

# 높은 민감도를 가지는 스트레인 센서의 제작을 위한 2차원 형태의 전도성 소재의 활용

Application of the Two-Dimensional, Electrically Conductive  
Materials for Enhancing Sensitivity of the Strain Sensor

이상우 | Sang Woo Lee

Product R&D Center, Hanwha Solutions Corp. R&D Institute,  
76 Gajeong-ro, Yuseong-gu, Daejeon 34128, Korea  
E-mail: sangwoo210@gmail.com

## 1. 서론

최근 헬스케어에 대한 세계적 관심과 더불어 다양한 종류의 착용이 가능한 기기(웨어러블 디바이스)들이 개발 및 상용화가 되면서 웨어러블 센서에 대한 연구 또한 매우 활발히 진행되고 있다.<sup>1,3</sup> 인체에 직, 간접적으로 부착하거나, 혹은 인체의 움직임을 모사하는 다양한 종류의 로봇 등에 적용하기 위해서는 다양한 부위에 착용이 가능한 폼팩터와 이를 뒷받침할 수 있는 유연한 소재, 그리고 여러가지의 관측 가능한 물리량 중에서 압력, 온도, 습도, 변형을 감지할 수 있는 센서 소재를 중심으로 연구가 이뤄지고 있다.

여러 가지의 물리량 중에서도, 변형은 주로 대상의 움직임을 감지하는 물리량으로, 작게는 맥박 등의 미세한 진동부터 크게는 팔꿈치, 무릎 등의 주요 관절 부의 움직임을 알 수 있다. 특히 인장 변형을 감지할 수 있는 센서, 즉 스트레인 센서는 현재 인장 변형에 따라 저항값이 변하는 piezo-resistive한 특성을 가지는 금속 및 반도체 소재를 이용하여 제작이 되고 있으나, 이들 소재의 높은 가격과 밀도, 그리고 딱딱한 (brittle and stiff) 특성으로 인해 적용 가능한 착용 부위가 제한되어 있다.<sup>4</sup> 이러한 기존 소재들의 단점을 보완하기 위하여 최근 연구에서는 금속나노입자를 이용하거나, 가벼운 탄소나노소재를 첨가하여 높은 전도성을 가지는 소재를 제작하고, 이를 유연한 고분자와 복합화하여 보다 유연한 특성을 가지는 센서를 제조하는 연구가 집중적으로 진행되고 있다.<sup>1,2,4</sup>

스트레인 센서의 기본적인 원리는 다음과 같다. 물체의 변형이 증가함에 따라 물체에 부착된 센서에 포함되어 있는 전도성 소재도 변형 되면서 거시적으로 전도성 소재 간의 연결이 점차 끊기면서 줄어들게 되고, 동시에 전체적인 전류의 이동 경로가 증가하면서 저항 값이 상승하게 된다. 이렇게 변화된 저항값을 측정함으로써 센서와 센서가 부착되어 있는 물체의 변형 정도를 알 수 있는 원리이다. 따라서 변형에 따라 저항값이 비례하여 증가하는 piezo-resistive한 성질을 가지는 소재가 많이 쓰인다. 센서에 과량의 전도성 소재가 얹혀있는 상태라면, 그만큼 변형에 따라 연결의 끊김이 덜하여 증가하는 저항값이 크지 않게 된다. 저항값의 변화량 혹은 전류의 변

Author



이상우

2014 KAIST 생명화학공학과 (학사)  
2019 KAIST 생명화학공학과 (박사)  
2019-현재 한화솔루션/케미칼 중앙연구소 선임연구원

화량으로 변형 정도를 계산할 수 있는데, 작은 변형일수록 변하는 저항값이 줄어들어 측정가능한 범위 이하로 변화가 일어날 수 있다. 즉, 변형에 대해 덜 민감하게 반응할 것이다. 전도성 소재가 얼마나 얇혀 있는지에 따라서 스트레인 센서의 민감도(sensitivity)가 결정되는 것이다.

스트레인 센서로서 주로 활용되는 소재는 1차원 형태를 가지면서 전도성을 띠는 소재들로, 이렇게 종횡비가 높은 소재들로 센서를 제작하면 고분자 내에 아주 작은 비율의 전도성 소재를 기존의 소재 안에 섞는 것만으로도 쉽게 전도성을 띠도록 할 수 있다. 이러한 소재들은 금속 나노 입자의 형태를 조절함으로써 나노와이어 형태로 합성하여 제작이 되거나<sup>1,5</sup> 선형적인 형태를 가지는 소재들(주로 탄소나노튜브, 혹은 탄소화된 나노섬유소재)을 가공하여 제작이 되기도 한다.<sup>4,6</sup> 이와 대비하여, 그래핀과 같은 2차원 형태를 가지는 소재들로 고분자에 혼합하여 센서를 제작하게 되면, 수 마이크로미터 크기의 소재들이 종잇장이 흩뜨러지듯이 쌓인 상태로 제작되고, 서로 연결이 덜 이뤄진 상태로 제작될 것이다.

이 때, 소재에 일정 방향으로 변형이 일어나면 소재가 쌓

여있는 층끼리 밀리고 소재 간 연결이 끊기거나 소재 자체가 일부 찢어지면서 거시적으로 소재 표면에 균열이 발생하게 되며, 변형이 커질수록 이 균열의 크기가 커지게 되어 결과적으로 전기 저항이 크게 증가하게 된다(그림 1).<sup>2</sup> 또한, 탄소나노튜브 등의 1차원 소재보다도 그래핀과 같은 2차원 소재에서 소재 간 연결이 훨씬 빈번하게 끊어질 수 있으므로 같은 변형에도 전기저항이 급격히 증가하여 높은 민감도를 구현할 수 있게 된다.

본 특집에서는 유연한 고분자 소재인 PDMS를 활용하고, 2차원의 형태를 가지는 전도성 탄소 소재 및 금속 소재를 이용하여 높은 민감도를 가지는 센서를 제작한 연구에 대하여 소개하고자 한다.

## 2. 본론

### 2.1 고민감도를 구현하기 위한 그래핀 스트레인 센서

그래핀은 2차원의 탄소 원자로 이루어진 물질로, 벌집 구조로 배열된  $sp^2$  혼성 탄소 원자들로 인하여 매우 높은 전기

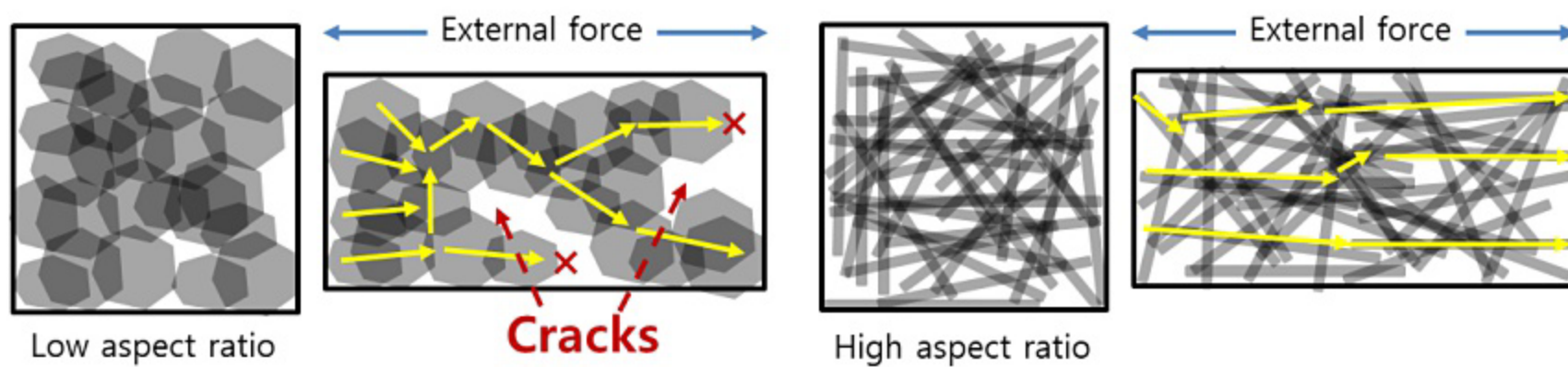


그림 1. 소재의 종횡비에 따른 균열 발생 모식도.

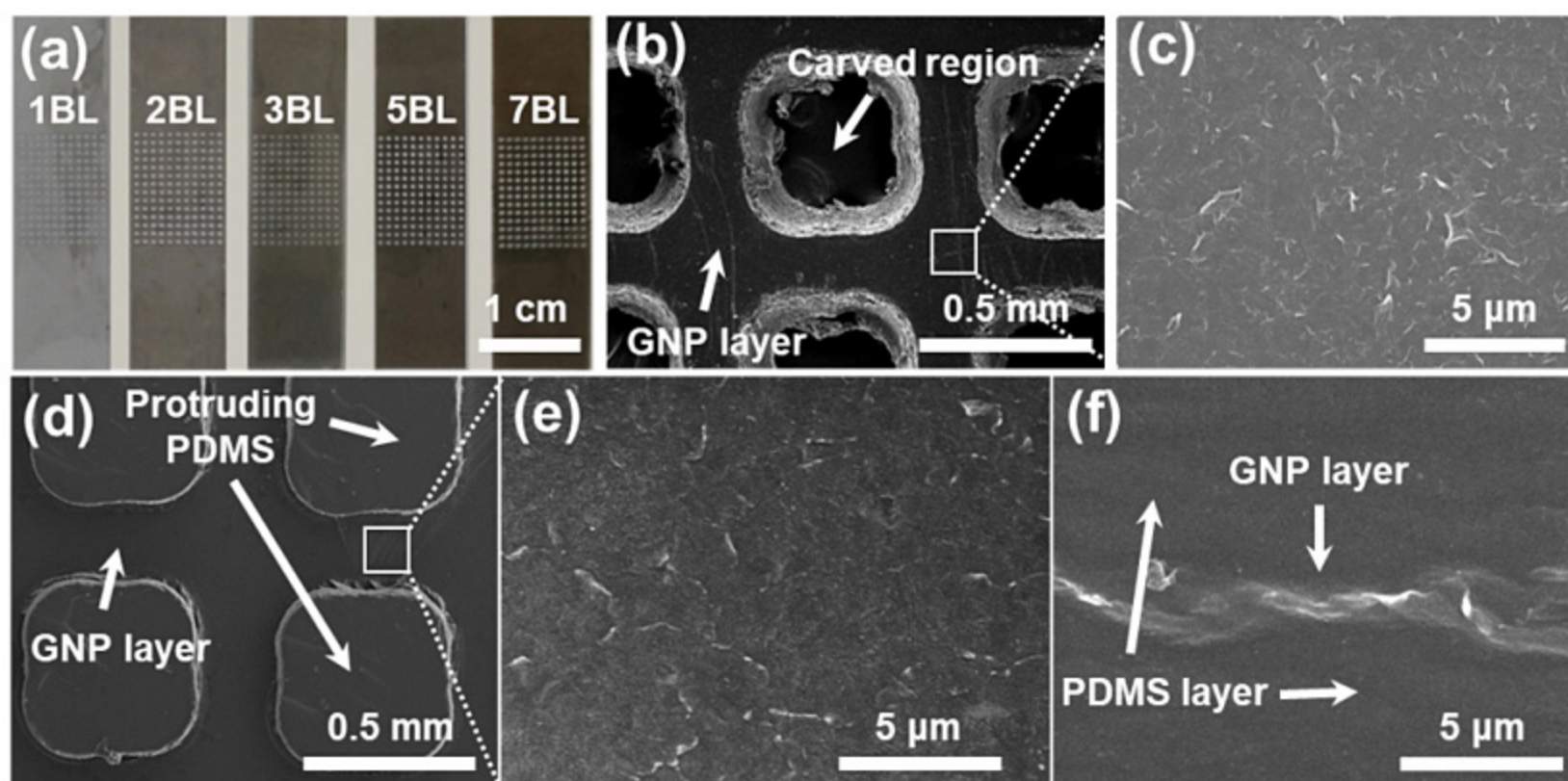


그림 2. (a) Layer-by-layer assembly 기술을 이용하여 코팅된 그래핀-PMMA 필름 (b-c) SEM으로 관찰하였을 때 격자 형태의 고분자 기저 위로 그래핀이 코팅되어 있음을 알 수 있다. (d-f) PDMS 로 그래핀 층을 전사하면 격자 형태로 잘 옮겨짐을 확인할 수 있다. (f) 또한, 센서로 제작한 후 단면을 SEM으로 관찰하면 그래핀 층이 PDMS 층 사이에 잘 위치하고 있음을 확인할 수 있다.<sup>7</sup>

전도도와 기계적 강도를 가지고 있고, 우수한 생체 적합성 (bio-compatibility)과 함께 piezo-resistive한 성질 또한 가지고 있어, 스트레인 센서로의 응용을 위한 소재로서 연구가 많이 진행되고 있는 소재이다. 특히, 탄소나노튜브와 같은 1차원의 물질들에 비해 2차원의 평면 상을 띠고 있으므로, 센서로 제작하였을 때의 민감도가 매우 높다.

하지만, 그래핀 소재 자체의 인장도(stretchability)가 낮기 때문에 다른 유연한 고분자와 복합화 함으로써 낮은 인장도를 보완하여야 하며, 이로 인해 민감도가 낮아지는 trade-off

관계가 있다. 따라서 유연하면서도 높은 민감도를 달성하려면 복합소재의 물리적인 구조를 변화시킴으로써 부족한 특성을 보완하여야 한다.<sup>2,7-9</sup>

그래핀을 얻기 위해서는 CVD등을 이용한 bottom-up의 합성방법이 있고, graphene oxide로부터 환원하여 얻는 top-down 방법이 있으며 이들의 특성 또한 크게 다르므로, 각 특성에 맞는 가공법과 센서 제작법을 이용해야 한다. 일례로, 화학적으로 환원된 그래핀 소재의 경우, 비교적 다층으로 이루어져 있어(graphene nanoplatelet의 형태) 소재 자체의

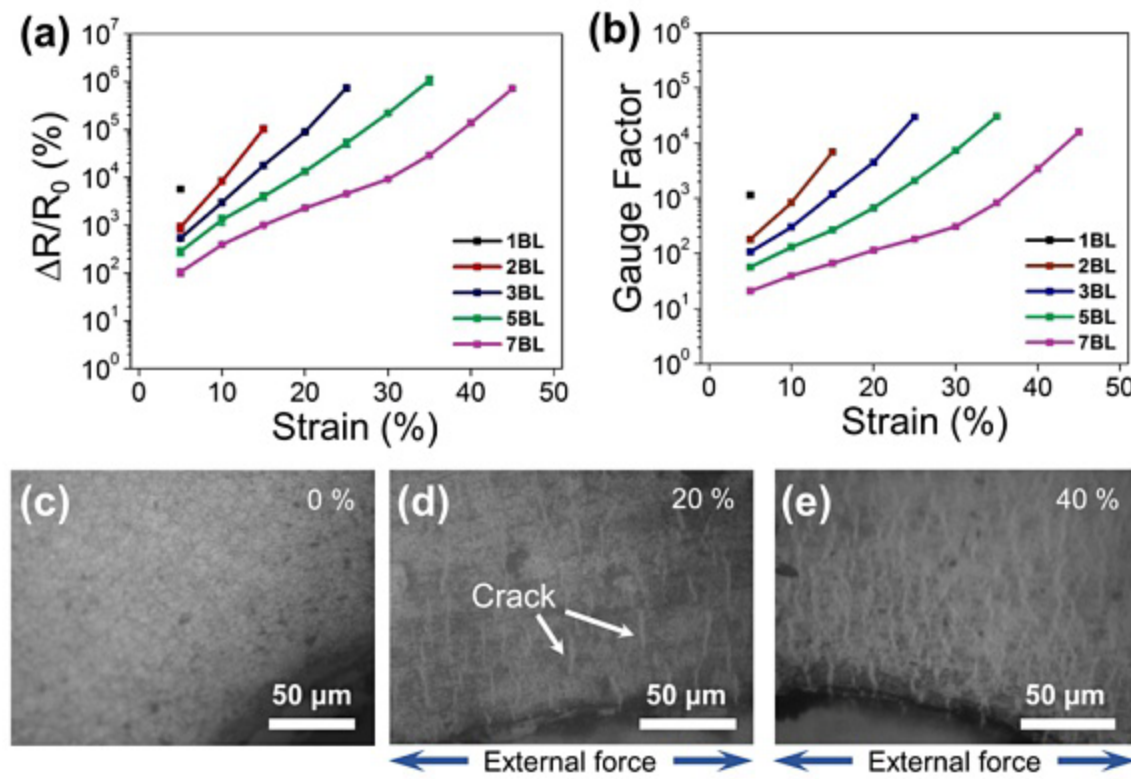


그림 3. (a-b) 그래핀의 두께에 따른 저항변화량의 지수적 변화, (c-e) 변형이 커짐에 따라 균열이 발생하여 저항값의 변화 폭이 급격히 상승한다.<sup>7</sup>

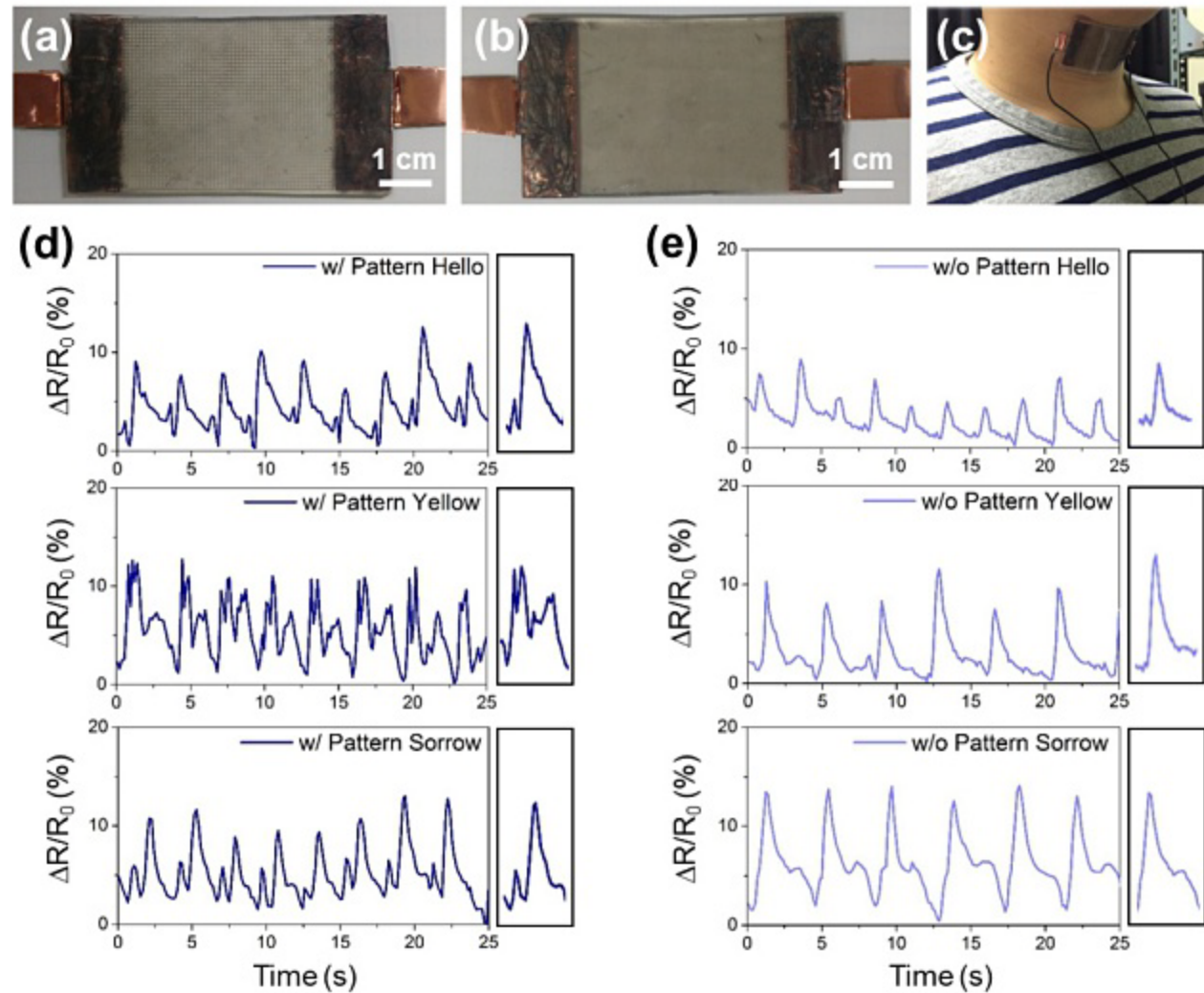


그림 4. (a-c) 큰 크기로 센서로 제작하여 목에 부착하고, 발성에 따른 센서의 반응을 확인하였을 때, (d) 직교형태의 패턴이 들어간 센서를 이용한 결과가 (e) 패턴이 없는 센서에 비하여 보다 정교한 반응을 보여주었다.<sup>7</sup>

전도도가 매우 높지는 않으나, 액상 반응으로 쉽게 그래핀 소재를 얻을 수 있고, 잔존해 있는 defect들로 인해 분산성이 상대적으로 우수하다.<sup>4</sup>

이러한 점을 활용하여, 반복적으로 코팅이 가능한 layer-by-layer assembly 기술로 패턴된 형태의 고분자 필름에 그래핀을 박막으로 코팅시킴으로써 그래핀의 전기적, 물리적 특성을 거의 그대로 가져가면서도 유연한 고분자와 복합화하는 과정에서 저하되는 민감도를 패턴된 형태의 구조 변형을 통하여 보완한 연구가 보고된 바 있다(그림 2).<sup>7</sup>

그림 3을 보면, 센서 소재를 코팅할 때의 반복 횟수를 쉽게 조절할 수 있기 때문에, 횟수를 줄여 그래핀층을 얇게 제작하면 인장 변형의 증가에 따른 저항값이 급격하게 증가하는 것을 확인할 수 있다. 특히, 전도성 소재가 빈틈없이 채워져 있는 평면이 아니라 격자형태의 패턴을 가지고 있는 평면이므로, 동일한 인장 변형에도 균열에 차단되는 연결부가 많아 패턴이 되지 않은 것에 비해 현저히 증가하는 저항 변화값을 보여 준다.

이는 그만큼 제작된 센서가 같은 변형에도 매우 민감하게 반응한다는 것을 보여주는 결과이기도 하다. 실제로, 같은 형

태의 센서를 크게 제작하여 목 부분에 부착하고, 발음이 비슷한 단어를 말하였을 때, 직교 형태의 패턴을 가진 센서가 세 단어를 구분할 수 있을만큼 보다 정교한 반응을 보여주었다(그림 3). 또한, 이 센서들을 손목 부분에 부착하여 결과를 비교해보면, 패턴이 없는 경우 노이즈만 관찰이 되고 패턴을 가진 센서가 뚜렷하게 맥박을 감지할 수 있는 것을 알 수 있다(그림 5).

또 다른 연구로, CVD 를 이용한 합성을 통해서도 같은 형태로 제작이 가능한데, 구리 메쉬 형태의 기저물질에 그래핀을 합성하여 센서로 제작한 연구도 보고된 바 있다(그림 6).<sup>2,9</sup> CVD를 이용하여 합성한 그래핀의 경우, 화학적인 환원을 통해 제작된 그래핀보다 defect가 적고, 거의 단층에 가까운 그래핀 소재를 얻을 수 있다. 따라서 매우 높은 전기전도성을 가지지만, 그만큼 완전한 형태를 얻기가 어렵다는 단점이 있다. 또한, CVD를 이용하더라도, 얻을 수 있는 단층 그래핀의 크기는 마이크로미터 수준으로, 센티미터 수준에 달하는 크기의 센서를 단층 그래핀을 이용하여 제작하게 될 때에는 다층 그래핀의 경우와 마찬가지로 마이크로미터 단위의 그래핀 조각들이 서로 연결된 형태로 제작이 된다. 이 때, 인장 변형을 주게 되면 그래핀 간의 연결이 끊어지면서 균열이 발생하고, 이에 따라 저항값이 급격히 상승하게 된다.

## 2.2 다양한 기저 물질에 응용한 그래핀 센서

패턴된 구조를 가진 기저물질 이외에도 다양한 기저물질의 특성을 이용하여 센서로 응용한 연구도 다수 보고되었다.

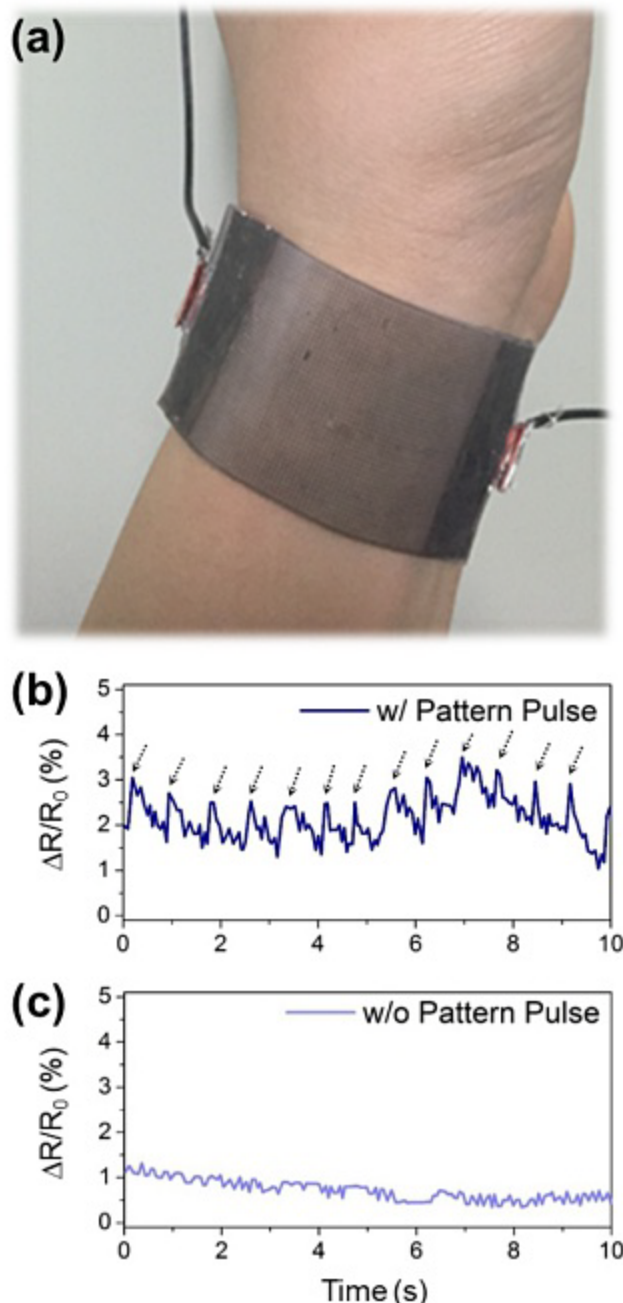


그림 5. (a) 센서를 손목 부위에 부착하였을 때, (b) 패턴을 가진 센서는 맥박신호를 뚜렷하게 관찰할 수 있으나, (c) 패턴이 없는 것은 노이즈만 관찰되고, 뚜렷한 신호를 관찰할 수 없었다.<sup>7</sup>

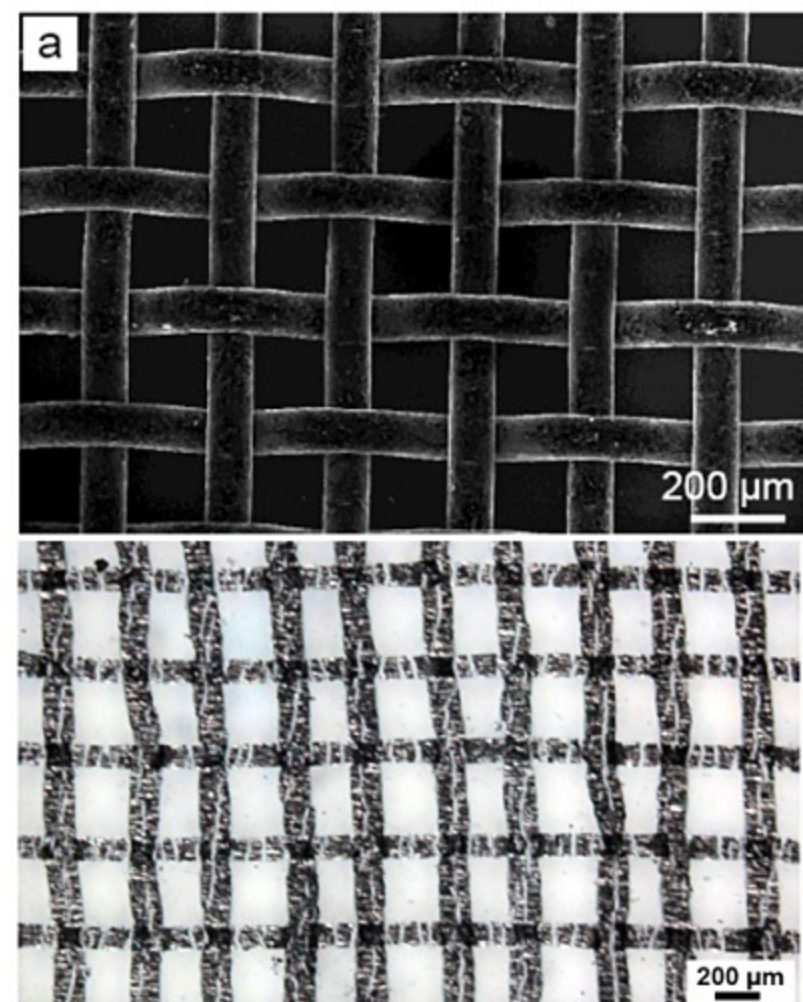


그림 6. 메쉬형태의 구리 기저(위)와 합성된 그래핀 소재(아래)의 표면. 변형에 따라 그래핀 표면의 균열이 발생하는 것을 관찰할 수 있다.<sup>8,9</sup>

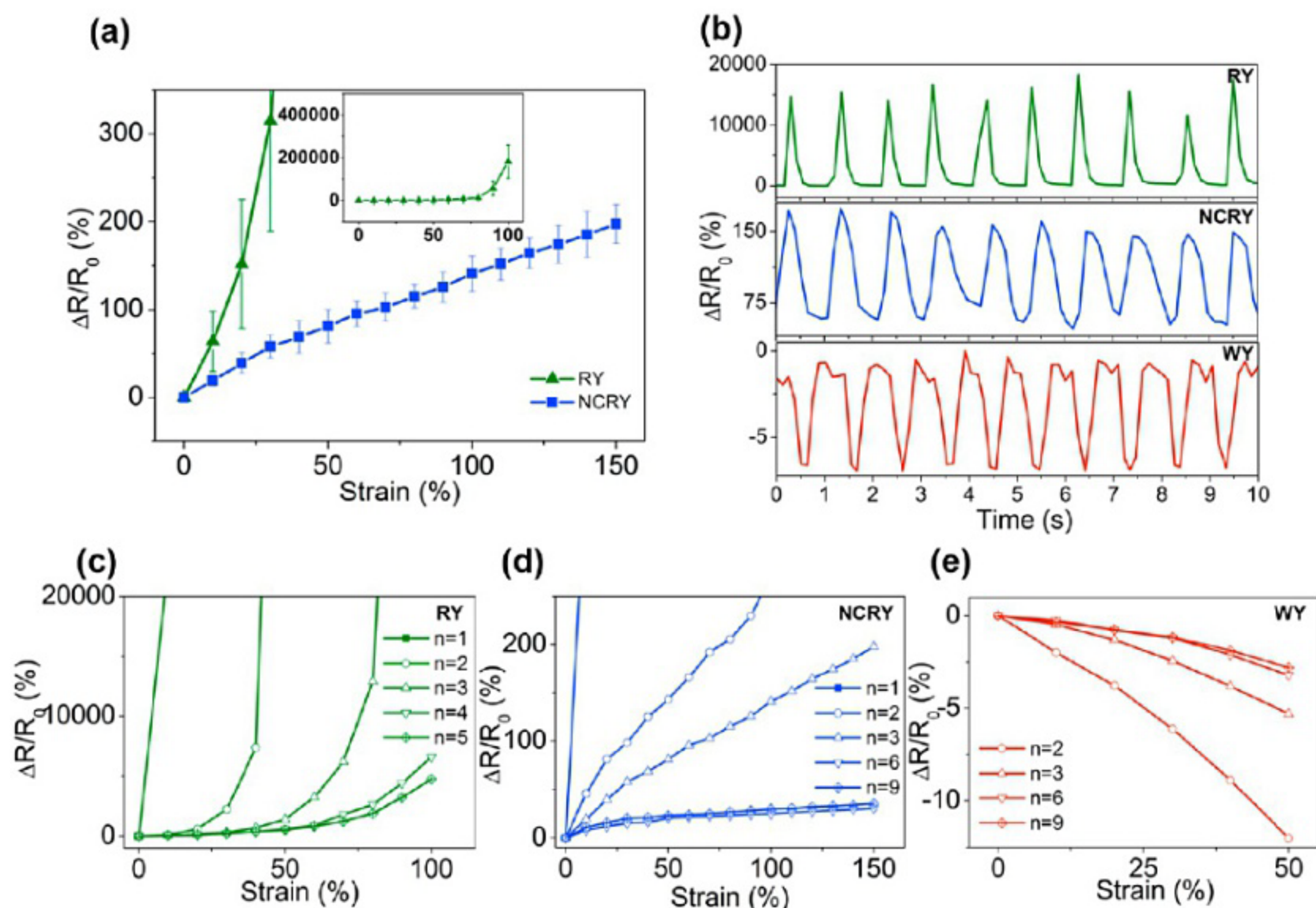


그림 7. 각기 다른 형태의 원사로 제작된 센서의 인장 변형에 따른 반응 형태.<sup>4</sup> (c-e) 코팅된 그래핀 층의 두께에 따라 저항값의 변화 폭 또한 달라진다.

신축성이 있는 소재를 이용하여 전도성을 부여하고, 이를 센서로 직접 활용하게 되면, 기저물질의 특성에 따라 적용할 수 있는 범위를 특정할 수가 있다. 일례로, 신축성이 있는 원사(yarn)에 그래핀을 코팅하여 다양한 응답형태를 확인한 연구가 있다.<sup>4</sup>

그림 7과 8의 그래프 및 사진에서 확인할 수 있듯이, 단순히 고무 원사로 이뤄진 기저물질(RY)의 경우, 그래핀으로 코팅하는 경우, 이 글에서 소개했던 연구들과 같이 그래핀 층간 연결이 변형에 따라 끊어지면서 균열이 생기고, 이에 따라 저항값이 지속적으로 크게 변하는 것을 알 수 있다.

반면, 이 고무 원사를 나일론 계열 원사로 감싼 신축성 실(NCRY)의 경우, 그래핀 층이 사선방향으로 둘러싸여 있는 나일론 계열의 원사에도 코팅되고 이에 따라 균열이 생기는 변형정도가 현저히 증가하게 된다. 이에 따라 100%가 넘는 인장변형에도 선형적인 변화값을 보여주어 큰 범위의 변형을 감지하기 용이한 구조임을 알 수 있다.

또한, 추가로 울계열의 원사(WY)는 인장변형에 대해 섬유끼리 붙는 특징을 가지고 있어서 다른 소재와는 반대로 인장 변형이 커짐에 따라 저항값이 감소하는 경향을 보여주었다.

또 다른 연구로, 우레탄 계열의 열가소성 섬유와 폴리에틸렌 계열의 섬유가 꼬여있는 구조의 기저 원사 소재를 그래핀 옥사이드 용액에 침지코팅하고, 이를 환원시켜 전도성을 얻거나,<sup>10</sup> 멜라민 스펀지 소재를 탄화시켜 전도성을 부여하여

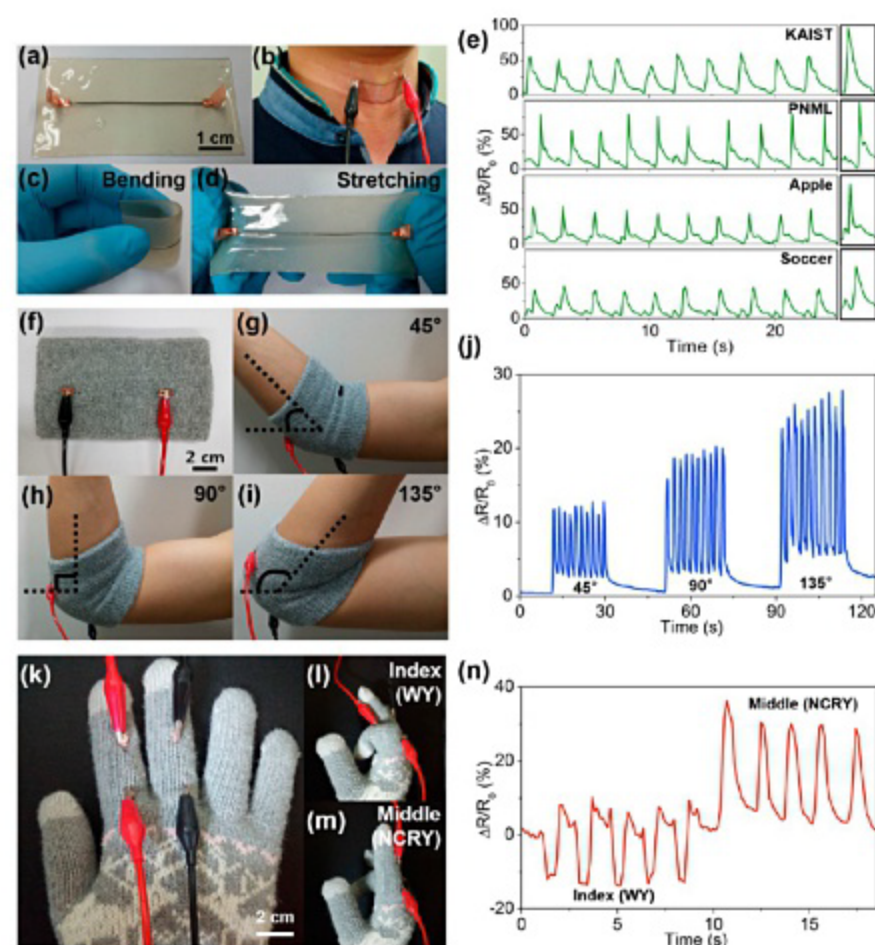


그림 8. 각 센서의 반응 특성에 따라 다양한 움직임을 감지할 수 있다. (a-e) RY를 이용하여 발성을 감지하거나, (f-j) NCRY를 이용하여 큰 움직임을 감지하고, (k-n) WY와 NCRY를 이용하여 서로다른 움직임을 동시에 감지할 수 있다.

센서로 제작한 연구가 있다.<sup>11</sup> 이러한 소재들 역시 인장 변형에 따라 전도성 소재들의 연결이 끊어지면서 저항값이 상승하고, 그 성질을 이용하여 스트레인 센서로 활용하였다. 이

외에도 그래핀 에어로젤, 전도성을 가지는 섬유상 구조, 혹은 섬유상의 소재를 직물로 제작하는 등 다양한 형태의 스트레인 센서가 연구되고 있다.<sup>12,13</sup>

### 2.3 지그재그 형태로 크기가 조절된 은나노플레이트 스트레인 센서

금속 기반의 센서 소재는 piezo-resistive한 성질을 가지는 금속 소재이면서도, 형태가 조절이 비교적 쉽게 가능한 소재들이 이용된다. 특히 은나노와이어 입자의 경우에는 유연한 특성과 적은 양으로도 투명한 전자소재로써 활용이 가능하여 이미 유연전극, 투명전극 등으로 활용되어 연구가 된 바가 있으며, 최근 5년간은 다른 금속 입자, 혹은 다른 전도성의 센서 소재와 혼합하여 사용하거나, 독특한 기저 소재와 복합화함으로써 스트레인 센서에 적용된 사례가 있다.<sup>1, 14, 15</sup>

지그재그 형태로 크기가 조절된 은 나노플레이트 센서의 경우에는 이러한 기존 소재와는 달리 2차원의 판 형태로 은 나노입자를 합성하여, 이를 스트레인 센서로 활용한 연구이다(그림 9).<sup>16</sup>

기존에는 이와 같이 1  $\mu\text{m}$  수준으로 크게 성장시킨 판 형태의 은 나노입자를 합성하기 위해서는 여러가지 단계를 거쳐야 했으나, 이 연구에서는 한 단계로 합성이 가능하면서도 입자의 합성을 위해 첨가되는 capping agent, stabilizer 등의 조성 비율 및 함량을 통해 입자의 크기도 조절이 가능하였다.

특히, 일반적인 판 형태가 아닌, 이들이 서로 연결된 형태의 입자(지그재그 형태의 은나노플레이트)를 합성하여 이를 센서 소재로서 활용한 것이 이 연구의 주된 특징이다.

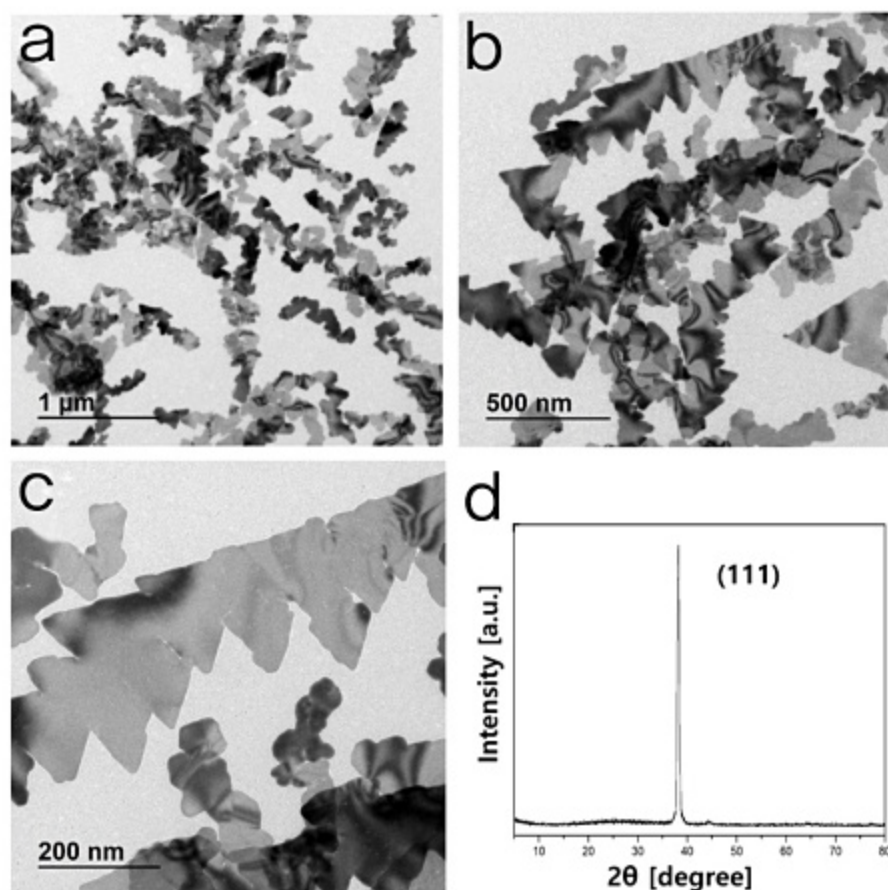


그림 9. 지그재그 형태로 합성된 은나노플레이트.<sup>16</sup> (a-c) TEM 이미지, (d) XRD 패턴.

이렇게 합성된 지그재그 형태의 은나노플레이트를 센서로 제작하면, 그림 10과 같이 이 센서 소재의 특성상 나노와이어 형태의 입자 보다는 입자 간에 서로 얹히는 정도가 덜하여 민감도가 크게 상승하는 대신, 판 형태의 입자보다는 입자 간에 연결이 원활하여 변형에 균열이 발생할 가능성이 감소하여 높은 인장도를 얻을 수 있게 된다.

실제로 제작된 센서의 성능을 비교하였을 때, 낮은 인장 변형 정도에서도 높은 민감도를 보여준다. 특히 은 나노와이어를 스트레인 센서로 제작한 것과 비교하였을 때, 거의 400 배가 향상된 민감도를 보여주며 높은 인장 변형에서도 높은 민감도를 유지할 뿐만 아니라, 변형에 따라 선형적인 저항 변화를 보여주어 인체가 가지고 있는 다양한 범위의 움직임을 감지할 수 있는 결과를 보여주었다(그림 11).

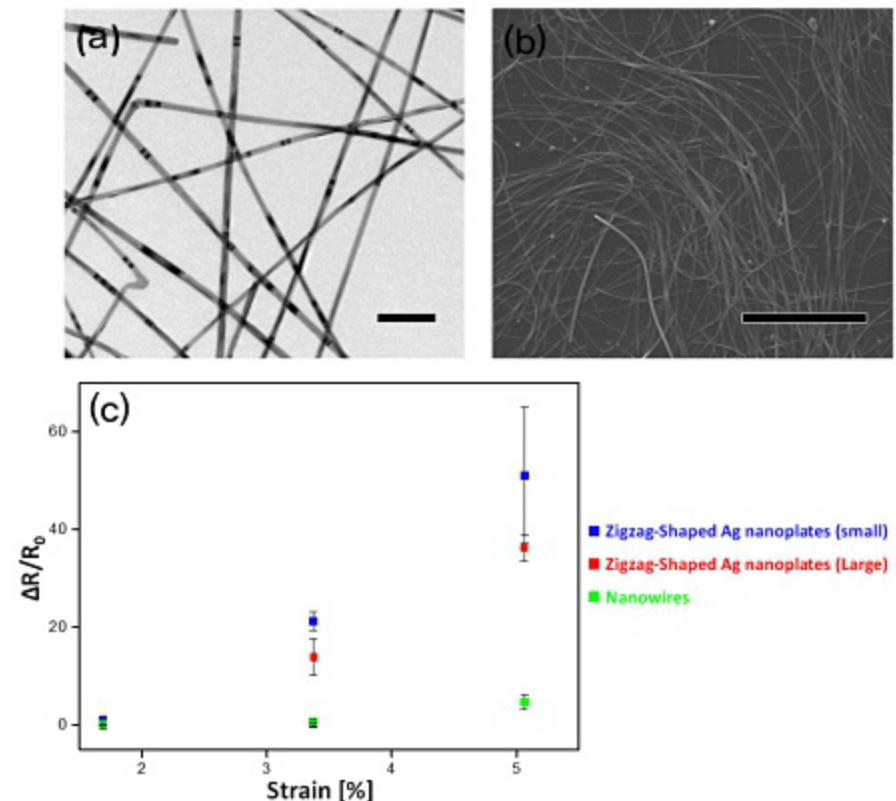


그림 10. 지그재그형태의 은나노입자와 은나노와이어로 각각 제작된 센서의 성능 비교 결과. (a-b) 은나노와이어의 TEM 및 SEM 이미지, (c) 나노와이어에 비하여 현저히 높은 민감도를 보여준다.<sup>16</sup>

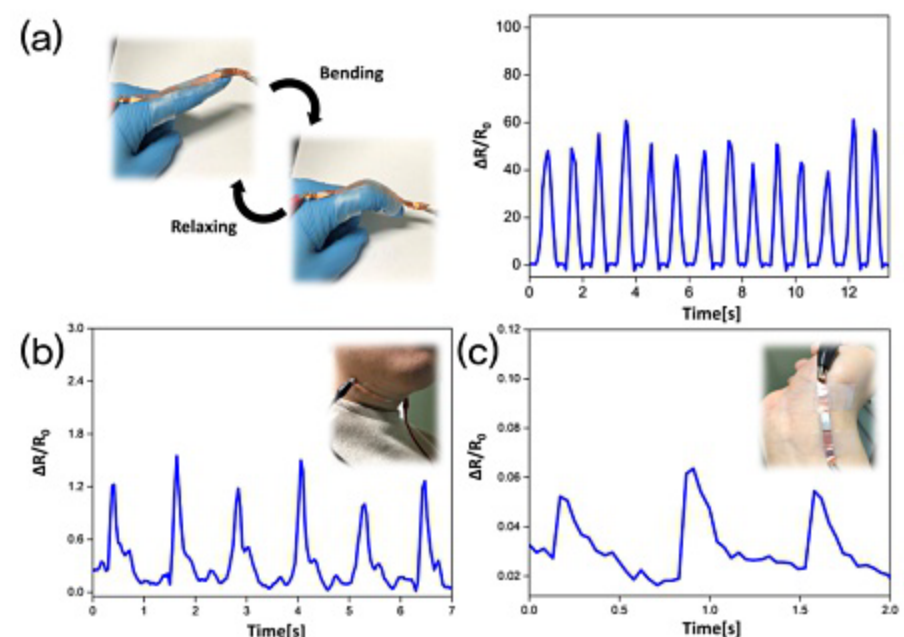


그림 11. 지그재그형태의 은나노입자로 제작된 센서를 이용하여 다양한 범위의 인체 움직임을 감지할 수 있다. (a) 손가락의 움직임, (b) 발성 시 성대의 진동, (c) 손목의 맥박.<sup>16</sup>

### 3. 결론

지금까지 그래핀, 은나노플레이트와 같이 2차원 형태의 전도성 소재를 이용하여 스트레인 센서로 제작한 연구들에 대하여 간략하게 알아보았다. 본 고에서 설명한 바와 같이 2차원 형태의 소재를 이용하면 소재 간의 연결이 1차원 형태의 소재에 비하여 인장 변형에 약하지만, 높은 센서 민감도를 얻을 수 있었다. 이와 같이 소재의 저항값을 측정하여 원하는 물리량을 측정하는 센서의 특성 상, 변형에 약한 특성을 가지는 2차원 형태의 소재를 이용하면, 높은 민감도를 구현할 수 있게 된다.

본 고에서 소개된 연구들은 여기에서 더 나아가 센서 소재 자체에 부족한 유연한 특성을 PDMS에 복합화함으로써 보완하여 센서로 제작하였으며, PDMS가 복합화됨에 따라 trade-off 관계로 저하된 센서의 민감도를 어떻게 향상시킬 수 있었는지를 중점으로 연구하였다. 그럼에도 불구하고, 보다 향상된 성능을 가지는 스트레인 센서를 개발하기에는 해결해야 할 문제점이 몇 가지 있다.

첫째로, 여전히 2차원 형태의 소재들은 제작, 또는 합성하기 까다롭다는 것이다. 이 소재들의 특성상 높은 민감도와 우수한 센서 성능은 쉽게 발휘되지만, 그래핀 또는 금속 나노플레이트와 같이 우수한 특성을 내는 소재의 형상으로 제조하기 위해서는 여전히 까다로운 조건과 많은 노력이 필요하다. 결국에는 그래핀, 금속나노입자와 같은 고성능을 가지는 소재의 생산 효율을 높여 소재 가격을 낮출 수 있는 기술 개발이 필요하다.

둘째로, 실제 센서로 상용화하려면 전원, 저항(전류) 측정, 데이터 송수신 문제를 해결해야 한다. 궁극적으로 웨어러블 센서로 활용하는 것이 이러한 유연한 특성을 가지는 스트레인 센서의 목적이므로, 실제로 사용하려면 전원과 전류 측정 소자가 있어 센서의 상태를 측정하고, 이러한 결과 값들을 메모리 장치, 더 나아가서는 데이터를 전송할 수 있는 소자가 구비되어야 한다는 것이 있다.

이러한 문제들은 스트레인 센서가 인체 등에 직접 적용되어 활용이 가능한 것이기 때문에, 센서 소재 연구로 센서 자체의 성능을 높이는 것도 중요하지만, 그 외에도 실제 제품에 적용하기 위한 센서의 생산성 문제도 같이 고민하는 것이 필요함을 의미한다.

향후에는 인체에 직접 부착하여 사용하는 용도뿐만 아니라, 로봇 산업, 증강현실(VR 및 AR) 기기, 혹은 건설환경에서 작업 등 다양한 소재에 부착하거나, 삽입되는 형태로 스트레인 센서의 수요 및 활용이 증가할 것으로 예상되기 때문에,

이러한 산업적인 변화에 맞추어 관련 연구가 더 많이 진행되어야 할 것으로 생각된다.

### 참고문헌

1. M. Amjadi, A. Pichitpajongkit, S. Lee, S. Ryu and I. Park, *ACS Nano*, **8**, 5154 (2014).
2. Y. Wang, L. Wang, T. T. Yang, X. Li, X. B. Zang, M. Zhu, K. L. Wang, D. H. Wu, and H. W. Zhu, *Adv. Funct. Mater.*, **24**, 4666 (2014).
3. A. A. Barlian, W. T. Park, J. R. Mallon Jr., A. J. Rastegar, and B. L. Pruitt, *Proc. IEEE Inst. Electr. Electron. Eng.*, **97**, 513 (2009).
4. J. J. Park, W. J. Hyun, S. C. Mun, Y. T. Park, and O. O. Park, *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **7**, 6317 (2015).
5. S. Gong, W. Schwalb, Y. Wang, Y. Chen, Y. Tang, J. Si, B. Shirinzadeh, and W. Cheng, *Nat. Commun.*, **5**, 3132 (2014).
6. T. Yamada, Y. Hayamizu, Y. Yamamoto, Y. Yomogida, A. Izadi-Najafabadi, D. N. Futaba, and K. Hata, *Nat. Nanotechnol.*, **6**, 296 (2011).
7. S. W. Lee, J. J. Park, B. H. Park, S. C. Mun, Y. T. Park, K. Liao, T. S. Seo, W. J. Hyun, and O. O. Park, *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **9**, 11176 (2017).
8. X. Li, P. Sun, L. Fan, M. Zhu, K. Wang, M. Zhong, J. Wei, D. Wu, Y. Cheng and H. Zhu, *Sci. Rep.*, **2**, 395 (2012).
9. X. Li, R. Zhang, W. Yu, K. Wang, J. Wei, D. Wu, A. Cao, Z. Li, Y. Cheng, Q. Zheng, R. S. Ruoff, and H. Zhu, *Sci. Rep.*, **2**, 870 (2012).
10. Y. Cheng, R. Wang, J. Sun, and L. Gao, *Adv. Mater.*, **27**, 7365 (2015).
11. X. Fang, J. Tan, Y. Gao, Y. Lu, and F. Xuan, *Nanoscale*, **9**, 17948 (2017).
12. Q. Liu, M. Zhang, L. Huang, Y. Li, J. Chen, C. Li, and G. Shi, *ACS Nano*, **9**, 12320 (2015).
13. Y. R. Jeong, H. Park, S. W. Jin, S. Y. Hong, S. -S. Lee, and J. S. Ha, *Adv. Funct. Mater.*, **25**, 4228 (2015).
14. M. D. Ho, Y. Ling, L. W. Yap, Y. Wang, D. Dong, Y. Zhao, and W. Cheng, *Adv. Funct. Mater.*, **27**, 1700845 (2017).
15. Z. Yang, D. -Y. Wang, Y. Pang, Y. -X. Li, Q. Wang, T. -Y. Zhang, J. -B. Wang, X. Liu, Y. -Y. Yang, J. -M. Jian, M. -Q. Jian, Y. -Y. Zhang, Y. Yang, and T. -L. Ren, *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **10**, 3948 (2018).
16. J. Kim, S. W. Lee, M. H. Kim, and O. O. Park, *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **10**, 39134 (2018).