



Recent Progress on Ionically Conductive Polymer Electrolyte for Electronic Skin Sensors

Jeong Hui Kim, Jung-Chae Jeong*, and Keun Hyung Lee†

Department of Chemical Engineering, Inha University, 100 Inharo, Michunol-gu, Incheon 22212, Republic of Korea

*Industrial Policy Planning Department, Jeonnam Technopark, 13, Yulchonsandan 4-ro, Haeryong-myeon, Suncheon-si, Jeollanam-do 580234, Republic of Korea

(Received August 1, 2021, Revised August 13, 2021, Accepted August 18, 2021)

Abstract: Electronic skin (or E-skin) is an artificial smart skin composed of one or more than two sensors. E-skins detect external stimuli and convert them into electrical signals. Various types of E-skin sensors exist, including mechanical, physical, and chemical, depending on the detection signals involved. For wearable E-skins with superior sensitivity and reliability, developing conductors that possess both good elasticity and sensitivity is essential. Typical electrical conductors used in these sensors show very high sensitivity, but they have drawbacks such as non-linearity, irreversibility, and a narrow sensing range. To address these issues, stretchable and lightweight ionic conductors have been actively used in E-skin applications. This study summarizes the recent progress on various types of ionic conductors and ionic-conductor-based E-skin sensors.

Keywords: Electronic skin, E-skin, ionic conductor, hydrogel, organogel, ion gel

Introduction

Electronic skin 또는 E-skin 이라고 불리는 전자피부는 하나의 센서나 두 개 이상의 센서로 구성된 인공 스마트 피부이다. E-skin은 인간 피부의 신축성, 기계적 강도, 촉각/온도 감지 능력, 자가치유 등의 일부 특징을 모방하여 로봇에 감각을 부여하거나 인간의 피부를 대신하여 신호를 감지하는 역할을 할 수 있다.¹⁻⁴ 이러한 전자 피부는 주변의 자극 변화를 감지하여 전기적 신호로 변환하며, E-skin에 적용된 센서의 종류에는 압력, 인장, 비틀림, 굽힘 등의 기계적 자극을 인지하는 역학 센서와 가스, 화학물질 등의 화학적 자극을 감지하는 화학 센서 등이 있다.⁵⁻⁸ 역학 센서나 화학 센서의 성능은 선형성, 민감성, 반응 속도, 내구성, 감지 범위 등의 척도로 평가되고, 이 성능을 향상시키기 위하여 다양한 소재 및 소자의 개발이 진행되고 있다. 특히, E-skin을 사람의 몸이나 사물에 부착하여 응용하기 위해서는 투명하고 외부자극에 대해 민감하게 반응하면서 신축성이 좋은 있는 전도체에 대한 연구가 필수적이며 현재 관련 연구가 활발하게 진행되고 있다(Figure 1).⁹⁻¹²

E-skin 센서에 쓰이는 전기 전도체에는 대표적으로 탄소나노튜브, 그래핀, 금속나노와이어 등이 있다.¹³⁻¹⁵ 하지만 전기 전도체 기반 센서는 좁은 감지 범위, 비선형성, 비가역성 등

의 문제가 있기 때문에 이러한 단점을 보완하기 위하여 이온 전도성 물질이 E-skin 센서의 소재로 연구되기 시작했다. 이온 전도체에서는 이온의 이동으로 전기전도가 일어나며 액체 전해질과 하이드로겔, 오가노겔, 이온젤 등의 고체 전해질이 있다. 액체 전해질의 경우 이온 전도도가 높다는 장점이 있지만 누액의 위험과 소자 적용에 제약이 있기 때문에, 가볍고 유연한 고분자 기반의 고체 이온 전도체가 최근의 전자기기 개발에 활발하게 적용되고 있다. 따라서, 본 고에서는 다양한 이온 전도성 고체 전해질의 종류에 대해 소개하고, 이를 적용한 E-skin 센서의 연구동향에 대해 소개하고자 한다.

Body

1. 이온 전도성 고분자 전해질

반복적인 굽힘, 신축과 같은 기계적 변화에서 안정적으로 구동하는 E-skin의 구현을 위해서는 신축성이 우수한 전도성 소재가 필수적이기 때문에 이온 전도체가 웨어러블 E-skin 센서 소재로 주목을 받고 있다. 일반적으로 이온 전도성 고분자 전해질은 고무와 같은 3차원 네트워크 구조를 가지는 고분자를 액체 전해질에서 팽윤시켜 제작하거나, 단량체와 가교제를 액체 전해질에 함께 넣고 열이나 빛을 이용하여 직접 중합하여 제작할 수 있다. 이렇게 제조된 고체 고분자 전해질은

†Corresponding author E-mail: kh.lee@inha.ac.kr

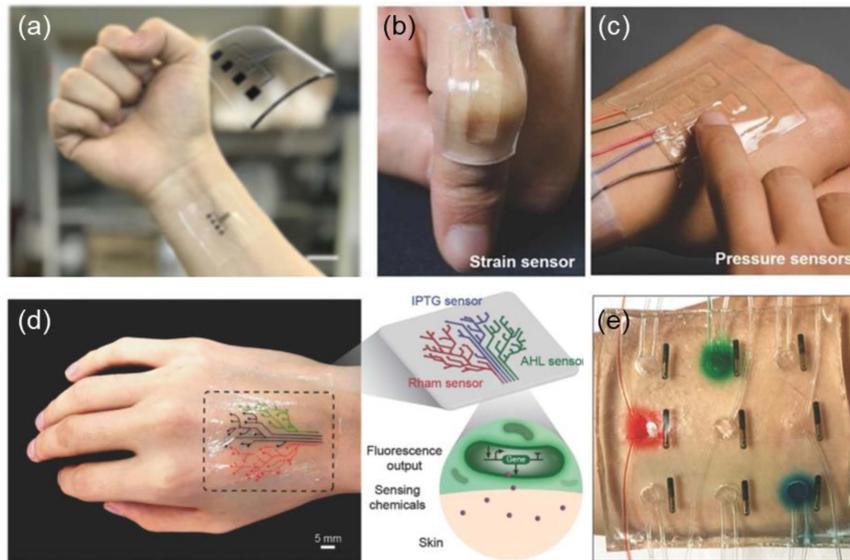


Figure 1. (a) Photograph of skin-attachable ion gel gas sensing sticker. Reproduced with permission.⁹ Copyright 2021, Wiley-VCH. (b) Hydrogel strain sensor attached to finger. (c) Hydrogel pressure sensor attached to back of hand. Reproduced with permission.¹⁰ Copyright 2014, Wiley-VCH. (d) 3-D printed chemical sensing tattoo. Reproduced with permission.¹² Copyright 2017, Wiley-VCH. (e) Temperature sensing hydrogel device. Reproduced with permission.¹¹ Copyright 2015, Wiley-VCH.

3차원 네트워크 구조에서 기인한 신축성과 점/접착이 가능한 기능기를 통하여 센서 소자가 사람이나 로봇의 피부에 잘 밀착되고 피부와 함께 움직일 수 있기 때문에 착용감과 측정 신호의 정확도를 동시에 향상시킬 수 있는 장점이 있다. 또한, 고분자 전해질 기반의 2개 이상의 센서 소자를 이용하여 E-skin을 구성할 경우 앞서 제시한 기계적 우수성을 가지며 압력, 온도, 화학적 자극 등을 동시에 감지할 수 있는 다기능 센서를 제작할 수 있어 적용 가능성이 매우 높은 소재이다.

1.1. 하이드로젤

대표적인 이온 전도성 물질인 염을 포함한 하이드로젤은 이온의 이동에 의해 전도도를 나타내며 변형이 쉽고 전극을 직접 연결하여 센서 신호를 측정하기 쉬운 장점이 있다. 하이드로젤의 3차원 네트워크 고분자는 -OH, -NH₂, -COOH 등 친수성 그룹을 가지고 있어 95 wt% 이상의 다량의 물을 함유할 수 있다. 하이드로젤의 고분자 네트워크는 화학적 가교 또는 물리적 가교를 이용하여 형성할 수 있다. 하이드로젤은 100% 이상 신축성과 가역성을 보이며 생체 적합성이 우수하기 때문에 다양한 생체 적합성 유연 소자에 적용되고 있다 (Figure 2a).¹⁶

하이드로젤에 사용되는 단량체의 종류를 변화시켜 고분자 네트워크를 구성하는 그룹을 바꾸면 다양한 기능성을 부여할 수 있다. 예를 들어, 하이드로젤에 도입되는 기능기의 종류에 따라서 화학적, 물리적 자극에 대해 반응할 수 있도록 설계가 가능하며 감지하고자 하는 표면에 잘 달라붙을 수 있도록 점/접착성을 부여할 수도 있다.^{17,18} 또한, 하이드로젤은 높은 수

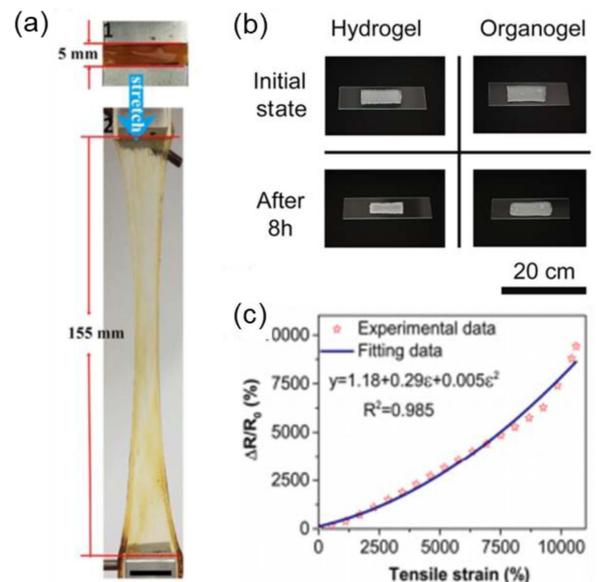


Figure 2. (a) Undeformed hydrogel (top) and stretched hydrogel (bottom). Reproduced with permission.¹⁶ Copyright 2017, Springer Nature. (b) Shape change of the hydrogel and organogel in a vacuum chamber. (c) Relative resistance change versus strain using organogel strain sensor. Reproduced with permission.²⁴ Copyright 2018, American Chemical Society.

분 함량으로 생체 적합성도 매우 높아 콘택트 렌즈, 상처 치유, 약물 전달 등에 적용하고 있으며, 최근 들어 사람 피부와 비슷한 성질을 가진 신축성 하이드로젤은 웨어러블 센서 소재로 활발하게 적용되고 있다. 이러한 하이드로젤은 이온 전도체 중 가장 널리 쓰이고 있지만 소재 및 소자의 상용화를

위해서는 해결해야 할 문제점들이 있다. 먼저, 하이드로젤은 어느점과 끊는점 범위가 좁기 때문에 고온 및 저온 환경에서 소재 및 소자의 성능이 변하는 단점이 있다. 최근 고농도의 이온 화합물을 도입하여 신축성을 유지하면서 어느점을 영하 57°C까지 내린 논문이 보고 되는 등 저온 특성의 개선 가능성이 제시되고 있지만,¹⁹ 고온 안정성은 여전히 문제로 남아 있다. 또한, 별도의 밀봉처리를 하지 않은 경우 용매인 물은 상온, 상압의 조건에서도 쉽게 증발하여 하이드로젤 기반 소자의 성능을 급격히 감퇴시키기 때문에 소자로의 적용을 위해 추가적인 봉지과정이 중요하게 고려되어야 한다.

1.2. 오가노젤

하이드로젤의 용매 증발 문제를 개선하기 위하여 물 대신 휘발성이 낮은 유기 용매를 도입하는 연구가 진행되었다.^{20,21} 대표적으로 에틸렌 글리콜 (EG)을 용매로 사용한 오가노젤이 있는데, EG는 2가 알코올 중 가장 간단한 형태의 화합물이며 물과 비교하였을 때 높은 끓는점(1기압에서 198°C)과 낮은 휘발성을 나타낸다.²² 따라서 하이드로젤의 용매인 물을 EG로 대체하였을 때 하이드로젤에 비하여 높은 온도 안정성을 부여할 수 있다. 다른 유기 용매로 프로필렌 카보네이트 (PC)를 사용한 오가노젤이 있는데 PC는 낮은 생체 독성, 낮은 녹는점(-48.8°C), 높은 끓는점(242°C)을 가지고 있어 그 활용 가능성이 높다.²³ 그러나 유기용매를 활용한 오가노젤 역시 하이드로젤에 비해서는 낮지만 용매가 증발하는 문제가 있어 소재 및 소자의 장기 안정성 측면에서 하이드로젤과 같은 봉지과정이 필요하다(Figure 2b, c).^{24,25}

1.3. 이온젤

이온젤이라고 불리는 고체 전해질은 고분자 네트워크와 이온성 액체로 구성되어 있는데, 3차원 고분자 구조체는 하이드로젤이나 오가노젤과 마찬가지로 화학적 가교 또는 물리적 가교로 형성할 수 있다. 먼저 화학적 가교를 이용해서 만든 이온젤은 대표적으로 methyl methacrylate (MMA) 단량체를 1-ethyl-3-methylimidazolium bis(trifluoromethyl sulfonyl)imide ([EMI][TFSI]) 이온성 액체에서 in-situ 라디칼 중합을 이용해서 만든 poly(methyl methacrylate) (PMMA) 이온젤이 있다. 가교제를 이용하여 공유결합으로 연결시킨 화학적 가교 젤은 기계적으로 유연하며 높은 수준의 이온 전도도를 보이지만 비가역적인 결합으로 고분자 네트워크가 연결되기 때문에 형태 제어가 어렵다. 이러한 화학적 가교의 문제점을 보완하기 위하여 수소결합, 결정형성, 이온성 결합, 고분자의 자기 조립 등의 가역적인 물리적 가교를 이용하여 이온젤을 만들 수 있다. 예를 들어, 최근 문홍철 교수 연구팀은 poly(ethyl methacrylate)-*ran*-polystyrene (PEMA-*r*-PS) 또는 PEMA-*b*-PS와 [EMI][TFSI]를 혼합하여 만든 이온젤을 이용하여 공중합체의 구성과 이온젤의 기계적 물성 간의 상관관계를 보고하였다.²⁶ 또한

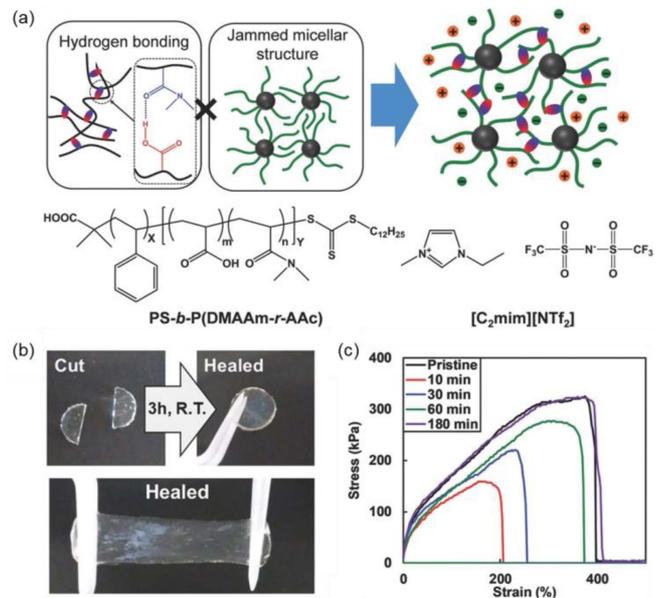


Figure 3. (a) Schematics and chemical structures of self-healable micellar ion gel. (b) Photograph of cut and healed ion gel. (c) Strain-stress curves of self-healable ion gel with different healing times. Reproduced with permission.²⁷ Copyright 2018, Wiley-VCH.

Watanabe 그룹에서는 poly(styrene)-*b*-poly(N,N-dimethylacrylamide-*r*-acrylic acid) (PS-*b*-P(DMAAm-*r*-AAc)) 공중합체와 [EMI][TFSI]를 이용하여 수소결합에 기반한 자가치유 이온젤을 제조하여 보고 하였다(Figure 3).²⁷ 이외에도 poly(vinylidene fluoride-*co*-hexafluoropropylene) (PVDF-HFP), poly(vinylidene fluoride) (PVDF), Nylon 과 같은 반결정고분자의 상분리를 이용한 이온젤,²⁸⁻³⁰ 수소결합이 가능한 블록공중합체와 호모폴리머를 사용한 이온젤³¹ 등 다양한 고분자 구조체를 이용한 이온성 액체 기반의 고분자 전해질이 활발하게 연구되고 있다. 이러한 이온젤은 높은 전기용량, 화학적 안정성, 전기화학적 안정성 등의 우수한 특징을 갖고 있는데, 특히 이온성 액체의 비휘발성 덕분에 앞서 말한 하이드로젤이나 오가노젤의 용매 증발 문제를 해결할 수 있는 동시에 우수한 기계적 특성과 전기화학적 안정성을 보이기 때문에 신뢰성이 높은 E-skin의 구현과 이에 필요한 다양한 소자 제작 공정을 가능하게 한다.

2. E-skin 센서 응용

2.1. 전자피부용 역학 센서

E-skin 센서는 감지 대상에 따라 역학센서, 화학센서, 물리센서 등으로 구분할 수 있으며 이들 중 역학센서는 인장, 압력, 회전, 비틀림 등의 역학적 자극을 감지한다. 이 때, 외부 자극은 전기용량, 저항, 압전성, 마찰 전성 등의 신호로 변화시킬 수가 있는데 간단한 구조와 감지 능력 때문에 많은 센

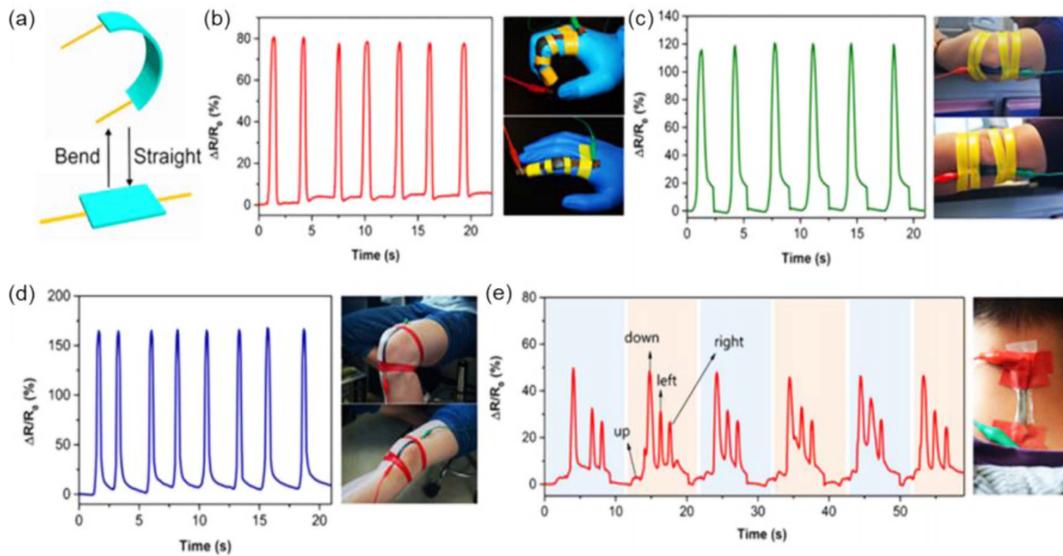


Figure 4. (a) Schematics of an organogel strain sensor before/after deformation. Relative resistance recorded by the organogel strain sensor. Sensors were attached to (b) index finger, (c) elbow, (d) knee, and (e) neck. Reproduced with permission.²⁴ Copyright 2018, American Chemical Society.

서 연구에서 저항과 전기용량 변화를 측정하는 방법이 주로 이용되고 있다. 역학 센서를 도입 했을 때는 센서 작동 시 외부의 자극에 의해 소재가 변형될 수 있기 때문에 소재의 신축성과 회복성 확보가 중요하다.

저항 변화 기반의 역학 센서는 전기전도체나 이온전도체를 기반으로 한 소재로 기계적인 자극을 저항의 변화로 나타낸다. 전도체의 저항은 $R = \rho l / A$ (ρ : 비저항, l : 길이, A : 단면적)에 의해 결정되며, 길이 변화나 단면적 변화에 의해 달라지는 저항값을 통하여 인장, 압력 등의 자극을 인지하는 가장 기본적인 저항 변화 센서는 외부의 물리적 자극에 의한 인장률에 따라 저항이 변하는 인장 센서와 압력에 따라 저항이 변하는 압축 센서가 있다. Zhang 교수 연구진은 polyacrylamide (PAAm)/polyvinylpyrrolidone (PVP)로 구성된 더블 네트워크 고분자 구조와 EG용매로 구성된 오가노젤을 기반으로 한 저항 방식 센서를 보고하였다. 이 연구의 인장 센서는 gauge factor가 2.3으로 높은 민감도를 보였으며 10000% 이상의 감지 범위에서 작동 가능하고 50000회 이상 반복 가능하였다. 또한 이 센서는 손가락, 팔꿈치, 무릎 등 인체에 부착되어 작은 움직임 뿐만 아니라 방향까지 인식하여 사람의 움직임을 정확하게 포착가능하다(Figure 4).²⁴ 또한, 최근 이온이 침투 가능한 고분자/탄소소재 기반의 전극을 이용하고, 이온젤 센싱부를 지그재그 모양으로 패터닝하여 gauge factor를 173으로 높인 초고감도 신축성 인장 센서가 개발되기도 하였다. 패터닝된 이온젤 센서는 인체에 부착하여 움직임 정도와 속도까지 감지할 수 있다(Figure 5).³²

전기용량 방식 센서는 전극/유전체/전극의 구조를 가지며, 기계적인 자극을 전기용량의 신호로 변환한다. 전기용량(C)

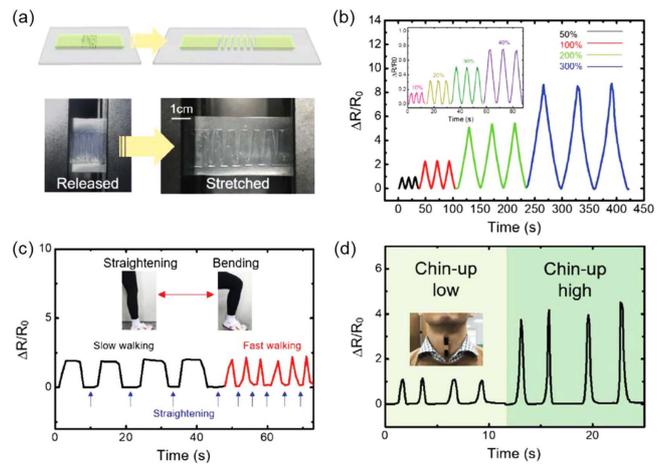


Figure 5. (a) Schematics (top) and photographs of the zigzag ion gel sensor. (b) Relative resistance of the rectangular ion gel strain sensor. Real-time detection of human motions collected by the zigzag strain sensor attached to (c) knee and (d) neck. Reproduced with permission.³² Copyright 2021, Wiley-VCH.

은 평행판일 때 $C = \epsilon(A/d)$ (ϵ : 유전률, A : 판의 넓이, d : 유전체의 두께)에 따라 변화하므로, 센서는 외부 자극에 따른 소재의 변형에 의한 유전체의 두께나 전극과의 접촉면적이 달라짐에 따라 변하는 전기용량을 측정한다. 따라서, 형태 변화가 용이하면서 탄성이 있는 유연 소재를 전기용량 방식의 유전체 층에 활용하는 연구들이 진행되었다(Figure 6).^{33,34} 장석태 교수 연구진은 PVDF-HFP와 [EMI][TFSI]가 포함된 이온젤 박막에 구리 전극을 연결한 전기 용량 방식 센서를 개발하였다. 물체가 이온젤에 접촉하면 접촉면에 전기용량이 발생하고 전기장의 섭동으로 인해 전극 사이의 전기용량이 감소하

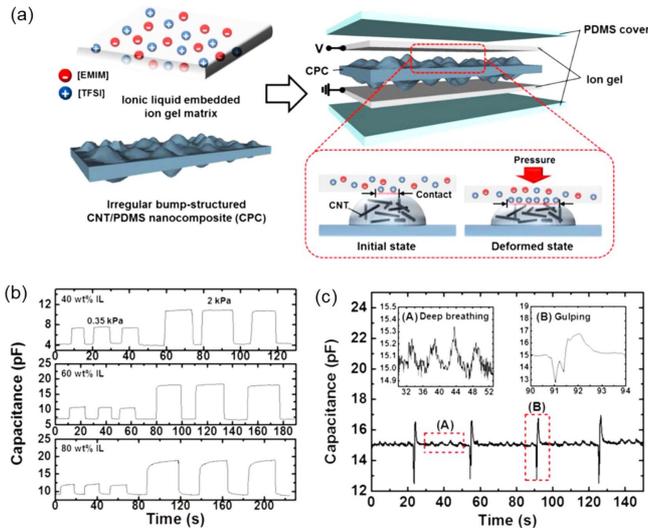


Figure 6. (a) Schematic of an ion-gel-based capacitive pressure sensor. (b) Capacitive change with various ionic liquid concentrations under 0.35 and 2 kPa. (c) Real-time capacitance responding to deep breathing and gulping recorded. Reproduced with permission.³³ Copyright 2017, American Chemical Society.

기 때문에 전기용량의 변화를 모니터링할 수 있다. 장석태 교수 연구팀은 센서를 손등에 부착하여 다양한 손가락 동작을 감지하고, 3개의 터치 센서를 이용하여 터치 키패드를 구현하였다.³⁵

2.2. 전자피부용 화학 센서

화학 센서의 종류에는 전기화학 센서, 화학 저항기 등이 있

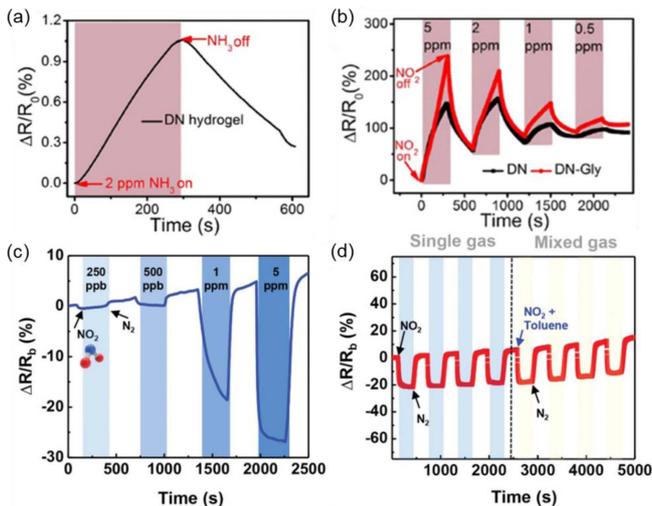


Figure 7. (a) Responses of the double network (DN) hydrogel sensor to NH_3 . (b) Comparison of relative resistance change of DN and DN-Gly sensors to NO_2 . Reproduced with permission.³⁶ Copyright 2019, American Chemical Society. (c) Dynamic response of the ion gel gas sensor to NO_2 . (d) NO_2 sensing cycles collected by the ion gel gas sensor exposed to single gas and mixed gas. Reproduced with permission.⁹ Copyright 2021, Wiley-VCH.

다. 전기 화학 센서는 대상 화학 물질에 노출되었을 때 전위, 전류, 또는 저항의 변화를 보여주고, 화학 저항기에서는 두 전극 사이 감지 요소의 저항이 표적 물질에 노출 되었을 때 변하는 원리를 이용한다. 인간의 생체 유체에는 저농도의 화학 물질들이 포함되어 있으므로 화학 센서를 실제로 적용하기 위해서는 높은 선택성, 민감도가 필요하고, 착용형 센서 또는 전자피부에 응용되기 위해서 신축성과 함께 인체 친화성이 요구된다. Liu 그룹은 polyacrylamide와 carrageenan를 이용한 이온 전도성 더블네트워크 하이드로젤을 이용하여 이산화질소와 암모니아를 감지하는 센서를 제작하였다. 이 센서는 높은 감도(78.5 ppm^{-1})를 보이며, 1.2 ppb의 이산화질소를 감지할 정도로 낮은 검출 한계를 보인다. 센서에 사용된 이온 전도체는 용매에서 물을 글리세롤로 부분적으로 대체하여 최대 1200%까지 변형이 가능하도록 신축성을 향상시켰다(Figure 7a, b).³⁶ 또한, 최근 김도환 교수 연구팀은 이온성 액체 기반의 고체 고분자 전해질을 감지 채널로 사용하고 잉크젯 인쇄가 가능한 탄소나노튜브를 전극으로 이용하여 신축성 가스 감지 센서 스티커를 구현하였다. 제작된 스티커형 가스 센서는 ppm에서 ppb까지 이산화질소에 대한 높은 감도를 나타냈고, $-45 \sim 125^\circ\text{C}$ 에서의 반복 사이클이나 상대습도 85%에서 24시간 방치 시킨 후에도 센서 성능의 감소가 없었다(Figure 7c, d).⁹

3. E-skin 센서 시장 전망 및 산업 동향

Grand View Research 시장전망에 따르면 E-skin 시장 규모는 2019년 45억달러로 2027년까지 약 20.5%의 연평균 성장률(CAGR)을 가질 것으로 예상되며, 특히 건강 모니터링 등의 헬스케어 산업과 로봇틱스 분야에서 큰 성장이 예상되고 있다.³⁷ E-Skin의 상용화를 위해서는 민감도와 유연성·신축성 확보가 핵심 요소이며, 이에 신축성 이온전도성 고분자 전해질을 활용한 E-Skin 센서 기술의 사업화도 가속화될 전망이다. E-skin 시장의 주요 기업에는 MC10, Xenoma, VivaLNK, GENTAG, Inc 등이 있으며, 이들 기업은 헬스케어 뿐 아니라, 생물의약, 계측, 로봇공학 등 다양한 분야에서 전자피부 패치를 개발하고 있다. 글로벌 주요 업체들은 아이디어와 기술력을 바탕으로 한 신제품 출시를 지속적으로 진행하면서 관련 시장 선점을 위한 다각적인 노력을 하고 있다. 특히 MC10는 2018년에 E-skin 감지패치(BioStamp)의 미국 식품의약국(FDA) 승인을 획득했다.³⁸

국내에서는 삼성전자, 아모레퍼시픽, LG전자 등에서 E-skin 연구와 사업화를 병행하고 있다. 삼성전자의 경우, 스트레처블 OLED 디스플레이와 광혈류 측정(Photoplethysmography, PPG) 센서를 하나의 기기에 통합해 스트레처블 전자피부를 구현함으로써 사업화 가능성을 입증하였다. 특히 상기 연구에서는 고분자화합물의 조성을 바꿔 탄성력과 복원력을 향상시켜 30% 늘려도 성능 저하 없이 기기가 정상 작동

하는 것을 보여주었다.³⁹ 아모레퍼시픽은 MIT와 공동협력하여 피부변화 추적관찰을 통한 데이터 확보로 맞춤형 기능성 화장품 개발을 위한 초박막 E-skin 웨어러블 피부 측정기기를 개발하였다.⁴⁰

이처럼 E-skin 센서 산업은 국내·외에서 연구뿐 아니라, 산업적 측면에서도 이미 사업화가 활발하게 진행되고 있는 미래 주력산업이다. 정부에서도 2021년 혁신성장을 견인할 수 있는 306개 품목 내 전자피부(품목코드 H37008)를 포함시켰으며 정책금융의 지원을 진행하고 있다.⁴¹

Conclusions

물리적 또는 화학적 가교를 통한 3차원 네트워크를 형성하여 제조하는 신축성이 좋고 유연한 고체 고분자 전해질은 네트워크 디자인 및 구성요소를 제어하여 물질의 특성을 개선하거나 기능을 부여할 수 있다. 이러한 전해질은 인간의 피부의 신축성, 높은 기계적 강도, 촉각 감지능력 등의 일부 특징을 모방하여 로봇에 촉각을 부여하거나 인간의 피부 역할을 하게 할 수 있기 때문에 인공피부 센서로 활발한 연구가 진행되고 있다. 앞서 제시한 바와 같이 하이드로젤, 오가노젤, 이온젤 등의 고분자 전해질과 이를 이용한 전자피부용 센서는 차세대 웨어러블 전자기기, 헬스케어, 로봇틱스 등의 핵심 요소로 더욱 활발한 연구와 측정기기를 진행될 것으로 기대된다.

References

- J. C. Yang, J. Mun, S. Y. Kwon, S. Park, Z. N. Bao, and S. Park, "Electronic Skin: Recent Progress and Future Prospects for Skin-Attachable Devices for Health Monitoring, Robotics, and Prosthetics", *Adv. Mater.*, **31**, 1904765 (2019).
- Z. L. Li, M. M. Zhu, J. L. Shen, Q. Qiu, J. Y. Yu, and B. Ding, "All-Fiber Structured Electronic Skin with High Elasticity and Breathability", *Adv. Funct. Mater.*, **30**, 1908411 (2020).
- H. Y. Xu, Y. Y. Xie, E. W. Zhu, Y. Liu, Z. Q. Shi, C. X. Xiong, and Q. L. Yang, "Supertough and ultrasensitive flexible electronic skin based on nanocellulose/sulfonated carbon nanotube hydrogel films", *J. Mater. Chem. A*, **8**, 6311 (2020).
- S. Y. Zhang, S. B. Li, Z. Z. L. Xia, and K. Y. Cai, "A review of electronic skin: soft electronics and sensors for human health", *J. Mat. Chem. B*, **8**, 852 (2020).
- W. Asghar, F. L. Li, Y. L. Zhou, Y. Z. Wu, Z. Yu, S. B. Li, D. X. Tang, X. T. Han, J. Shang, Y. W. Liu, and R. W. Li, "Piezocapacitive Flexible E-Skin Pressure Sensors Having Magnetically Grown Microstructures", *Adv. Mater. Technol.*, **5**, 1900934 (2020).
- W. W. Peng, L. Han, H. L. Huang, X. Y. Xuan, G. D. Pan, L. J. Wan, T. Lu, M. Xu, and L. K. Pan, "A direction-aware and ultrafast self-healing dual network hydrogel for a flexible electronic skin strain sensor", *J. Mater. Chem. A*, **8**, 26109 (2020).
- S. Gong, D. T. H. Lai, B. Su, K. J. Si, Z. Ma, L. W. Yap, P. Z. Guo, and W. L. Cheng, "Highly Stretchy Black Gold E-Skin Nanopatches as Highly Sensitive Wearable Biomedical Sensors", *Adv. Electron. Mater.*, **1**, 1400063 (2015).
- Y. M. Kim and H. C. Moon, "Ionoskins: Nonvolatile, Highly Transparent, Ultrastretchable Ionic Sensory Platforms for Wearable Electronics", *Adv. Funct. Mater.*, **30**, 1907290 (2020).
- M. L. Jin, S. Park, H. Kweon, H. J. Koh, M. Gao, C. Tang, S. Y. Cho, Y. Kim, S. Y. Zhang, X. L. Li, K. Shin, A. P. Fu, H. T. Jung, C. W. Ahn, and D. Kim, "Scalable Superior Chemical Sensing Performance of Stretchable Ionotronic Skin via a pi-Hole Receptor Effect", *Adv. Mater.*, **33**, 10 (2021).
- J. Y. Sun, C. Keplinger, G. M. Whitesides, and Z. G. Suo, "Ionic Skin", *Adv. Mater.*, **26**, 7608 (2014).
- S. T. Lin, H. Yuk, T. Zhang, G. A. Parada, H. Koo, C. J. Yu, and X. H. Zhao, "Stretchable Hydrogel Electronics and Devices", *Adv. Mater.*, **28**, 4497 (2016).
- X. Y. Liu, H. Yuk, S. T. Lin, G. A. Parada, T. C. Tang, E. Tham, C. de la Fuente-Nunez, T. K. Lu, and X. H. Zhao, "3D Printing of Living Responsive Materials and Devices", *Adv. Mater.*, **30**, 1704821 (2018).
- Z. H. Tang, Y. Q. Li, P. Huang, H. Wang, N. Hu, and S. Y. Fu, "Comprehensive evaluation of the piezoresistive behavior of carbon nanotube-based composite strain sensors", *Compos. Sci. Technol.*, **208**, 8 (2021).
- H. Tian, Y. Shu, Y. L. Cui, W. T. Mi, Y. Yang, D. Xie, and T. L. Ren, "Scalable fabrication of high-performance and flexible graphene strain sensors", *Nanoscale*, **6**, 699 (2014).
- M. Amjadi, A. Pichitpajongkit, S. Lee, S. Ryu, and I. Park, "Highly Stretchable and Sensitive Strain Sensor Based on Silver Nanowire-Elastomer Nanocomposite", *Acs Nano*, **8**, 5154 (2014).
- L. Han, L. W. Yan, K. F. Wang, L. M. Fang, H. P. Zhang, Y. H. Tang, Y. H. Ding, L. T. Weng, J. L. Xu, J. Weng, Y. J. Liu, F. Z. Ren, and X. Lu, "Tough, self-healable and tissue-adhesive hydrogel with tunable multifunctionality", *NPG Asia Mater.*, **9**, 12 (2017).
- L. Guan, S. Yan, X. Liu, X. Y. Li, and G. H. Gao, "Wearable strain sensors based on casein-driven tough, adhesive and anti-freezing hydrogels for monitoring human-motion", *J. Mat. Chem. B*, **7**, 5230 (2019).
- J. J. Xu, G. Y. Wang, Y. F. Wu, X. Y. Ren, and G. H. Gao, "Ultrastretchable Wearable Strain and Pressure Sensors Based on Adhesive, Tough, and Self-healing Hydrogels for Human Motion Monitoring", *ACS Appl. Mater. Interfaces*,

- 11, 25613 (2019).
19. X. P. Morelle, W. R. Illeperuma, K. Tian, R. B. Bai, Z. G. Suo, and J. J. Vlassak, "Highly Stretchable and Tough Hydrogels below Water Freezing Temperature", *Adv. Mater.*, **30**, 1801541 (2018).
 20. J. M. Park, J. Park, Y. H. Kim, H. Zhou, Y. Lee, S. H. Jo, J. Ma, T. W. Lee, and J. Y. Sun, "Aromatic nonpolar organogels for efficient and stable perovskite green emitters", *Nat. Commun.*, **11**, 10 (2020).
 21. Y. Y. Lee, H. Y. Kang, S. H. Gwon, G. M. Choi, S. M. Lim, J. Y. Sun, and Y. C. Joo, "A Strain-Insensitive Stretchable Electronic Conductor: PEDOT:PSS/Acrylamide Organogels", *Adv. Mater.*, **28**, 1636 (2016).
 22. Z. Y. Han, P. Zhou, and C. Y. Duan, "Extremely stretchable, stable and antibacterial double network organogels based on hydrogen bonding interaction", *Colloid Surf. A-Physicochem. Eng. Asp.*, **602**, 8 (2020).
 23. G. L. Feng, Y. Xiong, H. Wang, and Y. J. Yang, "Cyclic voltammetry investigation of diffusion of ferrocene within propylene carbonate organogel formed by gelator", *Electrochim. Acta*, **53**, 8253 (2008).
 24. H. X. Zhang, W. B. Niu, and S. F. Zhang, "Extremely Stretchable, Stable, and Durable Strain Sensors Based on Double-Network Organogels", *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **10**, 32640 (2018).
 25. S. F. Xiang, S. S. Chen, M. T. Yao, F. Zheng, and Q. H. Lu, "Strain sensor based on a flexible polyimide ionogel for application in high- and low-temperature environments", *J. Mater. Chem. C*, **7**, 9625 (2019).
 26. W. Y. Choi, Y. M. Kim, H. Ahn, and H. C. Moon, "Block versus random: effective molecular configuration of copolymer gelators to obtain high-performance gel electrolytes for functional electrochemical devices", *J. Mater. Chem. C*, **8**, 17045 (2020).
 27. R. Tamate, K. Hashimoto, T. Horii, M. Hirasawa, X. Li, M. Shibayama, and M. Watanabe, "Self-Healing Micellar Ion Gels Based on Multiple Hydrogen Bonding", *Adv. Mater.*, **30**, 1802792 (2018).
 28. Y. Cao, T. G. Morrissey, E. Acome, S. I. Allec, B. M. Wong, C. Keplinger, and C. Wang, "A Transparent, Self-Healing, Highly Stretchable Ionic Conductor", *Adv. Mater.*, **29**, 1605099 (2017).
 29. H. M. Yang, Y. K. Kwon, S. B. Lee, S. Kim, K. Hong, and K. H. Lee, "Physically Cross-Linked Homopolymer Ion Gels for High Performance Electrolyte-Gated Transistors", *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **9**, 8813 (2017).
 30. K. G. Cho, Y. K. Cho, J. H. Kim, H. Y. Yoo, K. Hong, and K. H. Lee, "Thermostable Ion Gels for High-Temperature Operation of Electrolyte-Gated Transistors", *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **12**, 15464 (2020).
 31. Y. Lei and T. P. Lodge, "Effects of component molecular weight on the viscoelastic properties of thermoreversible supramolecular ion gels via hydrogen bonding", *Soft Matter*, **8**, 2110 (2012).
 32. J. H. Kim, K. G. Cho, D. H. Cho, K. Hong, and K. H. Lee, "Ultra-Sensitive and Stretchable Ionic Skins for High-Precision Motion Monitoring", *Adv. Funct. Mater.*, **31**, 2010199 (2021).
 33. S. G. Yoon, B. J. Park, and S. T. Chang, "Highly Sensitive Piezocapacitive Sensor for Detecting Static and Dynamic Pressure Using Ion-Gel Thin Films and Conductive Elastomeric Composites", *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **9**, 36206 (2017).
 34. D. Kwon, T. I. Lee, J. Shim, S. Ryu, M. S. Kim, S. Kim, T. S. Kim, and I. Park, "Highly Sensitive, Flexible, and Wearable Pressure Sensor Based on a Giant Piezocapacitive Effect of Three-Dimensional Microporous Elastomeric Dielectric Layer", *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **8**, 16922 (2016).
 35. B. J. Park, S. Oh, F. S. Kim, and S. T. Chang, "Pixel-free capacitive touch sensor using a single-layer ion gel", *J. Mater. Chem. C*, **7**, 10264 (2019).
 36. J. Wu, Z. X. Wu, S. J. Han, B. R. Yang, X. C. Gui, K. Tao, C. Liu, J. M. Miao, and L. K. Norford, "Extremely Deformable, Transparent, and High-Performance Gas Sensor Based on Ionic Conductive Hydrogel", *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **11**, 2364 (2019).
 37. "Electronic Skin Market Size, Share & Trends Analysis Report By Product, By Component, By Sensors, By Application, By Region, and Segment Forecasts", *Grand View Research*, (2020).
 38. K. Sanderson, "Electronic skin: from flexibility to a sense of touch", *Nature* **591**, 685 (2021).
 39. Y. Lee, J. W. Chung, G. H. Lee, H. Kang, J.-Y. Kim, C. Bae, H. Yoo, S. Jeong, H. Cho, S.-G. Kang, J. Y. Jung, D.-W. Lee, S. Gam, S. G. Hahm, Y. Kuzumoto, S. J. Kim, Z. Bao, Y. Hong, Y. Yun, and S. Kim, "Standalone real-time health monitoring patch based on a stretchable organic optoelectronic system", *Sci. Adv.* **7**, eabg9180 (2021).
 40. "H. Yeon, H. Lee, Y. Kim, D. Lee, Y. Lee, J.-S. Lee, J. Shin, C. Choi, J.-H. Kang, J. M. Suh, H. Kim, H. S. Kum, J. Lee, D. Kim, K. Ko, B. S. Ma, P. Lin, S. Han, S. Kim, S.-H. Bae, T.-S. Kim, M.-C. Park, Y.-C. Joo, E. Kim, J. Han, and J. Kim, "Long-term reliable physical health monitoring by sweat pore-inspired perforated electronic skins", *Sci. Adv.* **7**, eabg8459 (2021).
 41. "2021 혁신성장 공동기준 약식 매뉴얼", *혁신성장정책금융센터*, (2021).