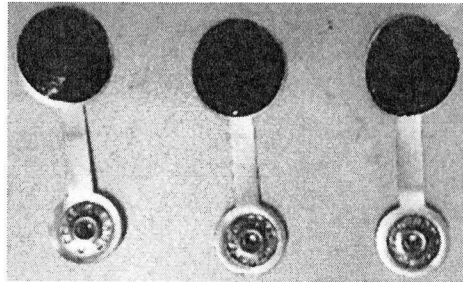
【發明圖式】



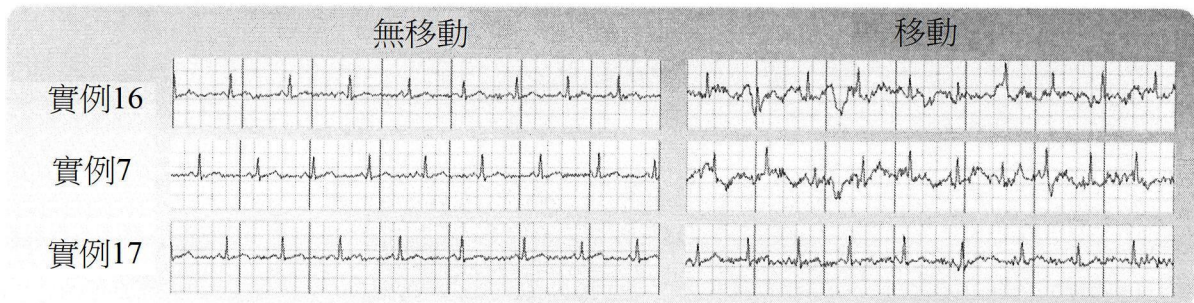
【圖1】



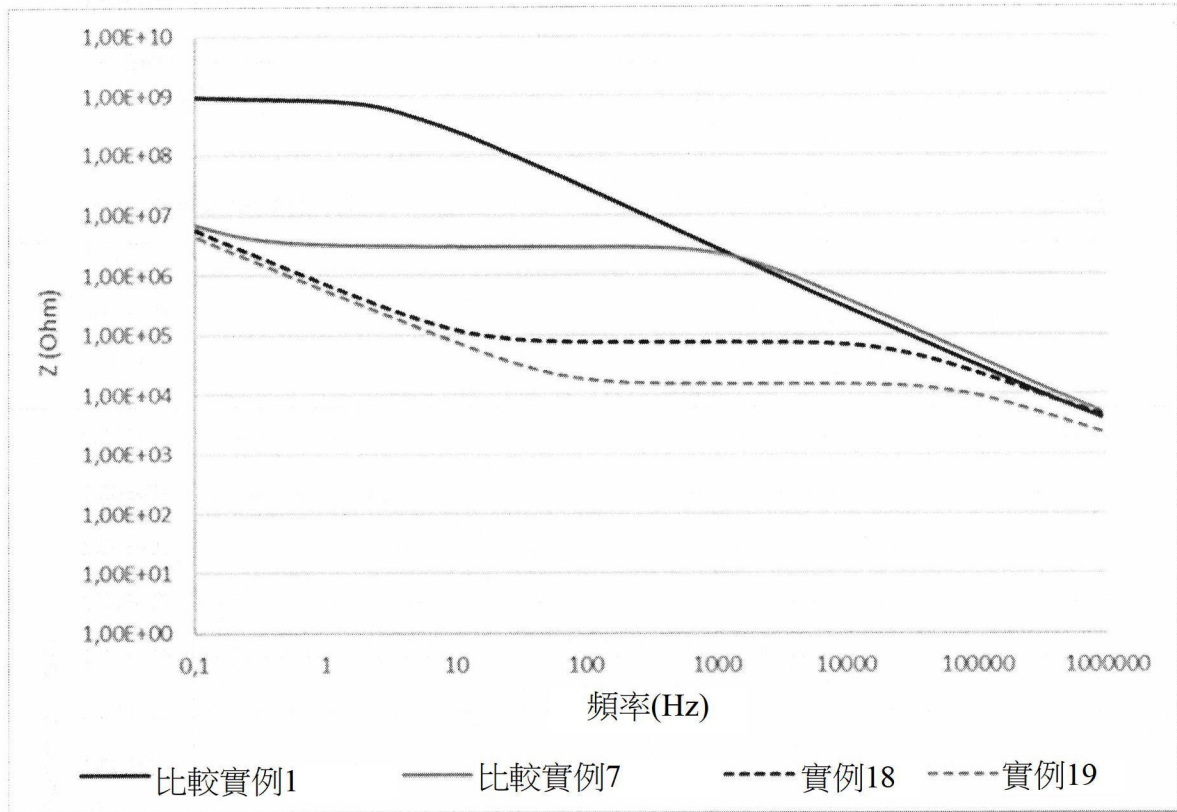
【圖2】



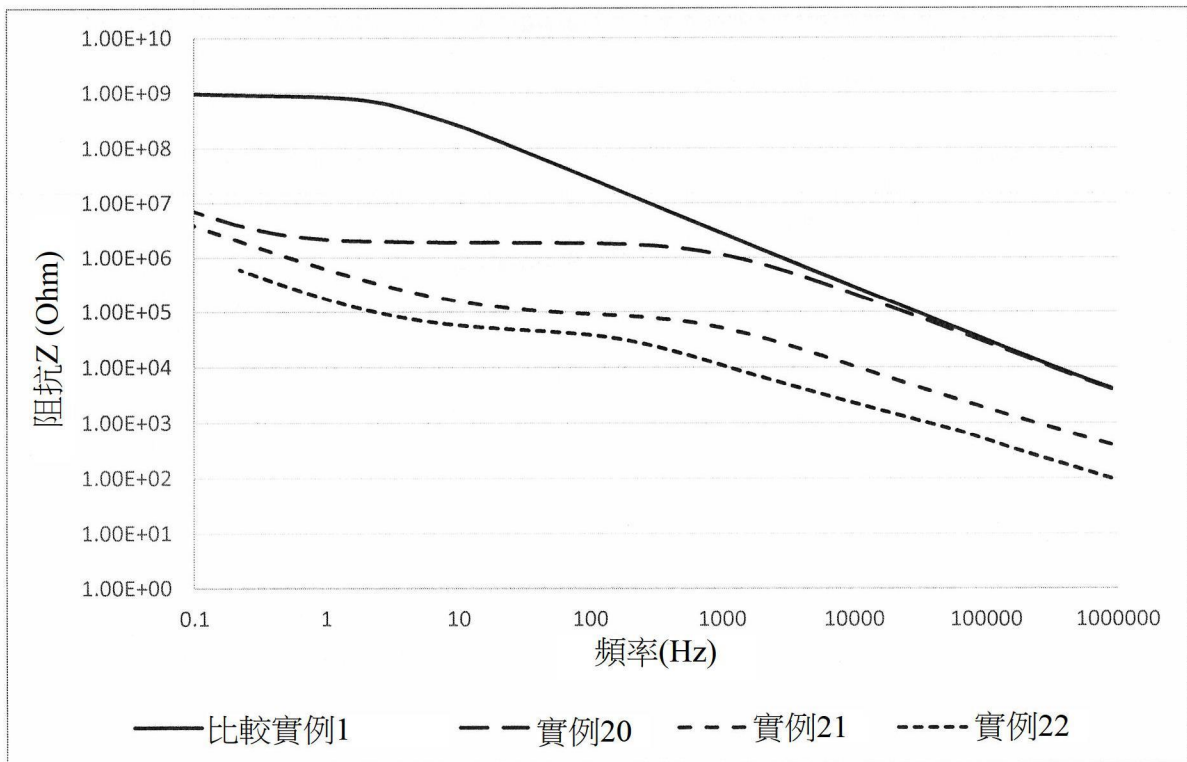
【圖3a】



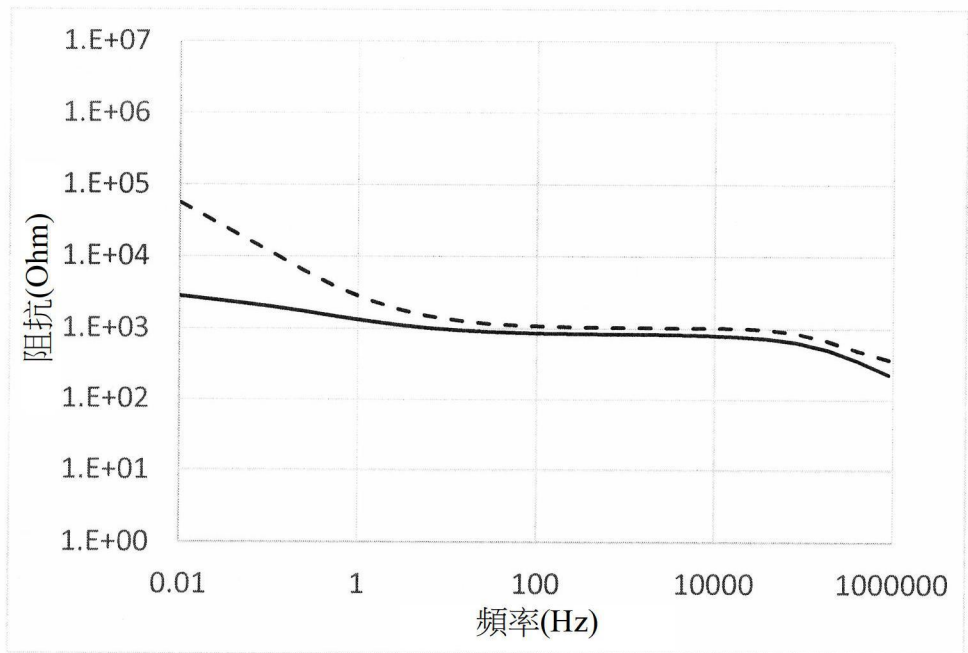
【圖3b】



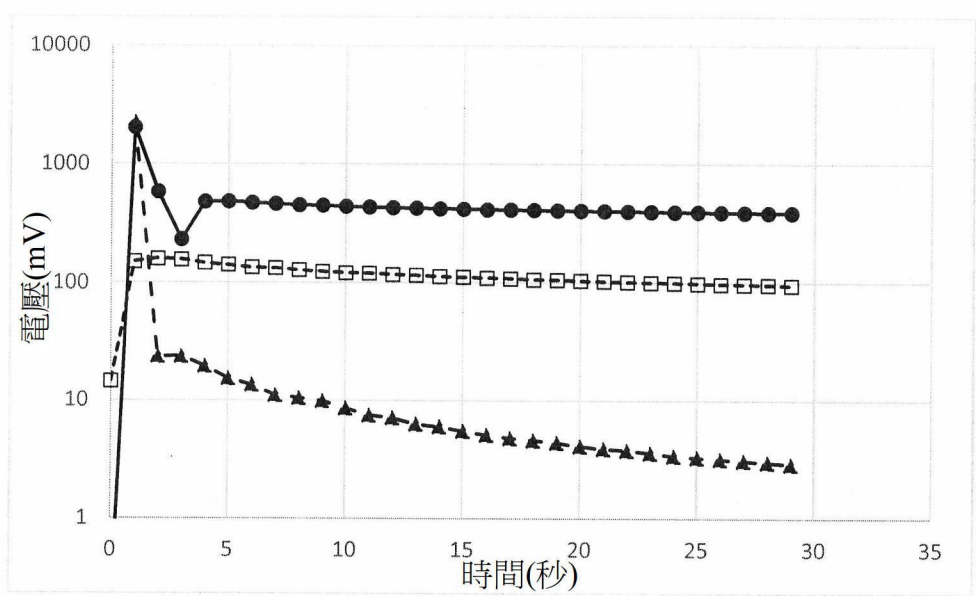
【圖4】



【圖5】

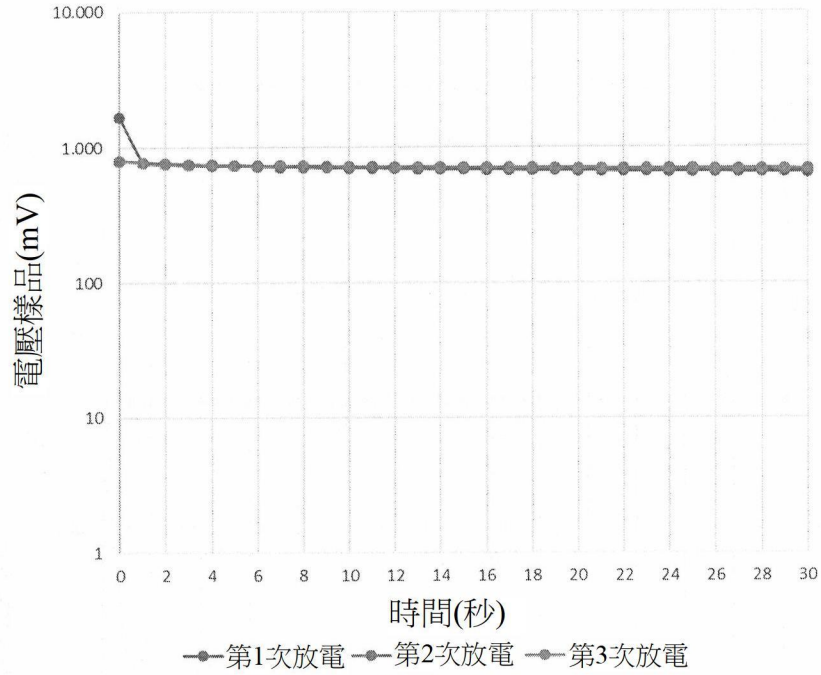


【圖6】



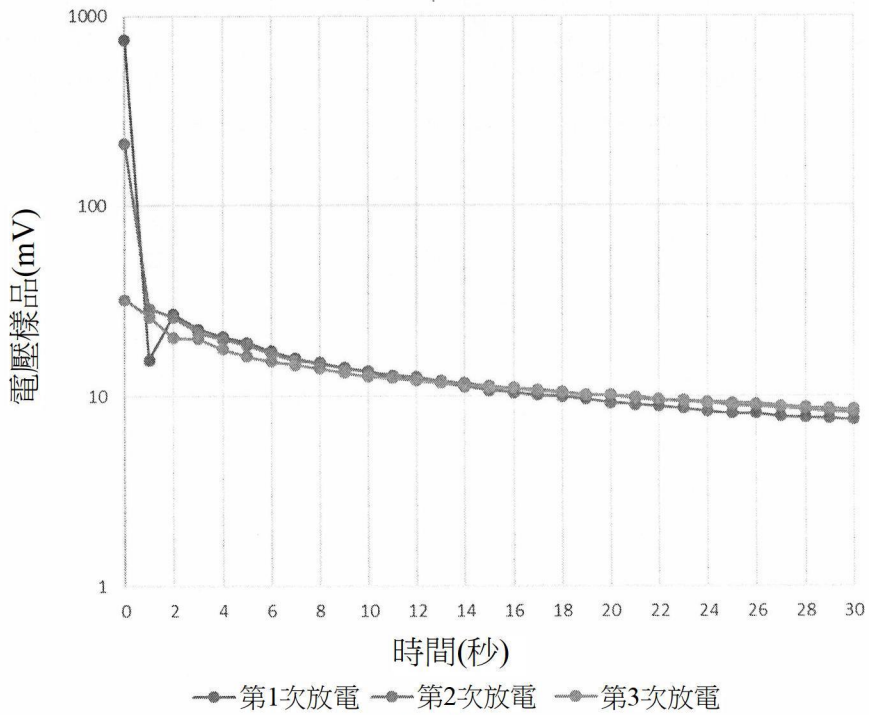
【圖7】

去顫過載恢復

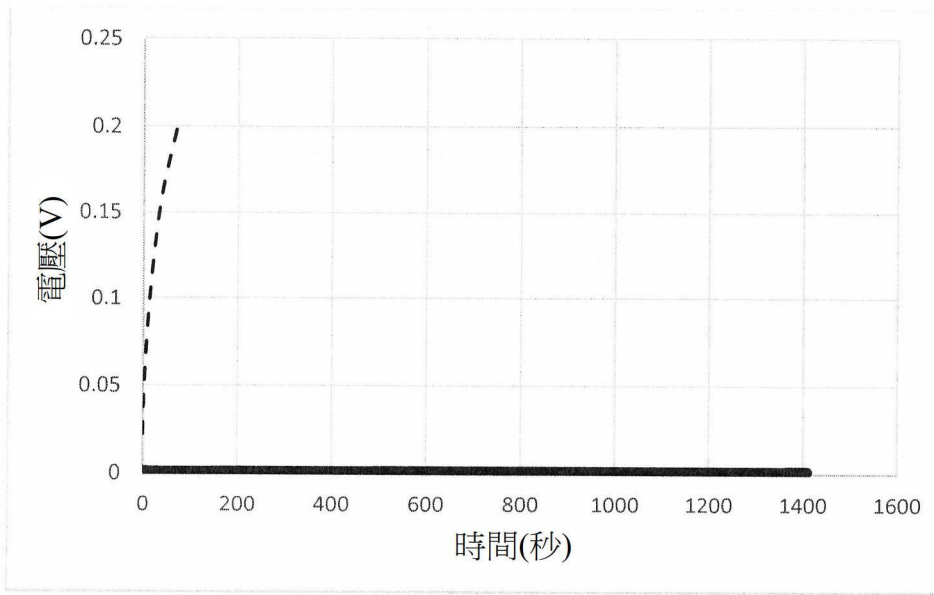


【圖8】

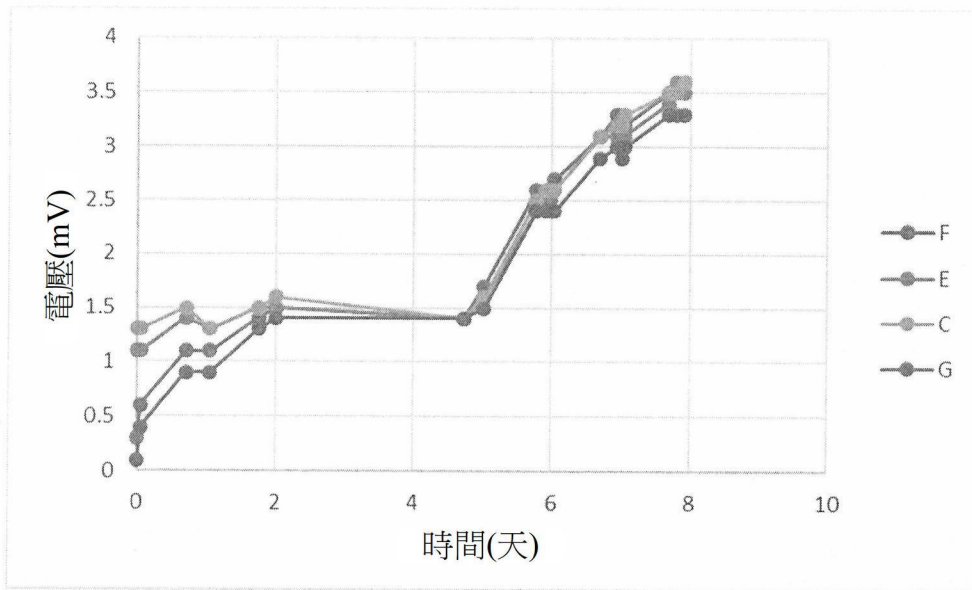
去顫過載恢復



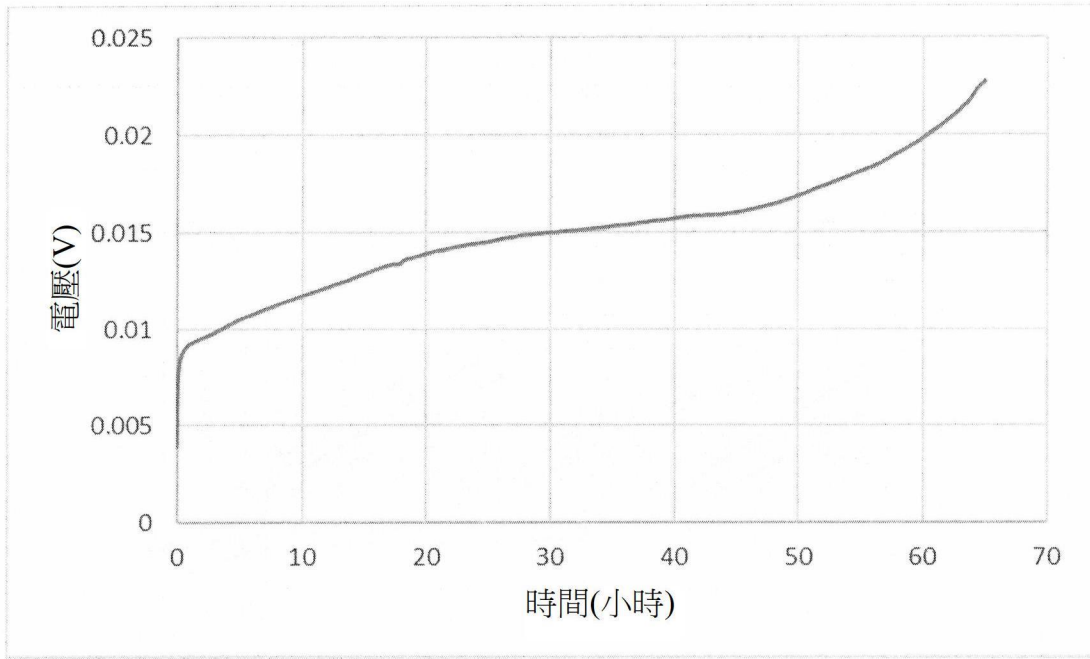
【圖9】



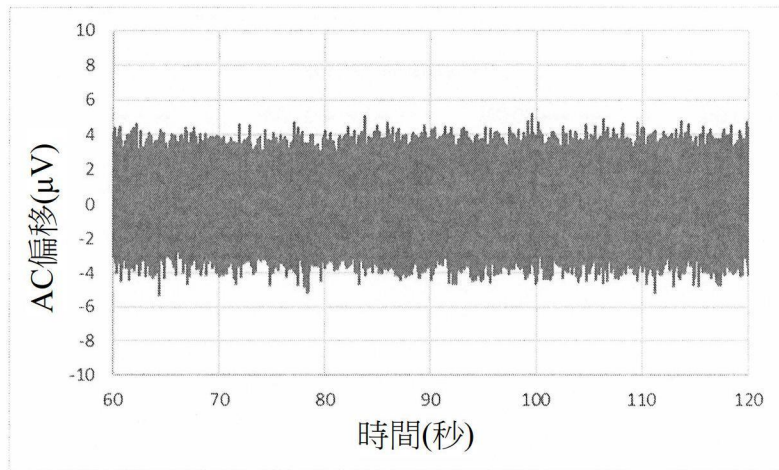
【圖10】



【圖11】

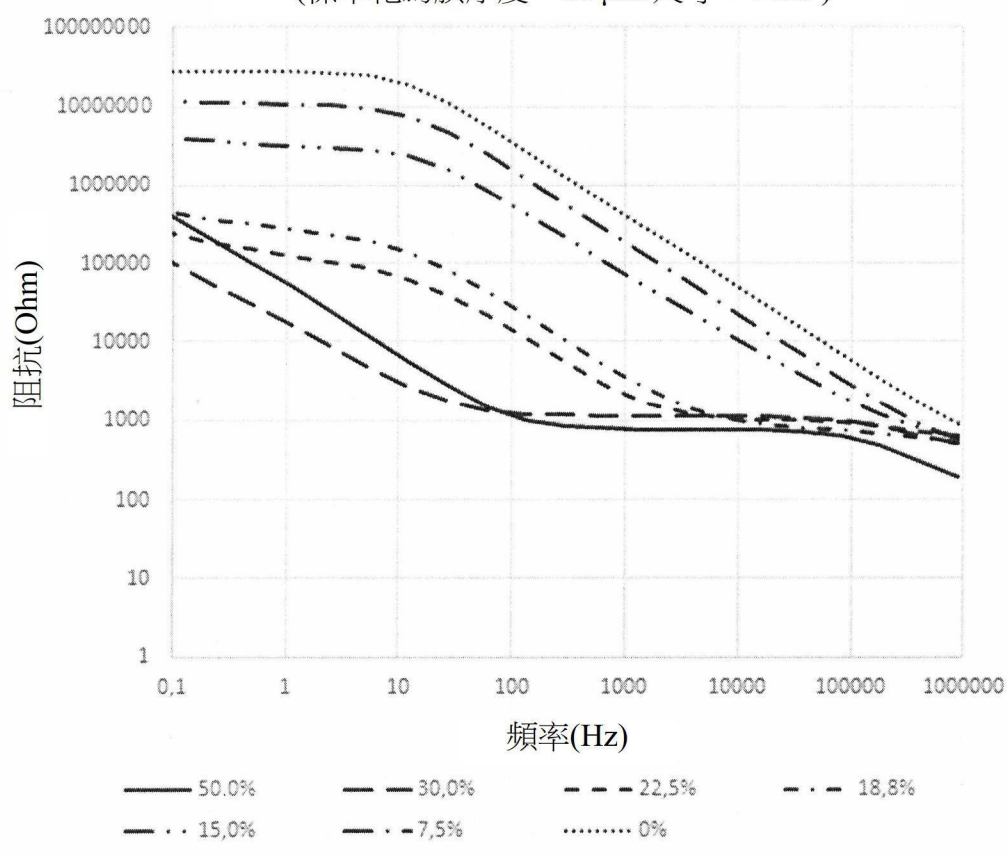


【圖12】



【圖13】

具有不同-OH含量之PSA中之10重量% EMIM-鹽
(標準化為膜厚度：30 μm/尺寸：4 cm²)



【圖14】