

늘어나는 기관과 기계적 박리공정을 이용한 3차원 고분자 소자

Three-dimensional (3D) Polymer Devices Using a Stretchable Substrate and Mechanical Buckling Process

이수연¹ · 김시몬² · 김봉훈^{1,3} | Su Eon Lee · Simon Kim · Bong Hoon Kim

¹Smart Wearable Engineering, Soongsil University, Seoul 06978, Korea

²Division of Materials Science and Engineering, Hanyang University, Seoul 04763, Korea

³Department of Organic Materials and Fiber Engineering, Soongsil University, Seoul 06978, Korea
E-mail: bonghoonkim@gmail.com

1. 서론

3차원 구조를 갖는 고분자 소자는 2차원 소자와 구분되는 독특한 기계적, 전기적, 재료적 물성을 갖는다. 3차원 고분자 소자의 경우 2차원 형태를 갖는 소자와 비교했을 때 매우 우수한 소자 성능을 가지거나 또는 기존 소자로는 구현이 불가능한 성능을 달성할 수 있다는 점에서 명확한 공학적 이점이 존재한다. 그동안 3차원 구조를 갖는 고분자 소자를 제조하기 위하여 3D 프린팅 기술(3D printing technique), 자기조립 공정(self-assembly process), 상향식 나노 제조공정(bottom up nanofabrication)과 같은 여러 가지 제조 방식들에 대해서 많은 연구가 이루어져 왔으나, 이와 같은 기존 공정 및 접근 방식은 일반적으로 다음과 같은 단점을 가진다.^{1,2}

첫째, 기존 3차원 고분자 소자의 경우 대부분 유연성 또는 신축성이 결여된 딱딱한 기관위에 제조되는 경우가 많기 때문에 바이오 메디컬 응용을 위한 소프트 전자소자(soft electronic devices)를 구현하는데 어려움이 있다. 둘째, 기능성 소자를 위한 다층 구조가 아니라 단일 재료로 이루어진 3차원 구조를 제조할 수 있는 경우가 대부분이다.³ 예를 들어 기존 제조 공정을 사용하여 특정 광학적 물성을 갖는 3차원 고분자 구조를 구현하는 것은 비교적 쉬우나, 유기물 트랜지스터와 같은 능동 소자(active device)를 한번의 공정을 통해 곧바로 3차원 구조 형태로 제조하는 것은 거의 불가능하다. 따라서 현재 3차원 구조를 가지는 재료에 대한 응용이 주로 광학적/기계적 물성과 관련된 수동 소자(passive device) 분야에만 집중되어 있다. 셋째, 많은 경우 3차원 구조를 만들 때 사용할 수 있는 재료 종류가 제한되어 있으며, 재료가 달라질 경우 공정 조건이 많이 바뀌거나 구현 자체가 안되는 경우가 일반적이다. 예를 들어 블록 공중합체(block copolymer)와 같은 자기조립 공정의 경우 3차원 구조 제작에 사용하는 고분자의 종류 및 분자량이 바뀔 경우 모든 공정 조건을 새로 연구 개발

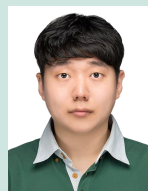
Author



이수연

2020
2020-현재

송실대학교
유기신소재파이버공학과 (학사)
송실대학교 스마트웨어블공학과
(석사과정)



김시몬

2019
2021
2020-현재

송실대학교
유기신소재파이버공학과 (학사)
송실대학교
유기신소재파이버공학과 (석사)
한양대학교 신소재공학부
(박사과정)



김봉훈

2005
2007
2012
2012-2012
2013-2016
2016-2019
2019-현재

고려대학교 신소재공학부 (학사)
KAIST 신소재공학과 (석사)
KAIST 신소재공학과 (박사)
KAIST (박사후연구원)
University of Illinois at Urbana champaign (UIUC) (박사후연구원)
Northwestern University (박사후연구원)
송실대학교 유기신소재파이버공학과 조교수

하여야 하며, 반도체/금속 나노와이어(nanowires)를 성장시키는 상향식(bottom-up) 제조공정의 경우는 3차원 형태로 제조 가능한 재료 종류가 한정되어 있다.⁴

위와 같은 3차원 고분자 소자 제작을 위한 기존 공정의 한계점을 극복하기 위해서 최근 “늘어나는 기판”과 “기계적 박리공정(mechanical buckling process)”을 이용하여 3차원 형태의 고분자 소자를 만드는 접근 방식이 제안되고 있으며, 이는 다음과 같은 장점을 특징으로 한다. 첫째, 늘어나는 기판 위에 제도가 되기 때문에 유연성 또는 신축성이 필요한 웨어러블 전자소자(wearable electronic devices) 응용에 매우 유리하다. 둘째, 박막 형태로 구현이 가능한 고분자 소자라면 재료 종류에 상관없이 모두 3차원 형태로 제조할 수 있다. 셋째, 제조할 수 있는 3차원 형태 자체에 거의 제한이 없다. 넷째, 하나의 소자가 2차원 형태와 3차원 형태를 모두 가질 수 있는 가역적인(reversible) 기계적 변형이 가능하다. 다섯째, 제조공정이 빠르고 저렴하기 때문에 대량 생산에 유리하다.^{5,6}

본 총설은 늘어나는 기판과 기계적 박리공정을 이용한 3차원 고분자 소자 제작 원리 및 공정, 구현 가능한 다양한 3차원 구조 형태, 3차원 소자의 실제 응용과 관련된 최신 연구 결과에 대해 소개하고자 한다. 먼저 3차원 고분자 소자 제작 원리와 공정에 대해 다루어 보고, 실제 소자 응용 분야로서 (i) 3차원 형태의 전극을 갖는 전자소자, (ii) 3차원 구조를 갖는 에너지 발전 소자, (iii) 3차원 안테나를 가지는 사물 인터넷 소자, (iv) 3차원 바이오 소자에 관한 연구에 대해

설명할 것이다. 마지막으로 3차원 고분자 소자가 가지는 장점을 바탕으로 차세대 광전자소자, 에너지 소자, 바이오 메디컬 소자 분야에서 3차원 고분자 전자소자가 어떻게 활용될 수 있는지 앞으로 전망에 대해 기술할 것이다.

2. 본론

2.1 늘어나는 기판과 기계적 박리공정 활용

기계적 박리공정은 나노/마이크로칩 공정을 통해 제작된 2차원 형태의 전자소자 전구체(precursor)를 미리 늘려 놓은 실리콘 탄성체(silicone elastomer) 기판에 전사하되 부위별로 서로 다른 결합력을 갖게 하는 것으로 시작한다. 이 후 미리 잡아당긴 기판을 서서히 원래 상태로 복구(release)하면 실리콘 탄성체 기판과 약한 결합력을 갖는 부분이 박리(delamination) 되면서 전체적으로 3차원 구조를 갖는 고분자 전자소자가 제조된다(그림 1).^{7,8} 기존의 유연/신축성 전자소자의 경우 실리콘 탄성체(silicone elastomer) 기판이 휘어지거나 늘어나도 능동(active) 전자소자 자체의 구조가 크게 변하지 않는 점이 3차원 고분자 소자와 가장 큰 차이점이다.

그림 2에서는 늘어나는 기판과 기계적 박리공정을 사용한 3차원 전자소자 제조 공정을 가장 간단한 예시를 통해서 설명하고 있다. 첫째, 나노/마이크로칩 공정을 통해서 단순한 직선 형태를 갖는 2차원 전자소자 전구체(precursor)를 제조한다. 여기서 직선 형태를 갖는 전구체(precursor)의 경우 Au/Cr

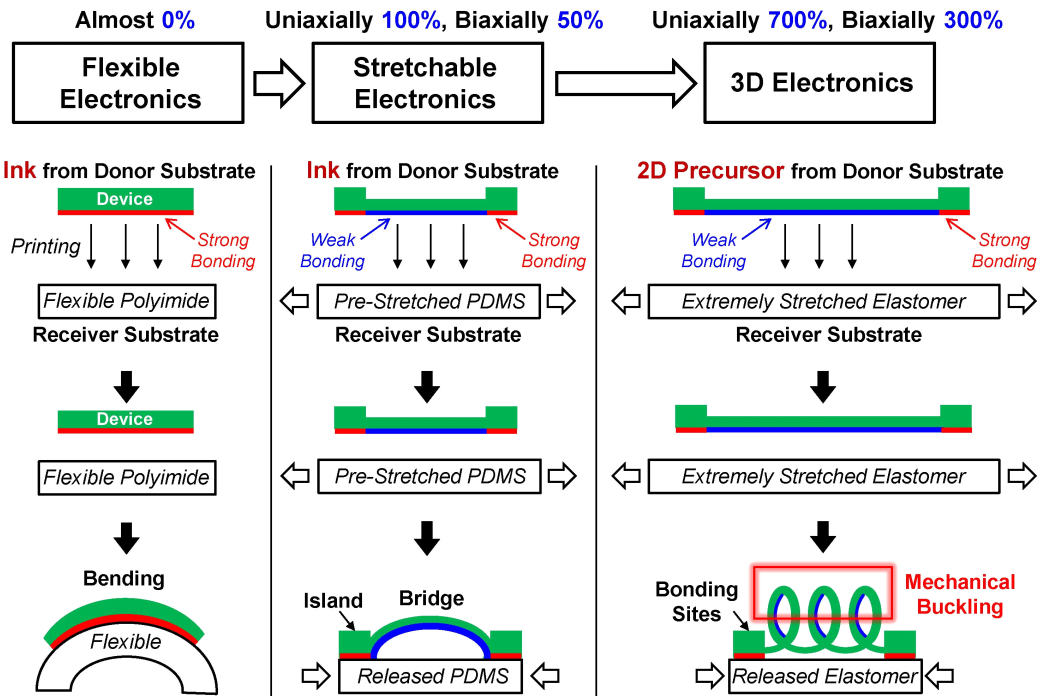


그림 1. 유연/신축성 전자 소자의 제작 원리와 늘어나는 기판과 기계적 박리공정으로 제작된 3차원 고분자 전자 소자의 제작 원리. (a) 유연 소자, (b) 신축성 소자, (c) 3차원 고분자 전자 소자의 단계별 제작 과정.

금속의 표면을 폴리이미드(polyimide) 고분자로 절연시킨 형태이다. 추가로 실리콘 탄성체(silicone elastomer) 기판과 강한 결합력을 갖게 하고 싶은 부분의 아래에는 Ti/SiO₂를 부분적으로 증착한다(그림 2a). 둘째, 이렇게 준비된 2차원 전자소자 전구체(precursor)를 플라즈마 또는 오존 처리 후 1축 방향으로 미리 늘린 실리콘 탄성체(silicone elastomer) 기판에 붙이게 되면 Ti/SiO₂와 기판이 만나는 부분에서는 매우 강한 공유결합(covalent bonding)이 형성되고 폴리이미드(polyimide) 고분자와 기판이 만나는 부분에서는 약한 반데르발스 결합(Van der Waals bonding)이 구현된다(그림 2b).⁹ 셋째, 마지막으로 미리 늘린 실리콘 탄성체(silicone elastomer) 기판을 원래 상태로 복구하면 기판과 약한 결합력을 갖는 부분에서 박리(delamination) 현상이 일어나면서 3차원 전자소자가 구현된다(그림 2c).¹⁰

앞서 소개한 공정을 동일하게 사용하되 실리콘 탄성체(silicone elastomer) 기판에 1축이 아닌 2축 방향 스트레칭을 가하게 되면 훨씬 더 복잡한 3차원 구조를 제조하는 것이 가능하다(그림 3).¹¹ 이 과정에서 “2차원 형태를 갖는 전자소자 전구체(precursor) 디자인”과 “실리콘 탄성체(silicone elastomer) 기판에 가해지는 스트레칭 정도”를 동시에 조절하면 구현 가능한 3차원 구조 종류에 거의 제한이 없게 된다. 특히 유한요소해석(finite element analysis, FEA) 방법을

사용하면 제조 과정 전후로 전자소자의 각 부분에 발생하는 스트레인(strain)을 정밀하게 계산할 수 있기 때문에, 특정 3차원 구조를 제조하는데 필요한 2차원 전자소자 전구체(precursor) 디자인을 역설계(reverse engineering) 하는 것이 가능하다.¹² 그림 4에서 보여주고 있는 다양한 예시들처럼 기판과 강하게 접합하는 부분(빨간색)과 약하게 접합하는 부분(파란색)이 처음에 어떻게 디자인에 되느냐에 따라 특정 부분에서 구부리기(bending)와 뒤틀림(twisting) 현상이 발생하게 되고 이는 최종 3차원 구조를 결정하게 된다.¹³ 앞서 언급한 바와 같이 이와 같은 3차원 형태를 갖는 고분자 소자는 2차원 소자가 갖지 못한 기계적, 전기적, 재료적 특성을 구현할 수 있기 때문에 공학적으로 응용 가능한 분야가 매우 많다. 구체적으로 3차원 고분자 소자가 전자소자, 에너지 소자, 사물인터넷 소자, 바이오 소자 분야에 응용된 최근 연구 결과를 정리하면 다음과 같다.¹⁴

2.2 3차원 고분자 소자의 응용 분야

2.2.1 3차원 실리콘 전자소자

그림 5a는 기계적 박리 공정과 단결정 실리콘(single crystalline silicon)을 사용하여 3차원 형태의 이중나선형(double helical) 구조로 제조된 실리콘 광검출소자(photodetector)를 보여주고 있다. 구현된 3차원 전자소자의 경우 능동소자(active device)

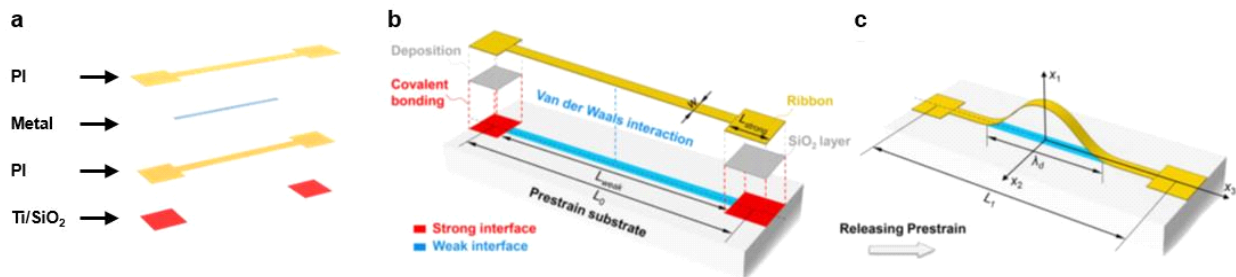


그림 2. 3차원 고분자 전자소자를 만들기 위한 기계적 박리공정의 원리. (a) 직선 형태를 갖는 2차원 전자소자 전구체 준비. (b) 화학적 표면 처리 후 1축 방향으로 미리 늘려 놓은 실리콘 탄성체 기판에 2차원 전자소자 전구체를 전사 프린팅. (c) 실리콘 탄성체 기판을 원래 상태로 복구되는 과정에서 제조되는 3차원 고분자 전자소자.⁹

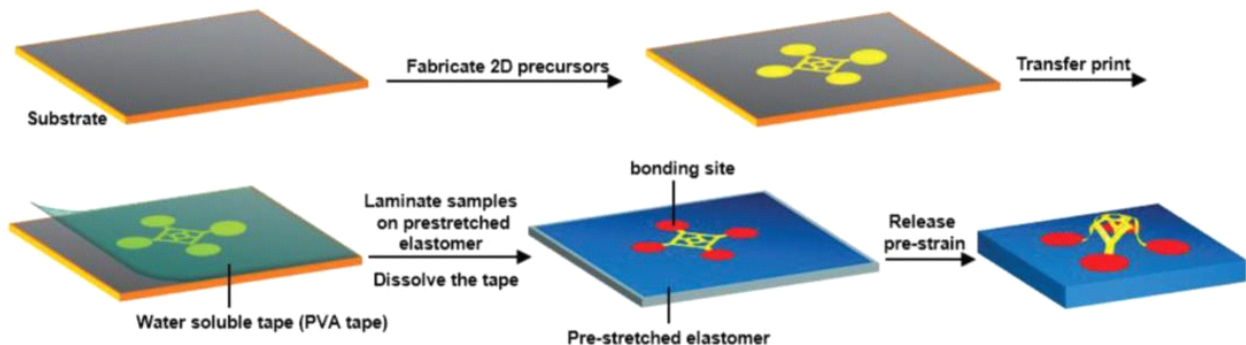


그림 3. 화학적 표면 처리된 실리콘 탄성체 기판을 미리 늘릴 때 1축이 아닌 2축 방향 스트레칭을 사용할 때 제조되는 복잡한 3차원 구조를 갖는 고분자 전자소자.¹¹

부분을 제외한 금속 연결 부위(metal interconnector)는 표면이 폴리이미드(polyimide) 고분자로 절연된 Cr/Au로 구성되어 있다. 3차원 전자소자에 강한 외부 광원을 직접적으로 조사할

경우 약 7 nA의 광전류(photocurrent)가 생성되는 것을 실험적으로 확인하였으며, 이는 3차원 형태로 구현된 전자소자가 정상적으로 동작한다는 사실을 의미한다(그림 5b,c).¹⁵

a	Mode ratio	2D pre-cursor	3D structure (FEA)	3D structure (Experiment)
Tent	$R=0$			
Table	$R=0$			
Box I	$R=0$			
Tilted table	$R=0.10$			
Flower	$R=0.11$			
Inverted flower	$R=0.12$			
Two-layer flower	$R=0.14$			
Rotated table	$R=0.15$			
Box II	$R=0.16$			
b	Mode ratio	2D pre-cursor	3D structure (FEA)	3D structure (Experiment)
Folded box	$R=0.26$			
Basket	$R=0.34$			
Star	$R=0.36$			
Butterfly	$R=0.45$			
Starfish	$R=0.47$			
Box with roof	$R=0.67$			
Circular helix I	$R=0.89$			
Circular helix II	$R=1.07$			
Circular helix III	$R=1.09$			

그림 4. 다양한 3차원 구조를 갖는 고분자 소자 제작을 위한 2차원 전자소자 전구체(precursor) 디자인, 유한요소해석(finite element analysis, FEA) 시뮬레이션 결과, 실제 실험 결과의 전자현미경 이미지. (a) 구부리기 방식으로 제작된 3차원 고분자 구조. (b) 구부리기와 뒤틀림 방식을 사용하여 제작한 3차원 고분자 구조.¹⁴

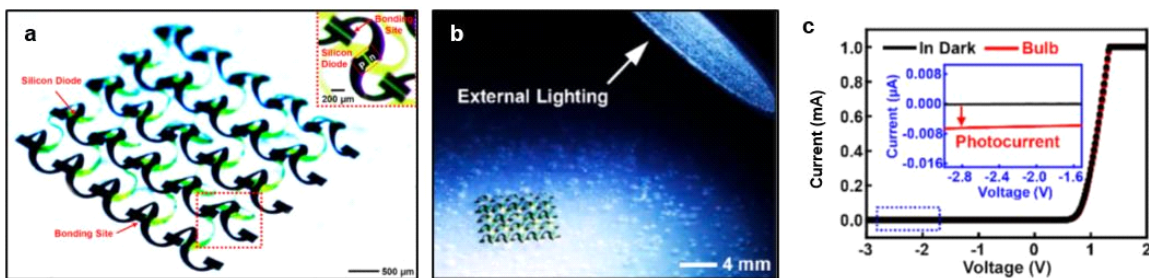


그림 5. 기계적 박리공정으로 제작된 3차원 구조를 가지는 실리콘 광검출소자. (a) 3차원 전자소자 어레이의 광학현미경 사진. (b) 외부 광원에 노출된 3차원 전자소자. (c) 3차원 실리콘 광검출소자의 dark current와 외부 광원에 의해 발생한 photocurrent 그래프.¹⁵

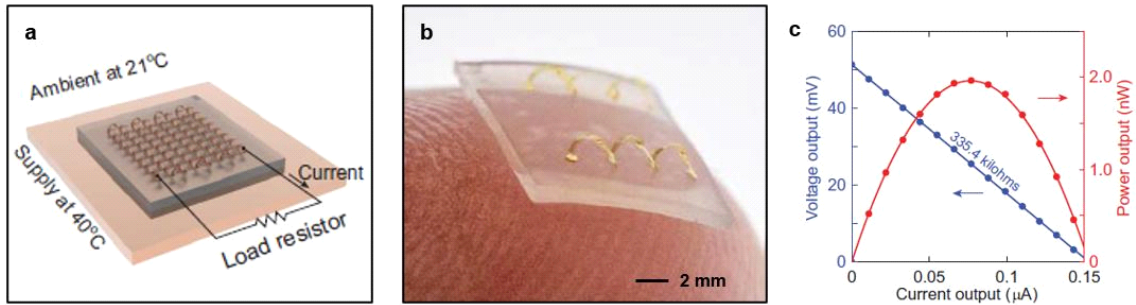


그림 6. 에너지 하베스팅 기능이 가능한 3차원 코일 형태의 웨어러블 열전 소자. (a) 에너지 하베스팅 성능 평가를 위한 측정 실험 구성도. (b) 3차원 열전 코일의 사진 이미지. (c) 8×8 어레이 형태로 제조된 3차원 열전 코일의 전력 출력 그래프.¹⁶

2.2.2 3차원 에너지 하베스팅 소자

그림 6a,b는 기계적 바리공정과 무기 열전 소재를 사용해서 3차원 형태로 구현된 소형 웨어러블 열전 소자의 모식도와 실제 사진을 보여주고 있다. 본 연구에서는 인체 피부 표면 온도와 소자의 온도 차이에 의한 열전 효과를 이용하여 에너지 하베스팅(energy harvesting) 기능을 구현하였다. 그림 6c는 8×8 어레이 형태로 구현된 3차원 코일 형태의 열전 소자 성능을 보여주고 있으며, 발생 가능한 최대 전력은 약 2 nW로 측정되었다. 고성능 열전 소자를 제조하기 위해서는 소자 터미널(terminals) 사이에 큰 온도차이가 존재해야 한다는 것과 주변 환경에 대해 낮은 열 임피던스를 갖는 계면을 달성해야 한다는 어려움이 존재하는데 3차원 구조를 도입할 경우 이러한 문제들을 많은 부분 해결할 수 있다.¹⁶

2.2.3 3차원 사물인터넷 소자

그림 7은 2차원 형태의 연성인쇄회로기판(flexible printed

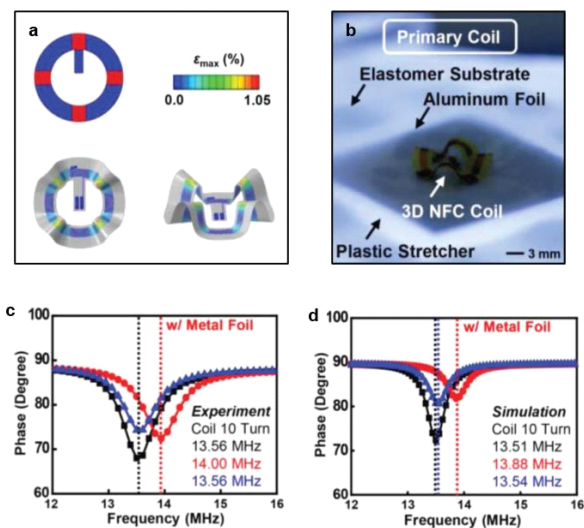


그림 7. 3차원 근거리 무선 통신(near field communication, NFC) 소자. (a) 3차원 안테나의 기계적 시뮬레이션 결과. (b) 제조된 3차원 안테나의 사진 이미지. 기판을 늘렸을 때 3차원 안테나의 공진 주파수 변화와 관련된 (c) 실제 측정 결과와 (d) 시뮬레이션 결과.¹⁷

circuit board, FPCB)을 전자소자 전구체(precursor) 재료로 사용한 3차원 구조의 근거리 무선 통신(near field communication, NFC) 소자를 보여주고 있다. 3차원 소자의 경우 2차원 소자 보다 넓은 감지 범위와 공진 주파수(resonance frequency) 조절 가능이라는 두 가지 장점을 갖는다. 그림 7a,b는 실험에 사용한 2차원 전자소자 전구체와 유한요소해석(finite element analysis, FEA) 결과 그리고 실제 구현된 3차원 사물인터넷 소자 모습을 각각 보여주고 있다. 추가로 그림 7c,d에서는 기판을 늘릴 경우 공진 주파수(resonance frequency)가 조절될 수 있음을 보여주고 있다.¹⁷

2.2.4 3차원 뉴럴 네트워크용 바이오 소자

그림 8은 바이오 메디컬 연구 분야에 활용할 수 있는 3차원 구조를 가지는 세포 배양용 전자 지지체(electronic scaffold)에 관한 실험 결과를 보여주고 있다. 위에서 채취한 DRG(dorsal root ganglion) 세포를 3차원 전자 지지체(electronic scaffold)에 배양함으로써, 외부 자극에 대한 신경망 반응 연구를 수행할 수 있다(그림 8a,b). 그림 8c,d는 외부 전기 자극을 가했을 때 나타나는 DRG 세포 반응에 대한 실험 결과 그래프를 보여 주고 있다.¹⁸

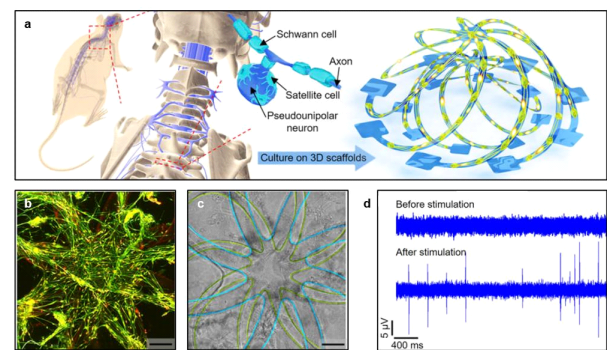


그림 8. DRG 뉴럴 네트워크를 위한 3차원 전자 지지체. (a) 3D 구조체에서 배양된 위의 DRG 세포 실험 모식도. 3차원 전자 지지체에서 배양된 DRG 세포의 (b) 공초점 형광(confocal fluorescence) 이미지와 (c) 전자현미경 이미지. (d) 외부 자극에 따른 세포 반응 신호 측정 결과 그래프.¹⁸

3. 결론

본 총설에서는 “늘어나는 가판”과 “기계적 박리공정(mechanical buckling process)”을 이용하여 3차원 구조를 갖는 고분자 소자를 만드는 공정과 응용 분야에 대해서 살펴보았다. 특히 전자소자, 에너지 소자, 사물인터넷 소자, 바이오 소자 분야에서 주제와 관련된 최신 연구 결과들을 소개하고 그들이 가지는 공학적 의미에 대해서 설명하였다. 앞으로 추가적인 연구 개발 활동을 통해서 3차원 고분자 소자가 더 많은 공학 분야에 응용될 수 있을 것이라 기대해 본다.

참고문헌

1. T. H. Ware, M. E. McConney, J. J. Wie, V. P. Tondiglia, and T. J. White, *Science*, **347**, 6225 (2015).
2. B. Tian, J. Liu, T. Dvir, L. Jin, J. H. Tsui, Q. Qing, Z. Suo, R. Langer, D. S. Kohane, and C. M. Lieber, *Nat. Mater.*, **11**, 986 (2012).
3. X. Liu, H. Yuk, S. Lin, G. A. Parada, T. C. Tang, E. Tham, C. De La Fuente-Nunez, T. K. Lu, and X. Zhao, *Adv. Mater.*, **30**, 1704821 (2018).
4. C. Py, P. Reverdy, L. Doppler, J. Bico, B. Roman, and C. N. Baroud, *Phys. Rev. Lett.*, **98**, 156103 (2007).
5. W. Lu, W. Bai, H. Zhang, C. Xu, A. M. Chiarelli, A. Vázquez-Guardado, Z. Xie, H. Shen, K. Nandoliya, H. Zhao, K. Lee, Y. Wu, D. Franklin, R. Avila, S. Xu, A. Rwei, M. Han, K. Kwon, Y. Deng, X. Yu, E. B. Thorp, X. Feng, Y. Huang, J. Forbess, Z. -D. Ge, and J. A. Rogers, *Sci. Adv.*, **7**, eabe0579 (2021).
6. Y. Shi, M. Yoonessi, and R. A. Weiss, *Macromolecules*, **46**, 4160 (2013).
7. Y. Park, H. Luan, K. Kwon, S. Zhao, D. Franklin, H. Wang, H. Zhao, W. Bai, J. U. Kim, W. Lu, J. H. Kim, Y. Huang, Y. Zhang, and J. A. Rogers, *Adv. Funct. Mater.*, **29**, 1903181 (2019).
8. S. Lim, H. Luan, S. Zhao, Y. Lee, Y. Zhang, Y. Huang, J. A. Rogers, and J. H. Ahn, *Adv. Mater.*, **32**, 2001303 (2020).
9. Y. Liu, X. Wang, Y. Xu, Z. Xue, Y. Zhang, X. Ning, X. Cheng, Y. Xue, D. Lu, Q. Zhang, F. Zhang, J. Liu, X. Guo, K. C. Hwang, Y. Huang, J. A. Rogers, and Y. Zhang, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, **116**, 15368 (2019).
10. H. Luan, Q. Zhang, T. -L. Liu, X. Wang, S. Zhao, H. Wang, S. Yao, Y. Xue, J. W. Kwak, W. Bai, Y. Xu, M. Han, K. Li, Z. Li, X. Ni, J. Ye, D. Choi, Q. Yang, J. -H. Kim, S. Li, S. Chen, C. Wu, D. Lu, J. -K. Chang, Z. Xie, Y. Huang, and J. A. Rogers, *Sci. Adv.*, **7**, 3686 (2021).
11. X. Wang, X. Guo, J. Ye, N. Zheng, P. Kohli, D. Choi, Y. Zhang, Z. Xie, Q. Zhang, H. Luan, K. Nan, B. H. Kim, Y. Xu, X. Shan, W. Bai, R. Sun, Z. Wang, H. Jang, F. Zhang, Y. Ma, Z. Xu, X. Feng, T. Xie, Y. Huang, Y. Zhang, and J. A. Rogers, *Adv. Mater.*, **31**, 1805615 (2019).
12. H. U. Chung, B. H. Kim, J. Y. Lee, J. Lee, Z. Xie, E. M. Ibler, K. Lee, A. Banks, J. Y. Jeong, J. Kim, C. Ogle, D. Grande, Y. Yu, H. Jang, P. Assem, D. Ryu, J. W. Kwak, M. Namkoong, J. bin Park, Y. Lee, D. H. Kim, A. Ryu, J. Jeong, K. You, B. Ji, Z. Liu, Q. Huo, X. Feng, Y. Deng, Y. Xu, K. -I. Jang, J. Kim, Y. Zhang, R. Ghaffari, C. M. Rand, M. Schau, A. Hamvas, D. E. Weese-Mayer, Y. Huang, S. M. Lee, C. H. Lee, N. R. Shanbhag, A. S. Paller, S. Xu, and J. A. Rogers, *Science*, **363**, 947 (2019).
13. S. Xu, Z. Yan, K. -I. Jang, W. Huang, H. Fu, J. Kim, Z. Wei, M. Flavin, J. McCracken, R. Wang, A. Badea, Y. Liu, D. Xiao, G. Zhou, J. Lee, H. U. Chung, H. Cheng, W. Ren, A. Banks, X. Li, U. Paik, R. G. Nuzzo, Y. Huang, Y. Zhang, and J. A. Rogers, *Science*, **347**, 154 (2015).
14. M. Eidini and G. H. Paulino, *Sci. Adv.*, **1**, e1500224 (2015).
15. B. H. Kim, J. Lee, S. M. Won, Z. Xie, J. K. Chang, Y. Yu, Y. K. Cho, H. Jang, J. Y. Jeong, Y. Lee, A. Ryu, D. H. Kim, K. H. Lee, J. Y. Lee, F. Liu, X. Wang, Q. Huo, S. Min, D. Wu, B. Ji, A. Banks, J. Kim, N. Oh, H. M. Jin, S. Han, D. Kang, C. H. Lee, Y. M. Song, Y. Zhang, Y. Huang, K. I. Jang, and J. A. Rogers, *ACS Nano*, **12**, 4164 (2018).
16. K. Nan, S. D. Kang, K. Li, K. Jun Yu, F. Zhu, J. Wang, A. C. Dunn, C. Zhou, Z. Xie, M. T. Agne, H. Wang, H. Luan, Y. Zhang, Y. Huang, G. Jeffrey Snyder, and J. A. Rogers, *Sci. Adv.*, **4**, eaau5849 (2018).
17. B. H. Kim, F. Liu, Y. Yu, H. Jang, Z. Xie, K. Li, J. Lee, J. Y. Jeong, A. Ryu, Y. Lee, D. H. Kim, X. Wang, K. H. Lee, J. Y. Lee, S. M. Won, N. Oh, J. Kim, J. Y. Kim, S. J. Jeong, K. I. Jang, S. Lee, Y. Huang, Y. Zhang, and J. A. Rogers, *Adv. Funct. Mater.*, **28**, 1803149 (2018).
18. Z. Yan, M. Han, Y. Shi, A. Badea, Y. Yang, A. Kulkarni, E. Hanson, M. E. Kandel, X. Wen, F. Zhang, Y. Luo, Q. Lin, H. Zhang, X. Guo, Y. Huang, K. Nan, S. Jia, A. W. Orahram, M. B. Mevis, J. Lim, X. Guo, M. Gao, W. Ryu, K. J. Yu, B. G. Nicolau, A. Petronico, S. S. Rubakhin, J. Lou, P. M. Ajayan, K. Thornton, G. Popescu, D. Fang, J. v. Sweedler, P. v. Braun, H. Zhang, R. G. Nuzzo, Y. Huang, Y. Zhang, and J. A. Rogers, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, **114**, E9455 (2017).