



REVIEW

전도성 하이드로젤 나노복합체 기반 연성 전도체 기술 동향

안민재, 김선민, 김선홍*

서울시립대학교 화학공학과

Research Progress in Soft Conductor Technologies Based on Conductive Hydrogel Nanocomposites

Min Jae Ahn, Seon Min Kim, Sun Hong Kim*

Department of Chemical Engineering, University of Seoul, Seoul, Korea

ABSTRACT

Bioelectronics has rapidly advanced in response to the growing demand for measuring and monitoring biological signals using electronic devices. Highly stretchable electronic systems have drawn significant attention due to their strong conformal adhesion to soft biological tissues. Hydrogels have emerged as promising materials for stretchable bioelectronic applications owing to their tissue-like mechanical properties, high stretchability, intrinsic biocompatibility. However, conventional hydrogels face an inherent trade-off between mechanical stretchability and electrical conductivity. To address this limitation, conductive filler-integrated hydrogels have been extensively developed to achieve both high stretchability and enhanced electrical performance. This review summarizes recent progress in hydrogel nanocomposites incorporating diverse conductive nanomaterial fillers and discusses future research directions and prospects for hydrogel-based soft conductors.

Key Words: Conductive hydrogel, Stretchable conductor, Conductive nanomaterials, Soft electronics

*Correspondence: shkim0914@uos.ac.kr

1. 서론

웨어러블 디바이스(wearable device), 소프트 로보틱스(soft robotics), 바이오전자 기술의 발전은 높은 신축성, 생체적합성, 수명을 동시에 만족하는 전도체의 수요를 증가시킨다. 기존에 사용되는 금속이나 탄소 기반의 전극은 우수한 전기적 성능을 제공하지만, 생체 조직과의 기계적 특성 불일치와 낮은 신축성으로 인해, 부착 안정성이 감소하여 신호 품질이 저하되고, 신호 드리프트(signal drift) 및 과도한 임피던스 변동이

유발될 수 있다. 또한, 반복적인 변형이 가해질 시 미세 균열이 발생하며, 이는 단순히 전자기기의 접촉 불량뿐 아니라 생체 조직에 부착되었을 때 조직의 영구적인 손상을 발생시킨다. 그에 비해, 신축성 전자소자는 사용자의 신체에 완전히 밀착할 수 있어, 센서가 수집하는 신호 품질을 향상시키고 전자소자의 응용 분야가 확장된다는 장점이 있다[1,2]. 많은 연구진들은 높은 신축성을 달성하기 위해, 폴리디메틸실록산(polydimethylsiloxane, PDMS), 에코플렉스(ecoflex) 등과 같은 다양한 고분자 소재가 연구에 사용했다. 그중에



Table 1. Summary of electrical performance and mechanical performance by type of hydrogel nanocomposite, adapted from Refs. [16–35]

Title	Type	Electrical performance	Stretchability	Applications	Ref
Wang et al., Adv. Funct. (2024)	Metallic filler based hydrogel nanocomposite	σ . 0.24 S·cm ⁻¹	4,200%	Sensor	[16]
Lim et al., Adv. Mater. (2024)		σ . 520 S·cm ⁻¹	300%	Adhesive electrode	[17]
Zhang et al., Adv. Funct. (2024)	Liquid Metal based hydrogel nanocomposite	σ . 217,895 S·cm ⁻¹	704%	Wearable electronics	[18]
Ma et al., Adv. Funct. (2024)		$\Delta R/R_0$ = 3.25% at 100% strain	610%	Soft robots	[19]
Wang, Macromol. Rapid Commun. (2022)		GF = 1.6	233%	Wearable sensor	[20]
Hao et al., Small. (2022)		GF = 0.55	50%	Strain sensor	[21]
Hu et al., Adv. Mater. (2021)		GF = 2.6 at 0–900% strain	1,240%	Ink for wearable electronics	[22]
Wei et al., Adv. Funct. (2022)	Ionic hydrogel nanocomposite	σ . 2.12×10 ⁻⁶ S·cm ⁻¹	-	Sensor	[23]
Han et al., Adv. Funct. (2024)		GF = 10.4	-	TENGs	[24]
Lei et al., Nat. Commun. (2019)		-	10,000%	Soft robots	[25]
Jiang et al., Adv. Funct. (2025)		GF = 0.59 at 0–320% strain	1,000%	Pressure sensor	[26]
Han et al., Adv. Mater. (2023)		σ . 4.9×10 ⁻⁵ S·cm ⁻¹	-	Bioelectronics	[27]
Ji et al., Adv. Sci. (2024)		σ . 1.216×10 ⁻² S·cm ⁻¹	1,100%	ECG device	[28]
Yao et al., Adv. Funct. (2022)		σ . 6.94×10 ⁻³ S·cm ⁻¹	1,810%	Sensor	[29]
Tropp et al., Adv. Mater. (2024)		σ . 410 S·cm ⁻¹	-	Bioelectronics	[30]
Lu et al., Nat. Commun. (2019)		σ . 40 S·cm ⁻¹	>35%	Bioelectronics	[31]
Feig et al., Nat. Commun. (2018)		σ . 0.23 S·cm ⁻¹	>100%	Electronic material	[32]
He et al., Nat. Commun. (2023)	Conductive polymer based hydrogel nanocomposite	σ . 80 S·cm ⁻¹	36%	Implantable bioelectronics	[33]
Xie et al., Nat. Commun. (2023)		σ . 3.01 S·cm ⁻¹	1,000%	Implantable bioelectronics	[34]
Zhou et al., Nat. Mater. (2023)		σ . 11 S·cm ⁻¹	400%	Bioelectronics	[35]



서 하이드로젤(hydrogel)의 3차원 고분자 네트워크와 수분이 결합된 구조를 바탕으로 얻는 생체 조직과 유사한 기계적 특성, 높은 연성(softness)를 가지기 때문에 많은 연성소재 연구에서 주목받고 있다[3-8]. 높은 수분 함량은 이온 전도성 구현에 유리하며, 전기생리 신호(electrophysiological signal) 측정과 같은 소프트 일렉트로닉스 분야에서 큰 강점을 가진다[9-10]. 하지만 기존 하이드로젤 기반 전도체는 연성 조직과의 우수한 기계적 순응성 측면에서 장점을 가지지만, 전기적 측면에서는 본질적인 한계를 가진다. 일반적인 이온 전도성 고분자 기반 하이드로젤의 전기전도도는 약 $10^{-4} \sim 10^{-2}$ S/cm 수준으로 보고되며, 이는 안정적인 생체 신호 기록에서 한계점이 존재한다. 또한 기계적 측면에서도 높은 신축성(수백 %)를 나타낼 수 있으나, 낮은 영 모듈러스로 인한 높은 기계적 파괴 변형률을 나타낸다. 더 나아가 수분을 기반으로 하는 재료 특성상 건조 환경에서 수시간 이내에 초기 질량의 50% 이상의 수분 손실이 발생할 수 있으며, 이는 전기전도도 저하 및 영구적인 고분자 네트워크 손상으로 직결된다. 이러한 하이드로젤의 한계는 하이드로젤 단일 시스템이 장시간 사용 시 부적절하다는 점을 나타내며, 전도 경로 안정화, 기계적 물성 향상, 그리고 수분 유지 특성을 동시에 개선하는 하이드로젤 나노복합체 연구의 필요성을 강조한다.

최근 연구에서는 문제 해결을 위해 은 나노와이어(AgNW), 액체 금속, 이온성 액체(ionic liquid), 그리고 전도성 폴리머(conducting polymer)와 같은 전도성 필러를 하이드로젤과 혼합하여 제작하는 하이드로젤 나노복합체와 같은 여러 연구들이 진행 중이다[11-13].

금속 기반 나노입자 필러는 입자 간 접촉을 통해 연속적인 전도 경로(conductive pathway)를 형성함으로써 높은 전기전도도를 구현한다. 그러나 전도 임계농도(percolation threshold)를 초과할 경우 입자 응집이 가속화되며, 이로 인해 기계적 물성 저하가 동반되는

한계가 있다.

탄소나노튜브 및 그래핀과 같은 탄소 기반 필러는 높은 종횡비(aspect ratio)를 기반으로 낮은 함량에서도 전기적 연결성을 확보할 수 있다. 다만, 응집 및 네트워크 재배열 현상으로 인해 변형 시 신축성과 기계적 안정성이 제한될 수 있다. 이온성 액체와 전도성 고분자는 하이드로젤 네트워크와의 우수한 상용성으로 인해 큰 변형 조건에서도 전기적 연속성을 유지할 수 있다는 장점을 가진다. 반면, 금속 필러 대비 전기전도도가 낮고, 습도나 이온 농도 변화에 따른 전도 특성의 환경 민감성이 상대적으로 크다.

본 리뷰에서는 다양한 전도성 나노소재 필러의 종류에 따른 기존 하이드로젤 나노복합체 연구들을 검토하고, 이를 바탕으로 향후 하이드로젤 전도체 연구 방향 및 전망을 논의한다.

2. 본론

2.1. 금속-필러 기반 하이드로젤 나노복합체

하이드로젤은 생체 조직과 물리적 유사성과 우수한 접착성을 지니고 있어 생체-계면에 적용하기 적합한 재료이다. 하지만, 고연성을 필요로 하는 바이오 전자 장치에 활용되는 하이드로젤은 낮은 전기전도도를 가진다는 한계가 존재한다. 이러한 하이드로젤의 전기전도도를 향상시키기 위해 금속 입자, 전도성 고분자, 그래핀, 탄소 나노튜브를 포함한 다양한 전도성 필러를 하이드로젤 매트릭스에 도입하는 방식이 연구되고 있다. 특히, 금속 입자는 전도성 필러들 중에 가장 높은 전기전도도를 부여할 수 있어 주목받고 있다[14,15]. 하지만, 금속-필러 기반 하이드로젤 나노복합체에서 전도도를 향상시키는 필러가 도입되었을 때, 하이드로젤 내부 결합의 사이에 침투하여, 고분자 사슬의 에너지 소산 능력이 감소하게 되고 이동성과 재배열을 제한한다. 결과적으로 하이드로젤의 기계적 연성이 저해



되고 낮은 파괴 저항성을 보이게 된다. 이를 해결하기 위해, 이온 결합과 같은 희생 결합 또는 동적 결합을 도입하는 연구가 진행 중이다.

최근에 Feng Yan 연구그룹에서는 폴리비닐알코올 (poly(vinyl alcohol, PVA)-은 나노와이어(silver nanowires, AgNWs)-액체금속(liquid metal, LM)으로 구성되어 있으며, 변형 시 전기전도도가 향상되는 특성을 지닌 하이드로젤을 개발했다. 본 연구에서 LM 입자와 AgNWs를 첨가한 PVA 용액의 물을 증발시켜 분자 사슬 밀도, 얹힘, 그리고 가역적 결합 상호작용이 증가된 PAL(PVA-AgNWs-LM) 하이드로젤을 제작했다(Fig. 1(a))[16]. PVA 하이드로젤과 다양한 LM 함량을 가진 PAL 하이드로젤의 인장 변형에 따른 저항 변화 측정 결과, 인장 변형 시 저항 변화가 급격히 증가한 PVA 하이드로젤에 비해 PAL 하이드로젤의 저항 변화는 작게 나타났다(Fig. 1(b)). LM 함량이 가장 높은 PAL-3는 700%보다 높은 인장 변형에서 저항이 감소했다. 이는 PAL 하이드로젤 인장 시 유도되는 AgNWs와 LM의 배향에 의한 것이다.

또한 은 전도성 필러로 수염 형태의 금 나노시트 (whiskered gold nanosheets, W-AuNSs)를 사용하여 우수한 전도성과 신축성을 지닌 하이드로젤 나노복합체 (wAu-CSHs)를 개발한 사례가 있다(Fig. 1(c))[17]. 본 연구에서는 건조된 W-AuNSs의 네트워크를 하이드로

젤 매트릭스에 넣으며, 이때 긴 수염 형태의 W-AuNSs는 수분 함량이 많은 하이드로젤에서도 전기적 연결이 끊기지 않도록 유지한다. wAu-polyacrylamide(PAAm) CSH, silver nanowire(AgNW)-PAAm CSH, gold nanosheets(AuNS)-PAAm CSH의 인장 변형에 따른 저항 변화 측정 결과, AgNW-PAAm CSH와 AuNS-PAAm CSH는 각각 약 11%와 38%까지 신장되었지만, wAu-PAAm CSH는 약 300%까지 신장되었다(Fig. 1(d)). W-AuNSs의 수염 형태에 의해 건조될 시 다공성 네트워크 구조를 형성하여, AgNWs와 AuNSs에 비해 낮은 네트워크 밀도를 가진다. 낮은 네트워크 밀도의 필러는 하이드로젤에 첨가되었을 시 부드러운 나노복합체를 형성한다.

2.2. 액체 금속 기반 하이드로젤 나노복합체

액체 금속(LM, Ga-In alloy)은 상온에서 액체 상태를 유지하면서도 높은 전기전도도와 열 전도도 특성을 지닌다. 이를 하이드로젤 고분자 내에 고르게 분산하면, 금속의 전기적 특성과 하이드로젤의 유연성을 결합한 복합체를 구현할 수 있다. 하지만, 앞서 소개한 일반 고체 금속과 유사하게 낮은 저항과 저항 변화와 같은 여러 우수한 전기적 특성을 지님에도 불구하고, 압력이 가해졌을 때 액체 금속이 유출될 수 있다는 치

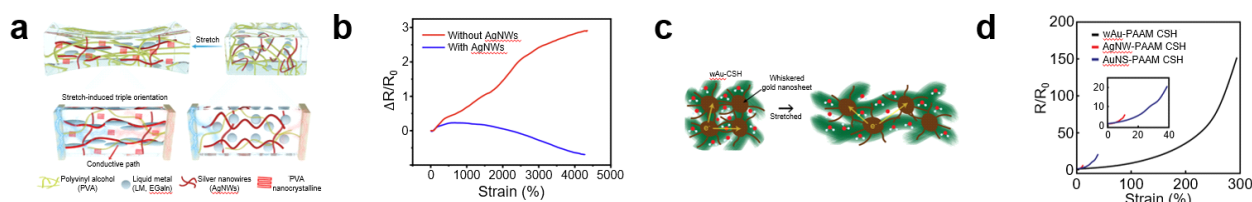


Fig. 1. Metallic-filler based nanocomposite hydrogels. (a) Schematic illustration of stretch-induced triple orientation in the PAL hydrogels. Adapted with permission from [16]. Copyright 2024, Wiley-VCH GmbH. (b) Resistance changes as a function of tensile strain for PVA, PAL-1, PAL-2, and PAL-3 hydrogels. (c) Schematic illustration of wAu-CSH. Adapted with permission from [17]. Copyright 2024, Wiley-VCH GmbH. (d) Resistance changes as a function of tensile strain for wAu-PAAm CSH, AgNW-PAAm CSH, and AuNS-PAAm CSH.



명적인 단점이 존재한다. 또한 액체 금속의 불균일한 분산, 표면 산화 문제, 계면 안정성 등은 여전히 해결해야 할 과제로 남아 있다.

예를 들어, 폴리바이닐알코올(poly(vinyl alcohol), PVA-LM) 기반의 하이드로젤과 액체 금속을 혼합한 전도성 나노복합체는 높은 전기전도도를 지니지만 낮은 인장 응력(tensile stress), 인성(toughness)과 같은 단점이 존재한다. 이를 해결하기 위해서, Weihua Li 그룹에서는 액체 금속 미세방울(LM microdroplets)을

탄닌산(tannic acid, TA)에 포접(embedding)시켜 폴리바이닐알코올 기반의 하이드로젤 복합체를 제작하였다. 단순히 기계적 강도(mechanical strength)를 개선하기 위한 가교제(crosslinker)로서 액체 금속 미세방울을 사용하는 것이 아닌 자체 소결 방식을 이용하여, 액체 금속의 높은 전기전도도를 최대로 활용할 수 있도록 하였다(Fig. 2(a))[18]. 폴리바이닐알코올 매트릭스 용액에서 다양한 크기의 액체 금속 미세방울들이 고르게 분포하며, 큰 미세방울은 중력에 의해 바닥으로 침전

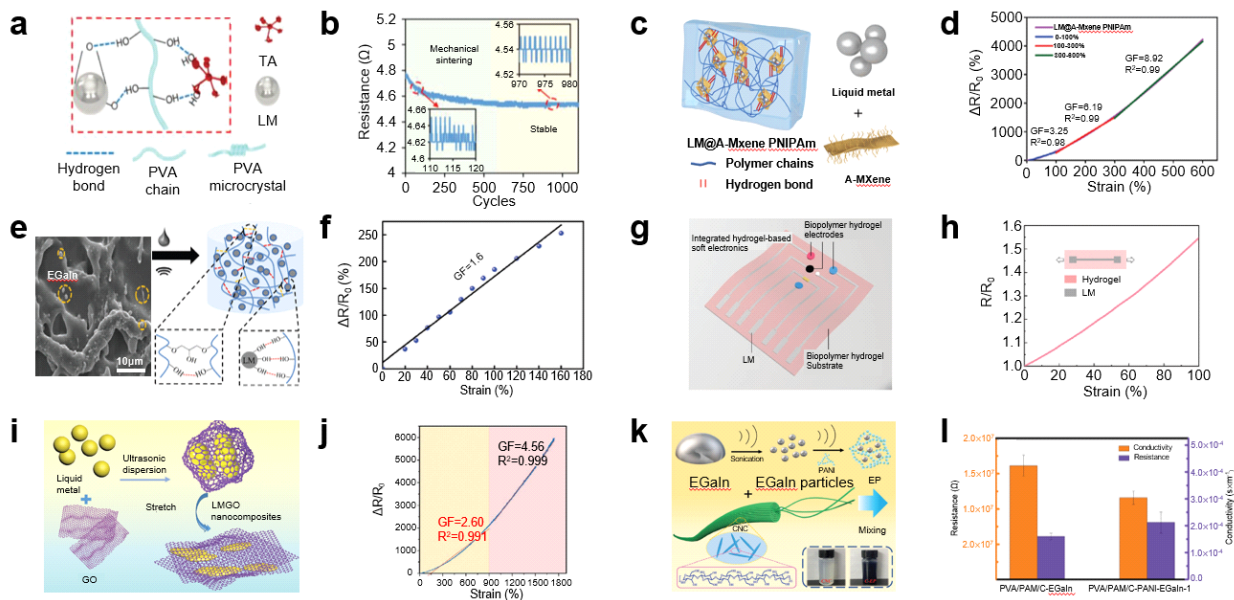


Fig. 2. LM-based nanocomposite hydrogels. (a) Schematic illustration of PVA-LM-FT hydrogel network. Adapted with permission from [18]. Copyright 2024, Wiley-VCH GmbH. (b) The resistance response of organohydrogel under cyclic stretching for 1,000 cycles. (c) Schematic illustration of LM@A-Mxene integrated PNIPAm hydrogels. Adapted with permission from [19]. Copyright 2024, Wiley-VCH GmbH. (d) Relative resistance variation of the conductive hydrogel. (e) SEM image in the cross section and schematic illustration of the CHACC-LM-0.6 hydrogel. Adapted with permission from [20]. Copyright 2022, Wiley-VCH GmbH. (f) Resistance change of CHACC-LM-0.6 hydrogel. (g) Illustration of integrated hydrogel-soft electronics. Adapted with permission from [21]. Copyright 2022, Wiley-VCH GmbH. (h) Relative resistance change of the strain sensor. (i) Illustration of the fabrication of P-LMGO hydrogel with LMGO nanocomposite fillers. Adapted with permission from [22]. Copyright 2021, Wiley-VCH GmbH. (j) A graph showing performances of P-LMGO-2-based sensors. (k) Illustration of the fabrication process of C-EP (Cellulose nanocrystals and EGaIn/PANI complex). Adapted with permission from [23]. Copyright 2022, Wiley-VCH GmbH. (l) Resistance and conductivity of PM/C-E and PM/C-EP-1 hydrogel.



된다. 바닥에 농축된 액체 금속 미세방울들은 서로 압착되고 표면의 산화막이 파괴되어 액체 금속 브릿지가 형성된다. 그 결과 초기 상태에서는 $2,179 \text{ S cm}^{-1}$ 의 우수한 전기전도도와 소결이 완료된 후 높은 신축 사이클을 보인다(Fig. 2(b)).

액체 금속은 높은 전기전도도를 가지는 반면 하이드로젤 내부에서 쉽게 산화되고 탈합금(dealloyed)되는 한계점이 존재한다. 따라서, 기존의 연구들은 유기 캡슐화(encapsulating) 물질이나 무기 물질을 사용하지만 이는 낮은 전기전도도, 하이드로젤 매트릭스와의 낮은 상용성과 같은 문제점을 초래한다. 이를 해결하기 위해, Ling Wang 연구그룹에서는 초음파(ultrasonic) 환경에서 A-MXene로 캡슐화된 액체 금속 나노방울을 폴리(N-아이소프로필아크릴아마이드)(poly(N-isopropylacrylamide, PNIPAm) 하이드로젤과 공중합(copolymerization)하였다. A-MXene의 아미노 작용기는 액체 금속 나노방울에 Ga^{3+} 와 결합하여, 높은 안정성과 상용성을 나타낸다(Fig. 2(c))[19]. 해당 하이드로젤 복합체는 610%의 최대 신장률을 나타내며, 센서의 성능을 나타내는 인장 변형(strain) 대비 저항 변화량인 게이지 팩터(Gauge factor) 또한 인장 변형에 따라 3.25에서 8.92로 측정됐다(Fig. 2(d)).

이와 더불어, Yingchun Li 연구 그룹은 키토산 4급 암모늄염(HACC)과 가교결합한 LM(CHACC-LM)을 제작하는 간단한 합성 방법을 선택했다. HACC를 에피클로로하이드린으로 화학적으로 가교해 CHACC 하이드로젤 기질을 만든다. 이 용액에 글리세롤을 첨가해 점성을 높인 뒤, 액체 금속을 초음파로 분산시켜 용액을 형성한다(Fig. 2(e))[20]. 이후 고온에서 열처리하여 제작된 CHACC-LM은 단순히 전기전도도를 향상시키는 것을 제외하고도 기계적 강성, 항균 특성(antibacterial properties) 또한 증가시킨다. 해당 하이드로젤은 233%의 신장률, 0.006 S cm^{-1} 의 전기전도도 특성을 나타냈다. 또한 신체 관절 움직임을 실시간으

로 감지할 수 있는 웨어러블 센서로 활용 가능하며, 게이지 팩터는 1.6으로 선형으로 안정적인 것을 확인할 수 있다(Fig. 2(f)).

이와 유사하게, 다음 연구에서는 젤라틴과 알지네이트를 글리세롤과 함께 혼합하여, 젤라틴-알지네이트(gelatin-alginate) 기반의 천연 하이드로젤을 제작하였다. 이 하이드로젤 위에 패터닝된 액체 금속을 스텐실 프린팅으로 형성하여, 높은 전도성과 유연성을 갖는 유연 전자의 기판을 제작하였다(Fig. 2(g))[21]. 제작된 기판은 변형률(strain) 센서로 제작되어, 단축 변형에서도 거의 선형인 상대적 저항변화를 나타냈고 게이지 팩터는 0.55로 측정되었다. 기존의 변형률 센서와 비교하였을 때, 본 연구의 변형률 센서는 0.5%의 작은 변형으로도 탐지할 수 있는 높은 민감도를 가진다(Fig. 2(h)).

액체 금속은 강한 유동성 덕분에 신축성 있는 소재를 설계하기에 용이하지만 유동성과 고분자 매트릭스와의 상용성 문제로 인해 강한 하이드로젤을 만드는 것을 어렵게 한다. 이를 해결하기 위해, Linxin Zhong 연구그룹에서는 그래핀 옥사이드(graphene oxide)로 캡슐화된 액체 금속 방울을 사용하였다. 그래핀옥사이드 나노시트는 액체 금속과 고분자 매트릭스와 강한 결합을 형성하여, 액체 금속 방울이 파괴되거나 고분자 매트릭스로 흐르는 것을 막는 안정적인 쉘(shell)을 형성한다(Fig. 2(i))[22]. 고분자 매트릭스로 사용된 폴리아크릴아마이드/소듐 알지네이트(polyacrylamide/ sodium alginate) 이중 네트워크 구조는 폴리아크릴아마이드의 강한 공유 가교결합과 부드럽지만 가역적 가교결합 네트워크의 특성을 모두 포함한다. 제작된 P-LMGO 하이드로젤은 강한 신장률(1,240%), 강한 인성(300 kPa), 0.036 S m^{-1} 의 전기전도도, 게이지 팩터는 신장률에 따라 각각 2.60, 4.56을 나타냈다(Fig. 2(j)).

이와 유사하게, 액체 금속과 폴리아닐린(PANI) 복합체(EP)에 광 흡수체로 셀룰로오스 나노결정(CNCs)



을 분산제로 활용하여 태양열을 포함한 멀티 센서를 제조한 연구사례도 보고되었다. 이중 네트워크에 통합된 액체 금속은 재료에 우수한 기계적, 광열 변환 및 전기적 특성을 부여한다(Fig. 2(k))[23]. 또한 제작된 하이드로젤 전도체의 전기전도도가 $1.60 \times 10^{-4} \text{ S m}^{-1}$ 를 나타내며, PANI가 첨가되었을 경우 $2.12 \times 10^{-4} \text{ S m}^{-1}$ 까지 도달할 수 있는 것을 확인할 수 있다(Fig. 2(l)).

2.3. 이온성 하이드로젤 나노복합체

한편, 이온성 액체(ionic liquid)는 유기 양이온과 유기 또는 무기 음이온으로 구성되어, 상온 또는 비교적 낮은 온도에서 액체 상태를 유지하는 염을 의미한다. 이온성 액체를 하이드로젤에 용매로 도입하여, 우수한 이온 전도성을 지니고 열적, 전기적 안정성이 높은 이온성 액체 하이드로젤로 제작된다. 또한 이온성 액체는 하이드로젤 고분자 사슬과 수소 결합, 배위 결합 등 다양한 결합을 형성하여 가교제의 역할을 수행할 수 있다. 이는 고분자 네트워크의 기계적 안정성을 향상시킬 뿐만 아니라, 자가 치유, 접착성과 같은 다기능을 부여하는 핵심 원리가 된다. 결과적으로, 이온성 액체의 종류에 따라, 탄성률(modulus), 점탄성(viscoelasticity), 계면 특성 등의 다양한 물성을 제어 가능하다.

이와 관련하여, Changyu Shen 연구그룹에서 보고한 연구를 살펴보면, 낮은 이력 현상(hysteresis)과 높은 투명성을 갖춘 반상호 침투 고분자 이온성 액체(PATV) 하이드로젤을 개발하고, 이를 다기능 웨어러블 센서로 활용했다. 아크릴아마이드와 VBIMBF₄의 제자리 중합(*in situ* polymerization)을 통해 PATV 하이드로젤을 개발했으며, 하이드로젤 네트워크 내의 고분자 이온성 액체(poly(ionic liquid), PIL)가 물리적 가교점 역할을 하여 강력한 수소결합을 형성한다(Fig. 3(a))[24]. 이 네트워크는 변형 에너지를 효율적이고 빠르게 소산시켜 높은 인장 특성(900%)과 낮은 이력 현상(9%)을 반영한다. 또한 높은 감도로 제작된 센서

는 게이지 팩터가 10.4에 도달할 만큼 우수한 성능을 나타낸다(Fig. 3(b)).

하이드로젤은 큰 변형 상황이나 극한 온도 조건에서 전도성이 불안정해지는 고질적인 한계를 지닌다. Lei et al.은 이러한 문제를 해결하기 위해 분자 시너지 효과를 활용한 전도성 썬비터 이온성 나노채널(PDMAPS/IL)과 동적 수소 결합 네트워크(PAA)을 가진 하이드로젤을 제작하였다. 썬비터 이온 채널이란 이온성 액체와 유사한 구조를 가진 썬비터 이온(zwitterion, PDMAPS)을 사용하여 전하 운반체가 안정적으로 고정되는 나노 채널을 형성함으로써, 누출 및 응집을 방지한다(Fig. 3(c))[25]. 이 재료는 10,000% 이상의 초신축성, 2 MPa 이상의 높은 탄성 계수, 고투명성, 자가 치유력을 동시에 달성한다. 추가적으로, 이 전도체는 1,000%에 달하는 인장 변형 상황과 넓은 온도 범위에서 전도성 안정성을 유지하는 특성을 보인다(Fig. 3(d)).

추가적으로, 고농도의 금속 이온과 썬비터 이온 사이의 상용성을 향상시켜, 배위 결합 형성(coordination bond)을 유도한 연구결과도 보고되었다. 본 연구에서는 전자빔 조사(electron beam irradiation)를 이용해 할로메탈레이트 이온성 액체(halometallate ionic liquid)와 썬비터 이온을 무작위 공중합(random copolymerization)하여 다기능 하이드로젤을 제작하였다. 금속 이온에 이온성 액체를 도입함으로써 전하의 균일성을 높이고, 안정적인 가교 네트워크를 형성한다(Fig. 3(e))[26]. 이렇게 형성된 배위 결합과 수소 결합을 포함한 다양한 상호작용의 시너지 효과는 하이드로젤에 높은 신장성, 압축 강도, 등을 부여한다. 또한 다음 재료로 제작된 센서는 안정적이고 높은 게이지 팩터(1.37)를 가진다(Fig. 3(f)).

기존 하이드로젤은 높은 수분 함량으로 인해 쉽게 부피가 변하는 팽윤(swelling) 문제가 있었는데, Han et al.은 이를 해결하기 위해 소수성 단량체(hydropho-

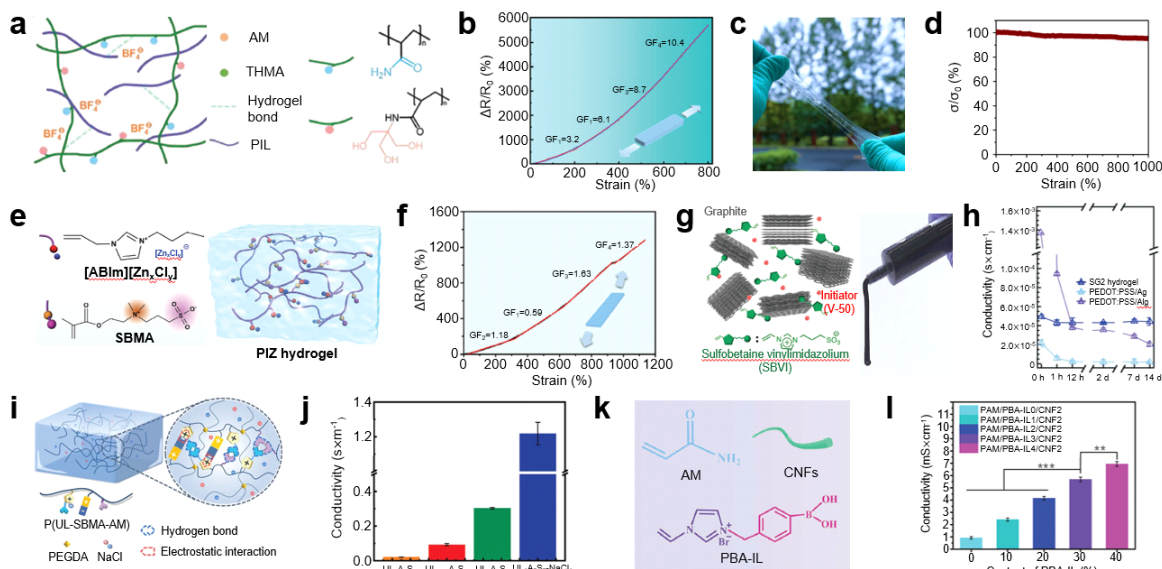


Fig. 3. Ionic nanocomposite hydrogels. (a) Schematic illustrations of the preparation and multiple interaction with the PATV hydrogel. Adapted with permission from [24]. Copyright 2024, Wiley-VCH GmbH. (b) Relative resistance changes and gauge factor of PATV hydrogel under different strains. (c) A photograph of the ultra-stretchable conductor introducing synergistic effect between conductive zwitterionic nano-channels and hydrogen bonding networks. Adapted with permission from [25]. Copyright 2019, Springer Nature. (d) A graph representing the stability of the ionic conductivity under the deformation process. (e) Schematic preparation of the PIZ hydrogel (poly IL-assisted-zwitterionic hydrogel). Adapted with permission from [26]. Copyright 2025, Wiley-VCH GmbH. (f) Relative resistance changes of PIZ hydrogel. (g) Schematic composition of SG hydrogel (poly (SBVI)-graphene hydrogel). Adapted with permission from [27]. Copyright 2023, Wiley-VCH GmbH. (h) Conductivity of SG hydrogel, PEDOT:PSS/agarose hydrogel, and PEDOT:PSS/alginate hydrogel over a period of 14 d in water. (i) Schematic illustration of ULAS (ureido backbone, betaine sulfonate methacrylate, and acrylamide) hydrogel. Adapted with permission from [28]. Copyright 2024, Wiley-VCH GmbH. (j) A diagram showing ionic conductivity of the hydrogels in different conditions. (k) Schematic preparation of fabricating PAM/PBA-IL/CNF hydrogel. Adapted with permission from [29]. Copyright 2022, Wiley-VCH GmbH. (l) Conductivity of PAM/PBA-IL/CNF with varying PBA-IL content at 25°C.

bic monomer)와 이온성 액체를 조합하여 비팽윤성(non-swelling) 네트워크를 설계하였다. 이 하이드로젤은 고분자-이온 복합 네트워크를 형성하며, 내부 수분을 안정적으로 유지해 수중 및 고습도 환경에서도 형태 변화가 거의 없는 특성을 보였다. 전기전도성 향상을 위해 그래핀 옥사이드를 첨가하였는데, 이는 전하 이동 경로(electron conduction path)를 제공하여 이온성 액체의 이온전도도와 결합된 복합적인 네트워크를 형성한다(Fig. 3(g)) [27]. 그래핀의 π - π 결합과 고분자 사

슬 내 아마이드기, 이온성 작용기 사이의 결합은 네트워크 결합력을 높여 기계적 안정성 및 점탄성 회복력을 강화했다. 또한 순수한 이온전도도($4.9 \times 10^{-3} \text{ S m}^{-1}$)를 유지하면서도, 전단 및 인장 변형이 가해져도 신호 손실이 거의 없는 안정적인 전기적 특성을 보였다(Fig. 3(h)).

이와 유사하게, 이미다졸리움 기반 우레이도 이온성 액체(imidazolium based ureido ionic liquid)를 주 단량체로 하여 베타인 설포네이트 메타크릴레이트(betaine



sulfonate methacrylate, SBAA)와 아크릴아마이드를 함께 원팟 공중합(one-pot copolymerization) 방식으로 합성한 연구결과도 보고되었다(Fig. 3(i))[28]. 이온성 액체의 음이온-양이온 쌍은 자유롭게 이동해 높은 전기전도도(1.2 S m^{-1})를 부여하며, 우레이도기와 쯔비터 이온, 아크릴아마이드 사슬 간의 다중 수소결합으로 기계적 강도를 강화한다. 또한 동적 가교 결합을 형성하여, 자가치유 및 접착력(11.9 kPa)을 구현한다. 특히 비접촉식 심전도 측정 시스템(electrocardiogram system)에서도 기존 하이드로젤보다 다중 수소결합으로 수분 유지력이 높아 장시간 안정적인 심전도 측정이 가능했다(Fig. 3(j)).

Yao et al.은 PBA-IL(phenylboronic acid-ionic liquid) 단량체, 아크릴아마이드, 그리고 셀룰로오스 나노섬유(CNF)를 이용하여 하이드로젤을 합성하였다. 이때 PBA의 보론산기는 폴리에틸렌 글리콜 및 수산기와 가역적인 보론산 에스터 결합을 형성함으로써 자가치유성 및 접착성을 부여하였다. 또한, 셀룰로오스 나노섬유의 음전자 표면($-\text{COO}^-$)이 고분자 네트워크와 결합해 기계적 강도(349 kPa), 신장률(1,810%)을 동시에 향상시켰다(Fig. 3(k))[29]. 이와 더불어, 이온성 액체는 전하 운반체로 작용하여 우수한 이온전도도(6.94 mS cm^{-1})로 높이고, 수소결합을 통해 유연성까지 개선시켰다(Fig. 3(l)). 다음 재료로 제작된 센서의 게이지 팩터는 8.36을 나타냈으며, 500회 반복 변형 후에도 안정된 전기신호를 유지했다.

24. 전도성 폴리머 하이드로젤 나노복합체

하이드로젤의 전기전도도를 향상시키기 위해 고분자 매트릭스에 전도성 필러를 도입하는 연구가 진행되고 있다. 일반적으로 전도성 필러는 하이드로젤 매트릭스 전체에 분산되어 존재한다. 하이드로젤의 전기전도도를 향상시키기 위해서는 이러한 전도성 필러들이 밀접하게 접촉되어야 한다. 하지만 하이드로젤의

높은 수분 함량은 이를 방해하여 금속 입자와 같은 전도성 필러의 퍼콜레이션 네트워크(percolation network)가 형성되지 않도록 유도한다. 물에 분산된 형태로 존재하는 전도성 고분자는 다른 필러들에 비해 퍼콜레이션 네트워크 형성에 덜 민감하여 널리 사용된다.

Tropp et al.은 탑다운(Top-down) 산 기반 비용매 유도 상 분리(nonsolvent induced phase separation, NIPS) 공정을 이용하여, 하이드로젤 내에서 우수한 분산성을 지닌 산 결정화된 폴리(3,4-에틸렌디옥시티오펜):폴리(스타이렌설풀산)(poly(3,4-ethylenedioxythiophene):poly(styrene sulfonate), PEDOT:PSS) 나노입자(ncryst-PEDOT_x)를 개발했다. 본 연구에서는 이소프로판올(isopropanol, IPA)과 황산(H_2SO_4)으로 구성된 응고 용액에 상업용 PEDOT:PSS(Clevios PH1000)를 첨가하여 PSS 함량을 조절할 수 있는 고농도 PEDOT으로 응집시켰다(Fig. 4(a))[30]. 황산의 농도가 5 vol.%인 ncryst-PEDOT₅와 20 vol.%인 ncryst-PEDOT₂₀의 전기전도도 측정 결과, 4 S cm^{-1} 인 동결건조 PEDOT:PSS에 비해 ncryst-PEDOT₅와 ncryst-PEDOT₂₀는 각각 87 S cm^{-1} 과 410 S cm^{-1} 로 매우 높은 전기전도도 값을 나타냈다(Fig. 4(b)). 전도성 PEDOT과 절연성 PSS의 분리를 안정화시키는 황산의 농도가 증가함에 따라 PSS의 제거와 PEDOT의 결정화가 증가하며, 이로 인해 ncryst-PEDOT_x의 전기전도도가 향상된다.

비전도성 하이드로젤 템플릿과 전도성 나노필러를 혼합시킨 전도성 하이드로젤을 하나의 재료로 구성된 전도성 하이드로젤로 대체함으로써 전기전도도를 향상시킬 수 있다.

Lu et al.은 다른 재료의 혼합 없이 PEDOT:PSS 나노섬유들이 상호 연결된 네트워크로 구성된 순수 PEDOT:PSS 하이드로젤을 개발했다. 본 연구에서는 PEDOT:PSS 수용액에 휘발성 첨가제인 디메틸설풀사이드(dimethyl sulfoxide, DMSO)를 첨가하고, 제어된 조건에서 건조 어닐링 과정과 재수화 과정을 거쳐 순



수 PEDOT:PSS를 구현했다. 건조 과정에서 PEDOT:PSS의 농도가 증가하고, 어닐링 과정에서 PEDOT이 풍부한 나노섬유들의 재결정화와 PEDOT과 PSS의 사슬 재배열이 발생한다(Fig. 4(c))[31]. DMSO의 농도에 따른 순수 PEDOT:PSS 하이드로젤의 전기전도도 측정 결과, 인산완충생리식염수(phosphate buffered saline, PBS)와 탈이온수 내에서 가장

높은 전기전도도는 각각 20 S cm^{-1} 과 40 S cm^{-1} 였으며, 이는 DMSO 13 vol.%에서 나타났다(Fig. 4(d)). 적정량의 DMSO 첨가는 더 많은 PEDOT:PSS 나노섬유들이 상호 연결된 네트워크를 가능하게 하지만, 과량의 DMSO 첨가는 PEDOT:PSS 나노섬유들의 적합하

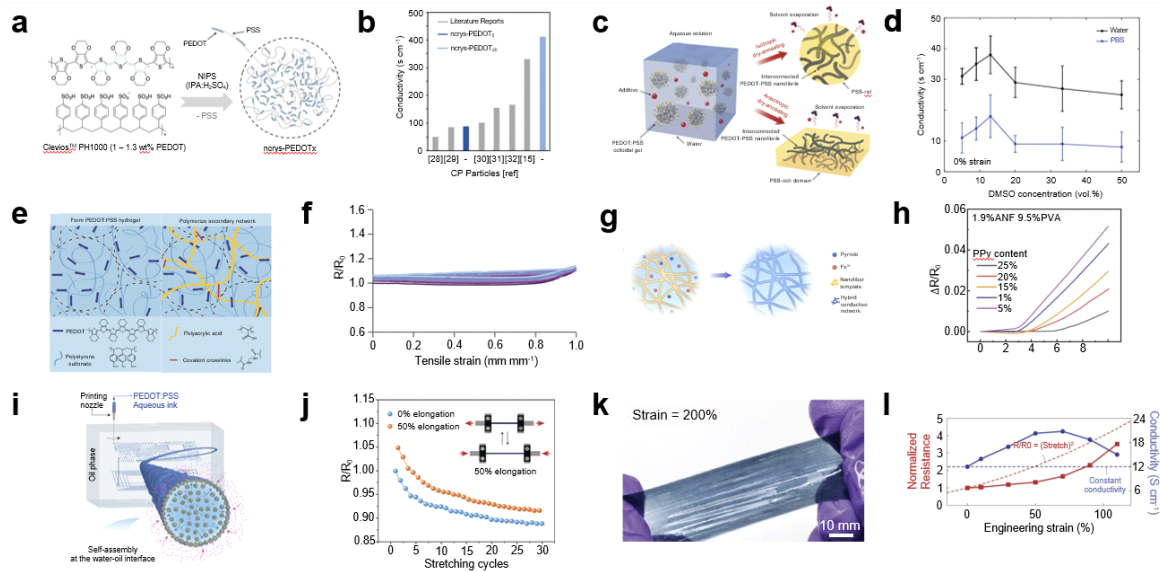


Fig. 4. Conducting Polymer-based nanocomposite hydrogels. (a) Schematic illustration of the conversion of PEDOT:PSS into acid-crystallized, dispersible nanoparticles (ncrys-PEDOT_x) via nonsolvent-induced phase separation (NIPS). Adapted with permission from [30]. Copyright 2024, Wiley-VCH GmbH. (b) Comparison of the electrical conductivity of ncrys-PEDOT_x with other reported conjugated polymer (CP) nanoparticles. (c) Schematic illustration of the dry-annealing processes of PEDOT:PSS with DMSO as the additive. Adapted with permission from [31]. Copyright 2019, Springer Nature. (d) Comparison of the electrical conductivity of pure PEDOT:PSS hydrogels both in deionized water and in PBS with varying DMSO concentrations. (e) Schematic illustration of the process for fabricating C-IPN hydrogels. Adapted with permission from [32]. Copyright 2023, Springer Nature. (f) Resistance normalized to the initial resistance of a C-IPN 2 gel under cyclic tensile strain between 0% and 100% for 10 cycles. (g) Schematic illustration of the synthesis of percolated polypyrrole (PPy) network guided by the nanofiber template. Adapted with permission from [33]. Copyright 2023, Springer Nature. (h) Resistance changes as a function of tensile strain for conductive nanofiber hydrogels (CNHs) with various PPy content. (i) Schematic illustration of the 3D printing of PEDOT:PSS-based aqueous threads in an oil. Adapted with permission from [34]. Copyright 2023, Springer Nature. (j) Resistance normalized to the initial resistance of a dry-annealed gel (ink 5*) under cyclic tensile strain between 0% and 50% for 30 cycles. (k) Images of the fully swollen bi-continuous conducting polymer hydrogel (BC-CPH) with 25 w/w% PEDOT:PSS at engineering strain of 200%. Adapted with permission from [35]. Copyright 2018, Springer Nature. (l) Resistance normalized to the resistance of non-deformed state (R/R_0 , left axis) and conductivity (right axis) changes as a function of tensile strain for BC-CPH.



지 않은 응집을 야기하여 전기전도도가 감소할 수 있다. 순수 전도성 고분자 하이드로젤에 2차 고분자 네트워크를 형성하는 전구체를 첨가하여 전기적 특성과 기계적 특성을 향상시킬 수 있다.

Feig et al.은 느슨하게 가교된 PEDOT: PSS 하이드로젤에 2차 고분자 네트워크로 폴리아크릴산(poly(acrylic acid), PAAc)를 첨가하여 전도성 상호침투 네트워크(conducting interpenetrating networks, C-IPNs)를 지닌 하이드로젤을 개발했다(Fig. 4(e))[32]. 본 연구에서는 생체적합성이 뛰어나고, 고농도의 수소 결합을 가능하게 하는 PAAc의 사용으로 하이드로젤의 기계적 특성을 향상시켰다. C-IPN 젤의 인장 사이클에 따른 저항 변화 측정 결과, 저항 변화가 거의 나타나지 않았다(Fig. 4(f)). 이는 PEDOT:PSS 젤이 연속된 구조이며, 수분 함량이 높은 환경에서 C-IPN에 변형이 가해질 때 PAAc 네트워크의 재배향이 발생한다고 해석할 수 있다.

이중 연속 구조를 지닌 전도성 고분자 하이드로젤을 구현하여 우수한 전기적 특성과 기계적 특성을 확보할 수 있다. Zhou et al.은 전기적 상인 PEDOT:PSS와 기계적 상인 친수성 폴리우레탄으로 구성된 상분리 잉크에 의해 제작된 이중 연속 전도성 고분자 하이드로젤(bi-continuous conducting polymer hydrogel, BC-CPH)을 개발했다[35]. 본 연구에서 BC-CPH 잉크는 전기적 상과 기계적 상이 적절히 상분리되어 두 상이 동시에 존재하며, 잉크의 용매를 증발시키는 과정에서 이중 연속 상이 형성된다. BC-CPH에 인장력을 가했을 때, BC-CPH는 이중 연속 상을 유지하며 200% 인장 변형 시에도 회복 가능한 탄성 변형을 나타냈다(Fig. 4(g))[33]. 이처럼 높은 신축성을 지닌 친수성 폴리우레탄 상이 BC-CPH의 탄성을 유지하는 역할을 수행할 수 있다. BC-CPH의 인장 변형에 따른 저항 변화 측정 결과, 50% 이하의 인장 변형 범위 내에서는 저항 변화가 거의 나타나지 않았다(Fig. 4(h)). 이는 변형이 가해

졌을 때, 전기적 상의 동적 응집과 배향에 의한 것으로 해석할 수 있다.

3차원으로 연결된 나노섬유들의 네트워크를 활용하여 우수한 기계적 특성을 지닌 전도성 하이드로젤을 구현할 수 있다. He et al.은 아라미드 나노섬유들(aramid nanofibers, ANFs)이 자가 조립된 3차원 네트워크를 활용하여 전도성 나노섬유 하이드로젤(conductive nanofiber hydrogels, CNHs)을 개발했다. 본 연구에서는 DMSO에 분산시킨 ANFs를 물로 용매 교환하여 3차원 나노섬유 네트워크를 지닌 하이드로젤을 제작했으며, 이 과정에서 폴리비닐알코올(poly(vinyl alcohol), PVA)을 첨가했다. PVA는 수소 결합으로 나노섬유들을 접합시키며, 이로 인해 하이드로젤의 기계적 강도가 향상된다. 수용액 상태의 나노다공성 하이드로젤에 피롤(pyrrole, Py) 단량체와 산화제인 FeCl_3 를 첨가하면 Py의 중합이 진행되고, 하이브리드 전도성 네트워크를 형성한다(Fig. 4(i))[34]. 다양한 폴리피롤(polypyrrole, PPy) 함량을 가지는 CNHs의 인장 변형에 따른 저항 변화 측정 결과, 약 3%에서 6%까지의 인장 변형 범위 내에서 저항 변화가 거의 나타나지 않았다(Fig. 4(j)). 이러한 특성은 하이브리드 나노섬유 네트워크의 재배향에 의해 발생하며, 이는 전도성 경로의 위상 배치 변화 없이 인장력 수용을 가능하게 한다. 액체-내-액체 프린팅(liquid-in-liquid printing) 방식으로 복잡한 3차원 구조의 하이드로젤을 구현할 수 있다. Xie et al.은 고농도의 PEDOT:PSS로 구성된 수용성 잉크를 폴리디메틸실록산(polydimethylsiloxane, PDMS) 계면활성제로 구성된 오일 내에서 프린팅하는 간단한 액체-내-액체 프린팅 공정으로 3차원 전도성 하이드로젤을 개발했다(Fig. 4(k))[35]. 본 연구에서는 수용성 상과 오일 상의 계면에서 PEDOT: PSS 콜로이드 입자와 PDMS- NH_2 계면활성제의 자가조립을 발생시켜, PEDOT:PSS-PDMS 계면활성제(PPSs) 복합체를 형성했다. 이러한 자가조립은 PSS의 설펡산기와 오일



상의 아민기 정전기적 인력에 의해 발생한다. 프린팅된 PEDOT 하이드로젤을 건조 어닐링시킨 젤의 인장 사이클에 따른 저항 변화 측정 결과, 인장-이완 과정에서 저항이 점진적으로 감소했다(Fig. 4(l)). 이는 0%에서 50%까지의 인장 변형 범위 내에서 젤의 가역적인 인장이 PEDOT 네트워크 사이의 더 적절한 배향과 더 많은 π - π 스택킹(π - π stacking)을 형성시키는 것으로 해석할 수 있다.

3. 결론 및 전망

기존의 무기 재료 기반 전도체는 낮은 유연성으로 인해 인체 조직과 같이 지속적인 변형이 발생하는 환경에서의 적용이 제한되며, 이로 인해 무선 시스템이나 실시간 모니터링(real-time monitoring) 기술로의 확장에도 한계가 존재한다. 이에 본 원고에서는 실리콘 기반의 경성 전자소재가 지니는 한계를 극복하기 위한 대안으로 주목받고 있는 하이드로젤 전도체의 특성을 정리하고, 이들의 낮은 전기전도도와 기계적 강도를 개선하기 위한 최신 연구 동향을 고찰하였다. 특히 전도성 하이드로젤 나노복합체 제작에 활용되는 금속, 액체 금속, 이온성 액체, 전도성 폴리머 등 다양한 전도성 필러와 연계된 재료 설계 전략을 체계적으로 정리하였다. 이러한 전략은 하이드로젤 고분자 네트워크와 전도성 필러 간의 가교결합 및 수소결합 형성, 효과적인 전도 경로 확보 등 핵심적 메커니즘을 중심으로 논의되었다.

각 전도성 필러는 하이드로젤에 기계적 강도, 전기 전도도, 자가치유성 등 고유한 기능성을 부여하지만, 동시에 각 필러별 단점 또한 존재하기 때문에 이를 보완하는 방향으로 연구가 지속되고 있다. 이와 같이 제작된 전도성 하이드로젤은 웨어러블 센서로 적용될 때 변형이 가해져도 안정적인 신호를 유지하기 때문에, 심전도(ECG), 근전도(EMG), 맥박 등 다양한 생체신

호 측정 전극으로도 적용될 수 있다.

더 나아가, 하이드로젤은 높은 생체 적합성을 바탕으로 웨어러블 전자기기뿐만 아니라 생체 이식형 전자기기 등 체내에서 장기간 작동해야 하는 바이오전자 기술에도 폭넓게 활용될 수 있는 잠재력을 지니고 있어 관련 연구가 활발하게 전개되고 있다. 결론적으로, 하이드로젤 나노복합체의 발전은 웨어러블 디바이스, 바이오전자, 연성 액추에이터(soft actuator) 등 다양한 분야로 확장 가능하며, 인간의 삶과 산업 전반에 큰 영향을 미칠 수 있는 높은 미래 가치를 지닌다[36,37].

ACKNOWLEDGEMENTS

Author Contributions

MJA, SMK contributed equally to this work. SHK supervised this work. All authors read and approved the final manuscript.

Funding

Not applicable.

Declarations of Competing Interests

The authors declare that they have no competing interests.

AUTHORS



안민재
2020년~현재: 서울시립대학교 화학공학과 학사과정
[관심분야] 유연소자, 유연 전도체



김선민
2022년~현재: 서울시립대학교 화학공학과 학사과정
[관심분야] 유연소자, 유연 전도체



김선홍
2013년: 서강대학교 화학생명공학과 학사
2015년: 서울대학교 화학공학과 석사
2022년: 서울대학교 전기정보공학부 박사
2023년 5월~2025년 2월: Northwestern University QSIB 박사후연구원
2025년 2월~현재: 서울시립대학교 화학

공학과 조교수
[관심분야] 유연전자소자, 바이오전자

REFERENCES

- [1] Koo, J. H. Advances in Stretchable Functional Materials for Soft Bioelectronics. *J. Flex. Print. Electron.* 2024, 3 (2), 179-194.
- [2] Jung, H.; Lee, W.; Kang, J. Recent Progress in Printing Conductive Materials for Stretchable Electronics. *J. Flex. Print. Electron.* 2022, 1 (2), 137-153.
- [3] Jin, S.; Choi, H.; Son, D.; Shin, M. An Injectable Conductive Hydrogel for Closed-Loop and Robot-Assisted Rehabilitation via Stretchable Patch-Type Electrodes. *Nat. Protoc.* 2026, 21, 238-262.
- [4] Lee, S.; Kum, J.; Kim, S.; Jung, H.; An, S.; Choi, S. J. et al. A Shape-Morphing Cortex-Adhesive Sensor for Closed-Loop Transcranial Ultrasound neurostimulation. *Nat. Electron.* 2024, 7, 800-814.
- [5] Seong, D.; Choi, Y.; Choi, I. C.; Lee, J.; Choi, J. H.; Park, J. H. et al. Sticky and Strain-Gradient Artificial Epineurium for Sutureless Nerve Repair in Rodents and Nonhuman Primates. *Adv. Mater.* 2024, 36, 16, 2307810.
- [6] Jin, S.; Choi, H.; Seong, D.; You, C. L.; Kang, J. S.; Rho, S. et al. Injectable Tissue Prosthesis for Instantaneous Closed-Loop Rehabilitation. *Nature.* 2023, 623, 58-65.
- [7] Kim, S.; Jang, J.; Kang, K.; Jin, S.; Choi, H.; Son, D. et al. Injection-on-Skin Granular Adhesive for Interactive Human-Machine Interface. *Adv. Mater.* 2023, 35, 48, 2307070.
- [8] Kim, SD; Park, K.; Lee, S.; Kum, J.; Kim, Y.; An, S. et al. Injectable and Tissue-Conformable Conductive Hydrogel for MRI-Compatible Brain-Interfacing Electrodes. *Soft Sci.* 2023, 3, 18.
- [9] Sun, J. Y.; Zhao, X.; Illeperuma, W. R. K.; Chaudhuri, O.; Oh, K. H.; Mooney, D. J. et al. Highly Stretchable and Tough Hydrogels. *Nature.* 2012, 489, 133-136.
- [10] Chen, Y.; Li, J.; Lu, J.; Ding, M.; Chen, Y. Synthesis and Properties of Poly(vinyl alcohol) Hydrogels with High Strength and Toughness. *Polym. Test.* 2022, 108, 107516.
- [11] Ding, H.; Liu, J.; Shen, X.; Li, H. Advances in the Preparation of Tough Conductive Hydrogels for Flexible Sensors. *Polymers.* 2023, 15, 4001.
- [12] Thirumalai, D.; Santhamoorthy, M.; Kim, S. C.; Lim, H. R. Conductive Polymer-Based Hydrogels for Wearable Electrochemical Biosensors. *Gels.* 2024, 10, 459.
- [13] Mo, F.; Zhou, P.; Lin, S.; Zhong, J.; Wang, Y. A Review of Conductive Hydrogel-Based Wearable Temperature Sensors. *Adv. Healthcare Mater.* 2024, 13, 2401503.



- [14] Ohm, Y.; Pan, C.; Ford, M. J.; Huang, X.; Liao, J.; Majidi, C. An Electrically Conductive Silver-Polyacrylamide-Alginate Hydrogel Composite for Soft Electronics. *Nat. Electron.* 2021, 4, 185-192.
- [15] Lim, C.; Shin, Y.; Jung, J.; Kim, J. H.; Lee, S.; Kim, D. H. Stretchable Conductive Nanocomposite Based on Alginate Hydrogel and Silver Nanowires for Wearable Electronics. *APL Mater.* 2019, 7, 031502.
- [16] Wang, X.; Zheng, S.; Xiong, J.; Liu, Z.; Li, Q.; Li, W. et al. Stretch-Induced Conductivity Enhancement in Highly Conductive and Tough Hydrogels. *Adv. Mater.* 2024, 36 (25), 2313845.
- [17] Lim, C.; Lee, S.; Kang, H.; Cho, Y. S.; Yeom, D. H.; Sunwoo, S. H. et al. Highly Conductive and Stretchable Hydrogel Nanocomposite Using Whiskered Gold Nanosheets for Soft Bioelectronics. *Adv. Mater.* 2024, 36 (39), 2407931.
- [18] Zhang, Q.; Lu, H.; Yun, G.; Gong, L.; Chen, Z.; Jin, S., et al. A Laminated Gravity-Driven Liquid Metal-Doped Hydrogel of Unparalleled Toughness and Conductivity. *Adv. Funct. Mater.* 2024, 34 (31), 2308113.
- [19] Ma, S.; Xue, P.; Valenzuela, C.; Zhang, X.; Chen, Y.; Liu, Y. et al. Highly Stretchable Conductive MXene-Encapsulated Liquid Metal Hydrogels for Bioinspired Self-Sensing Soft Actuators. *Adv. Funct. Mater.* 2024, 34 (7), 2309899.
- [20] Wang, C.; Li, J.; Fang, Z.; Hu, Z.; Wei, X.; Cao, Y. et al. Temperature-Stress Bimodal Sensing Conductive Hydrogel-Liquid Metal by Facile Synthesis for Smart Wearable Sensor. *Macromol. Rapid Commun.* 2022, 43, 2100543.
- [21] Hao, X. P.; Zhang, C. W.; Zhang, X. N.; Hou, L. X.; Hu, J.; Dickey, M. D. et al. Healable, Recyclable, and Multifunctional Soft Electronics Based on Biopolymer Hydrogel and Patterned Liquid Metal. *Small*, 2022, 18 (23), 2201643.
- [22] Hu, Y.; Zhuo, H.; Zhang, Y.; Lai, H.; Yi, J.; Chen, Z. et al. Graphene Oxide Encapsulating Liquid Metal to Toughen Hydrogel. *Adv. Funct. Mater.* 2021, 31 (51), 2106761.
- [23] Wei, Z.; Wang, Y.; Cai, C.; Zhang, Y.; Guo, S.; Fu, Y. et al. Dual-Network Liquid Metal Hydrogel with Integrated Solar-Driven Evaporation, Multi-Sensory Applications, and Electricity Generation via Enhanced Light Absorption and Bénard-Marangoni Effect. *Adv. Funct. Mater.* 2022, 32 (41), 2206287.
- [24] Han, S.; Hu, Y.; Wei, J.; Li, S.; Yang, P.; Mi, H. et al. A Semi-Interpenetrating Poly(Ionic Liquid) Network-Driven Low Hysteresis and Transparent Hydrogel as a Self-Powered Multifunctional Sensor. *Adv. Funct. Mater.* 2024, 34 (32), 2401607.
- [25] Lei, Z.; Wu, P. A Highly Transparent and Ultra-Stretchable Conductor with Stable Conductivity during Large Deformation. *Nat. Commun.* 2019, 10, 3429.
- [26] Jiang, J.; Zhao, L. Halometallate Ionic Liquid Dynamically Regulates Zwitterionic Hydrogels by Synergistic Multiple-Bond Networks. *Adv. Funct. Mater.* 2025, 35 (12), 2417688.
- [27] Han, I. K.; Song, K. I.; Jung, S. M.; Jo, Y.; Kwon, J.; Chung, T. et al. Electroconductive, Adhesive, Non-Swelling, and Viscoelastic Hydrogels for Bioelectronics. *Adv. Mater.* 2023, 35 (4), 2203431.
- [28] Ji, R.; Yan, S.; Zhu, Z.; Wang, Y.; He, D.; Wang, K. et al. Ureido-Ionic Liquid Mediated Conductive



- Hydrogel: Superior Integrated Properties for Advanced Biosensing Applications. *Adv. Sci.* 2024, 11 (33), 2401869.
- [29] Yao, X.; Zhang, S.; Qian, L.; Wei, N.; Nica, V.; Coseri, S. et al. Super Stretchable, Self-Healing, Adhesive Ionic Conductive Hydrogels Based on Tailor-Made Ionic Liquid for High-Performance Strain Sensors. *Adv. Funct. Mater.* 2022, 32 (33), 2205565.
- [30] Tropp, J.; Collins, C. P.; Xie, X.; Daso, R. E.; Mehta, A. S.; Patel, S. P. et al. Conducting Polymer Nanoparticles with Intrinsic Aqueous Dispersibility for Conductive Hydrogels. *Adv. Mater.* 2024, 36 (1), 2306691.
- [31] Lu, B.; Yuk, H.; Lin, S.; Jian, N.; Qu, K.; Xu, J. et al. Pure PEDOT:PSS Hydrogels. *Nat Commun.* 2019, 10, 1043.
- [32] Feig, V. R.; Tran, H.; Lee, M.; Bao, Z. Mechanically Tunable Conductive Interpenetrating Network Hydrogels that Mimic the Elastic Moduli of Biological Tissue. *Nat. Commun.* 2018, 9, 2740.
- [33] He, H.; Li, H.; Pu, A.; Li, W.; Ban, K.; Xu, L. Hybrid Assembly of Polymeric Nanofiber Network for Robust and Electronically Conductive Hydrogels. *Nat. Commun.* 2023, 14, 759.
- [34] Xie, X.; Xu, Z.; Yu, X.; Jiang, H.; Li, H.; Feng, W. Liquid-in-Liquid Printing of 3D and Mechanically Tunable Conductive Hydrogels. *Nat. Commun.* 2023, 14, 4289.
- [35] Zhou, T.; Yuk, H.; Hu, F.; Wu, J.; Tian, F.; Roh, H. et al. 3D Printable High-Performance Conducting Polymer Hydrogel for All-Hydrogel Bioelectronic Interfaces. *Nat. Mater.* 2023, 22, 895-902.
- [36] Ying, B.; Liu, X. Skin-Like Hydrogel Devices for Wearable Sensing, Soft Robotics and Beyond. *iScience.* 2019, 24, 103174.
- [37] Zhou, Y.; Wan, C.; Yang, Y.; Yang, H.; Wang, S.; Dai, Z. et al. Highly Stretchable, Elastic, and Ionic Conductive Hydrogel for Artificial Soft Electronics. *Adv. Funct. Mater.* 2019, 29, 1, 1806220.