

전하 수송층으로 탄소 기반의 소재를 이용한 광전소자 연구 동향

Research Trends on Optoelectronic Devices Using Carbon Based Materials as a Charge Transport Layer

이보람 · 송명훈 | Bo Ram Lee · Myoung Hoon Song

School of Mechanical and Advanced Materials Engineering/Low Dimensional Carbon Materials Center,
Ulsan National Institute of Science and Technology (UNIST), UNIST-gil 50, Ulsan 689-805, Korea
E-mail: mhsong@unist.ac.kr

1. 서론

탄소는 없어서는 안 되는 가장 기본적인 원소 중의 하나이며 자연에 4번째로 많이 존재하는 비금속 원소이다. 또한 여러 가지 형태의 동소체를 만들 수 있으며 물리적인 특성 또한 다양하다. 이런 탄소를 기반으로 하는 소재는 이미 오래 전부터 숯이나 먹과 같은 형태로 사용되었으며 수십 년 전부터는 0D의 풀러렌, 1D의 나노튜브 그리고 2D의 그래핀과 같은 탄소 동소체에 대한 재료 연구가 활발하게 이루어졌다. 탄소소재로는 강도, 열전도성, 탄성 등이 뛰어나 물리적, 화학적 안정성이 매우 뛰어날 뿐 아니라, 전기적 성질 또한 우수하여 반도체, 디스플레이, 태양전지, 트랜지스터, 바이오센서 등과 같은 전자소자에 많이 사용되고 있다.

특히 공액 고분자를 바탕으로 하는 광전소자는 탄소소재와 같은 유기물로서 물질간의 호환성이 높고 초경량, 저가 비용, 대면적화 등과 같은 많은 장점을 가지고 있으며, 최근 들어 광전자소자 연구는 전세계적으로 큰 관심 속에 나날이 발전하고 있다. 예를 들면 지구 온난화와 같은 환경문제가 대두되면서 고분자를 이용한 친환경적인 태양전지 개발과 디스플레이와 조명 등에 사용되며 빠른 응답시간, 넓은 시야각, 고화질 등의 장점을 가진 발광소자 OLED(organic light-emitting diode) 개발 등을 들 수 있다. 하지만 많은 연구 노력에도 불구하고 고분자 기반의 태양전지와 발광소자는 비교적 낮은 소자 성능 및 안정성 문제 때문에 개선되어야 할 여지가 충분히 남아있다. 특히 태양전지와 발광소자에서 전하의 주입 및 수송층은 높은 소자성능과 소자 안정성을 위해 매우 중요한 요소이다.

보편적으로 유기 태양전지와 발광소자 구조는 양극/정공수송층/광활성층(태양전지) 또는 발광층(발광소자)/전자수송층/음극 구조로 이루어져 있으며 크게 conventional 구조와 inverted 구조 두 가지로 나눌 수 있다(그림 1).

Conventional 구조는 양극으로 높은 일함수를 가지는 전도성 투명전극(ITO나 FTO 등)을 사용하며 poly(styrenesulfonate)-doped poly(3,4-ethylenedioxythiophene)(PEDOT:PSS)나 p형 금속 산화물(NiO,

Author



이보람

2010
2010-현재
울산대학교 물리학과 (학사)
울산과학기술대학교 기계 및
신소재공학부
(석·박사 통합과정)



송명훈

2000
2002
2005
2005-2006
2007-2009
2009-현재
한양대학교 화학공학과 (학사)
한국과학기술원 생명화학공학과 (석사)
동경공업대학교 유기·고분자물질
전공 (박사)
한국과학기술원 생명화학공학과
(Post-Doc.)
Univ. of Cambridge, Cavendish
Lab. (Post-Doc.)
울산과학기술대학교 기계 및
신소재공학부 조교수/부교수

WO₃ 등)을 정공 수송층으로 사용한다. 광활성층(태양전지) 또는 발광층(발광소자)으로는 고분자 물질을 사용하며 낮은 일함수를 가지는 금속(Ca/Al, LiF/Al 등)을 음극으로 사용한다.

Conventional 구조에서 가장 많이 사용되는 PEDOT:PSS는 높은 전기 전도성을 가지며 ITO와 광활성층(태양전지) 또는 발광층(발광소자) 사이에 접촉장벽을 줄임으로써 효과적인 정공 수송을 할 수 있다. 하지만 PEDOT:PSS는 강한 산성의 물질(PH ~1)로써 ITO를 부식시켜 결국 소자의 성능과 안정성을 감소시키는 단점이 있다.^{1,2} 게다가 발광소자에서 발광층과 PEDOT:PSS 계면 사이에 exciton quenching을 일으켜 발광효율을 감소시킨다.^{3,4}

p형 금속 산화물은 광학적으로 투명하고 공기 안정성이 우수하며 효과적인 정공 수송을 할 수 있지만 샘플 규격이 진공 챔버에 제약을 받아 대면적화하기가 어렵고 진공 증착을 해야 하기 때문에 제작 방법이 복잡하다. 또한 진공 증착 방법은 간단하면서도 대면적화를 할 수 있는 용액공정(solution-process) 방식 흐름에도 위배 되기도 한다.

따라서 이러한 정공 수송층의 문제를 해결하기 위해 탄소를 기반으로 하는 graphene oxide(GO) 나 reduced graphene oxide(rGO) 등을 이용하여 효과적인 정공 수송 및 소자 성능과 소자 안정성을 향상시키는 연구들이 활발하게 이루어지고 있다. 자세한 내용은 본문에서 다루기로 하겠다.

Inverted 구조는 conventional 구조와 반대로 전도성 투명전극(ITO나 FTO 등)을 음극으로 사용하며 n형 금속 산화물(ZnO, HfO₂ 등)을 전자 수송층으로 사용한다. 광활성층(태양전지) 또는 발광층(발광소자)은 동일하게 고분자 물질을 사용하고, MoO₃나 다른 p형 금속 산화물을 정공 수송층으로 사용하며 높은 일함수를 가지는 금속(Au, Ag 등)을 양극으로 사용한다. Inverted 구조는 금속 산화물을 전하 수송층으로 사용하여 공기 및 소자 안정성이 매우 높은 편이지만 전하수송(전자와 정공) 차이가 심각하게 불균형을 이루고 있어 소자 성능을 최대한 활용하기 힘들다. 양극에서는 고분자 물질의 최고준위 점유 분자궤도(highest occupied molecular orbital, HOMO)와 MoO₃/Au 사이에서 옴 접합이 이루어

져 매우 우수한 정공 수송을 하는 반면에 음극에서는 ZnO(~4.0 eV)와 같은 n형 금속 산화물의 전도대(conduction band)와 고분자의 최저준위 비점유 분자궤도(lowest unoccupied molecular orbital, LUMO) 사이에 에너지 장벽이 너무 커서 효과적인 전자 수송이 어렵다. 이러한 낮은 전자 수송 문제를 해결하기 위해 광활성층(태양전지)/발광층(발광소자) 물질의 고분자와 n형 금속 산화물 사이에 중간층(interlayer)으로 자기조립 쌍극자 분자(self-assembled dipole molecule, SAM),^{5,6} 이온성 액체(ionic liquid, IL),⁷ 공액 고분자 전해질(conjugated polymer electrolyte, CPE)⁸ 등을 도입하여 n형 금속 산화물 계면의 전도대를 바꿈으로써 전자 수송을 향상시키는 연구가 이루어지고 있다. 이와 더불어 최근에는 n형 금속 산화물 안에 질소를 도핑한 CNT(N-CNT)를 첨가하여 전자의 이동도를 향상시키는 연구도 진행되고 있다.

본 특집에서는 conventional 구조와 inverted 구조의 태양전지 및 발광소자에 사용되는 전하 수송층을 탄소 기반의 전하 수송층 물질로 대체하여 소자성능과 소자 안정성을 향상시킨 연구 사례를 소개하려고 한다. 그 후에 최신 연구동향을 살펴 보고 탄소 기반의 소재를 이용한 광전소자의 발전 방향에 대해서 논의하고자 한다.

2. 본론

2.1 Conventional 구조에서 태양전지/발광소자의 탄소 기반의 전하 수송층

2.1.1 탄소 기반의 전하 수송층을 이용한 Conventional 태양전지

2010년에 National Taiwan University의 Chun-Wei Chen 교수팀과 Rutgers University의 Manish Chhowalla 교수의 공동연구에서 PEDOT:PSS 대신 용액공정의 graphene oxide(GO)를 정공 수송층으로 사용한 태양전지를 개발함으로써 탄소 기반의 정공 수송층 개발이 시작되었다. GO는 PEDOT:PSS 용액과는 달리 중성의 용액으로 ITO의 부식의 우려를 없앨 수 있고 ITO 전극과 광활성층의 poly(3-hexylthiophene)(P3HT):phenyl-C₆₁-butyric acid methyl ester(PCBM) 사이에서 효과적인 정공 수송과 3.6 eV의 밴드

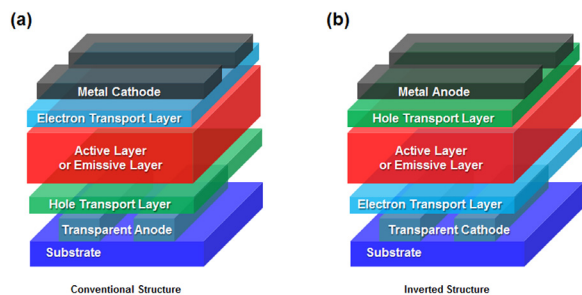


그림 1. 고분자 태양전지/발광소자의 Conventional 구조 (a)와 Inverted 구조 (b).

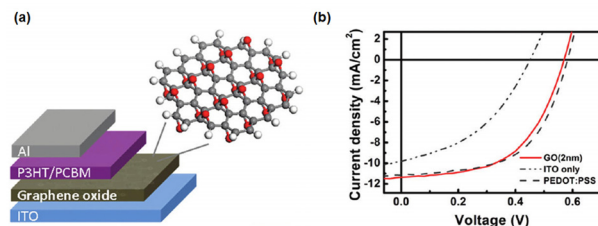


그림 2. 정공 수송층으로 GO를 사용한 고분자 태양전지 구조 (a) 및 소자 특성 비교 (b).

갭으로 인한 전자 저지현상(electron blocking effect)을 통해 전자와 정공의 재결합과 누설 전류를 줄임으로써 PEDOT:PSS를 사용한 태양전지(3.6%)와 유사한 효율(3.5%)을 보고하였다(그림 2).⁹

GO를 PEDOT:PSS 대신 정공 수송층으로 사용한 연구가 보고된 후, 2011년에 Korea Institute of Science and Technology (KIST)의 나석인 박사팀에서 *p*-toluenesulfonyl hydrazide (*p*-TosNHNH₂)을 첨가하여 환원시킨 Graphene Oxide (pr-GO)를 PEDOT:PSS 대신 정공 수송층으로 이용한 태양전지를 보고하였다. 이는 효과적인 정공 수송 능력 뿐 아니라 앞서 서두에서 말한 바와 같이 PEDOT:PSS는 강한 산성 물질로서 소자 안정성이 떨어지지만 pr-GO를 이용한 태양전지는 PEDOT:PSS를 사용한 태양전지보다 소자 안정성이 높

다는 것을 증명했다(그림 3).¹⁰

기존의 정공 수송층을 순수한 GO로만 사용했다면 2011년에 Northwestern University의 J. Huang 팀은 GO 용액 속에 전도성이 좋은 소량의 single walled carbon nanotube (SWCNT)를 첨가시킨 GO:SWCNT 정공수송층을 이용한 태양전지(4.10%)를 개발하여 SWCNT가 없는 GO 정공 수송층을 이용한 태양전지(3.28%) 보다 25%의 소자성능을 향상시켰다. GO는 sp²와 sp³가 공존하는 물질로써 어느 정도의 전도성을 가지고 있지만 PEDOT:PSS 만큼 좋은 전도성을 가지지 못하기 때문에 전도성이 좋은 SWCNT를 첨가함으로써 전도도를 향상시킬 수 있었다. 또한 PEDOT:PSS 보다 장파장에서 더 효과적인 광투과도를 나타냈다(그림 4).¹¹

또한 J. Huang 팀은 다음 해인 2012년에는 같은 GO:

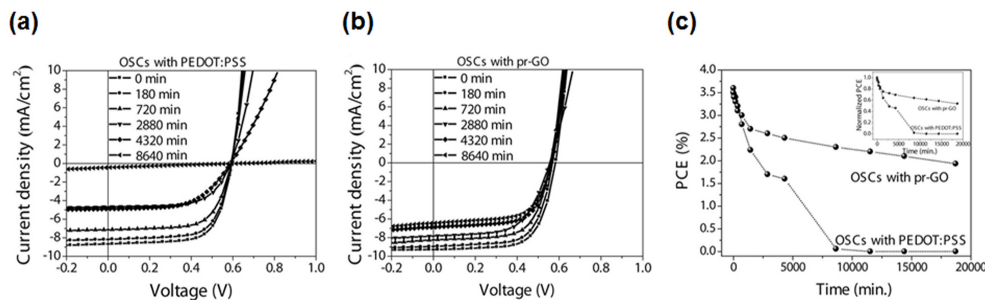


그림 3. 공기 중에서 시간에 따른 태양전지의 소자 안정성 테스트.

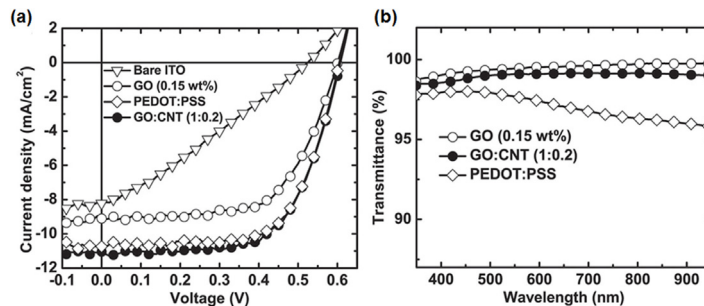


그림 4. GO:SWCNT를 이용한 태양전지 소자 특성 (a) 및 파장별 광투과도 (b).

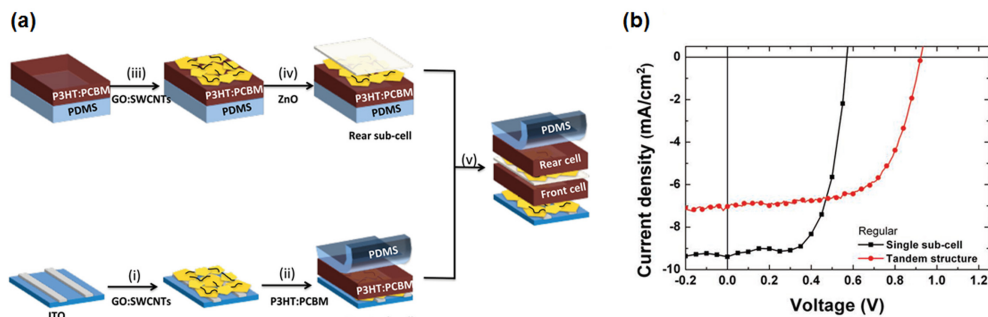


그림 5. GO:SWCNT 정공 수송층을 이용한 탠덤 구조의 conventional 태양전지 제작방법 (a) 및 소자 특성 (b).

표 1. P-GO와 PEDOT을 정공 수송층으로 사용하는 발광소자 소자 특성

HIB layer	Thickness [nm]	Turn-on voltage [V]	Lumin. Eff. [cd/A]	Power Eff. [lm/W]
P-GO ^a	1	8.1-8.3	21	6
	2	7.7-7.9	23	6
P-GO ^b	1	2.5-2.7	23	14
	2	2.6-2.8	20	13
P-GO ^c	1	4.3-4.5	20	11
PEDOT	40	2.8-3.0	15	11

^aSample and concentration of P-GO (in DMF): sample A, 0.6 mg/mL.

^bSample and concentration of P-GO (in DMF): sample B, 1.0 mg/mL.

^cSample and concentration of P-GO (in DMF): sample C, 1.8 mg/mL.

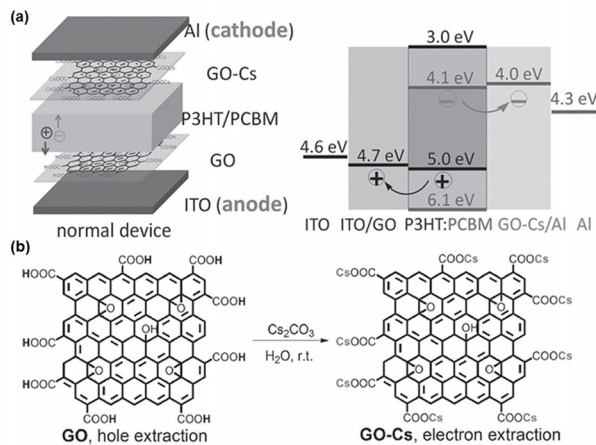


그림 6. GO와 GO-Cs 전하 수송층을 사용하는 conventional 태양전지 구조 (a) 및 GO와 GO-Cs의 도식.

SWCNT 정공 수송층을 이용하여 탠덤 구조의 conventional 태양전지를 개발하였다. GO:SWCNT 정공 수송층을 이용한 탠덤 구조의 태양전지(4.10%)는 단일 구조의 태양전지 효율(3.41%)에 비해 20% 정도 증가됨을 보고했다(그림 5).¹²

GO를 정공 수송층으로만 사용하던 것을 2012년에 L. Dai 팀이 GO의 -COOH 기능기 대신 탄산 세슘(Cs_2CO_3)를 도핑하여 -COOCs의 기능기로 바꾸어 전자 수송이 가능하도록 만들었다. 이를 바탕으로 정공 수송층에는 고유한 GO(4.7 eV)를 사용하고 전자 수송층에는 GO-Cs(4.0 eV)를 사용하여 모든 전하 수송층을 GO로 하는 conventional 태양전지를 개발했다. ITO / GO / P3HT:PCBM / GO-Cs / Al 구조의 태양전지(3.67%)는 ITO / PEDOT:PSS / P3HT:PCBM / Al 구조의 사용하는 태양전지(2.09%)에 비해 효율이 75% 정도 증가됨을 보고하였다(그림 6).¹³

2013년에는 KAIST의 김상욱 교수팀이 질소가 도핑된 multiwalled carbon nanotubes CNT(MCNT)에 indium phosphite(InP) quantum dot(QD)이 존재하는 하이브리드 나노 물질을 개발하여 광활성층인 P3HT:indene- C_{60} bisadduct (ICBA) 물질과 함께 섞어 전자 수송을 효과적으로 향상 시켜 6.11%의 태양전지 효율을 보고하였다. 이는 QD:NCNT 하이브리드 나노 물질이 없는 태양전지(4.68%)에 비해 30% 정

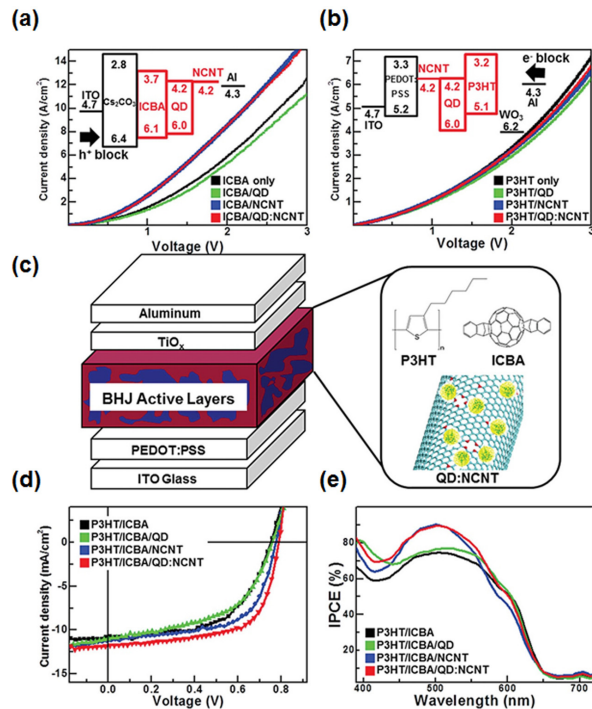


그림 7. QD:NCNT를 이용한 태양전지의 구조 및 특성.

도 효율이 증가된 결과이다(그림 7).¹⁴

2.1.2 탄소 기반의 전하 수송층을 이용한 Conventional 발광소자

2010년에 GO를 이용한 태양전지가 보고 되면서 발광 소자에서도 GO를 정공 수송층으로 사용하는 연구들이 활발 하게 이루어졌다. 2011년에 Z. Y. Wang 팀이 저분자 발광 물질을 사용하는 발광소자에 정공 수송층으로 phenylated graphene oxide(P-GO)를 개발하였다. 이는 GO가 발광소 자 구조에서도 정공 수송층으로 사용할 수 있다는 가능성을 제시하였다(표 1).¹⁵

이듬해인 2012년에 UNIST의 송명훈 교수, 신현석 교수 공동 연구팀이 PEDOT:PSS 대신 GO를 정공 수송층으로 사용하여 고효율의 고분자 발광소자를 개발하였다. GO를 사용한 발광소자(19.1 cd/A)는 PEDOT:PSS를 사용한 발광소자 (8.7 cd/A)에 비해 120%의 효율향상을 보고하였다. 뿐만 아

니라 실질적으로 GO가 밴드갭이 작은 r-GO에 비해 electron blocking 효과가 큰 것을 증명하였고 photoluminescence quantum efficiency(PLQE)와 exciton life time 측정법에 의해 GO가 PEDOT:PSS 보다 exciton quenching이 덜 일어남을 실험적으로 확인하였고 이를 통해 GO가 정공 수송층 역할 뿐 아니라 소자 성능 및 효율에 어떻게 기여하는지에 대한 메커니즘 분석을 하였다(그림 8).¹⁶

또한 UNIST의 송명훈 교수와 전기연구원의 한중탁 박사팀이 SWCNT전극 위에 평평한 GO를 코팅을 하여 도광효과에 의한 SWCNT전극자체의 전기전도도도 향상시키고 표면도 평판하게 하여 exciton quenching도 막아주고 표면을 소수성에서 친수성으로 바꾸어서 PEDOT:PSS의 코팅이 잘 되도록 하는 역할을 할 수 있으므로써 탄소기반 전극을 사용하였을 경우 surface modifier로써 유용성을 보여주었다(그림9).¹⁷

2.2 Inverted 구조에서 태양전지/발광소자의 탄소 기반의 전하 수송층

2.2.1 탄소 기반의 전하 수송층을 이용한 Inverted 태양전지

J. Huang 팀은 conventional 태양전지에서 사용했던 정공 수송층 GO:SWCNT를 이용하여 탠덤 구조의 inverted 태양

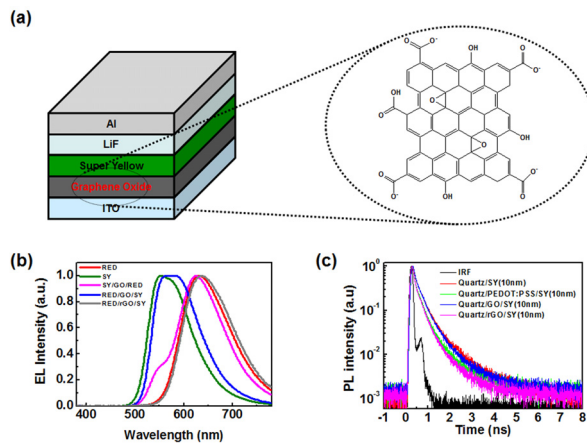


그림 8. GO를 정공 수송층으로 사용하는 발광소자 구조와 도식 (a) 및 전자방해층 특성분석 (b) 및 exciton의 life time 특성 분석.

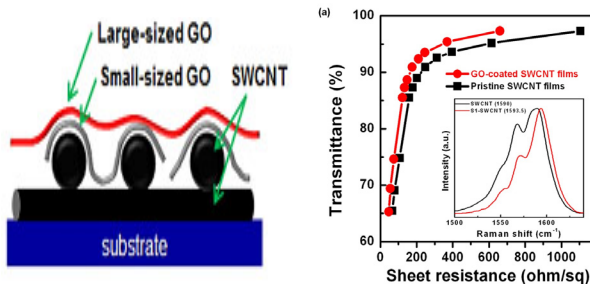


그림 9. SWCNT전극 위에 GO가 처리된 플렉시블 투명전극의 구조 및 투과대면저항 데이터.

전지를 재현하였다. GO:SWCNT 정공 수송층을 이용한 탠덤 구조의 inverted 태양전지(3.50%)는 단일 구조의 inverted 태양전지(2.90%)보다 20% 정도 효율이 향상되었음을 보고했다.¹² 앞서 conventional 구조에서 GO와 GO-Cs를 전하 수송층으로 사용한 Case Western Reserve University의 Liming Dai 교수팀이 동일한 물질로 inverted 구조에서 태양 전지를 재현하였다. ITO / GO-Cs / P3HT:PCBM / GO / Al 구조의 태양전지(2.97%)는 ITO / Cs₂CO₃ / P3HT:PCBM / PEDOT:PSS / Al 구조의 사용하는 태양전지(1.20%)에 비해 150% 정도 효율이 증가됨을 보고하였다(그림 10).¹³

2012년에 KAIST의 전석우 교수팀이 CNT 위에 원자층 증착 방법으로 titanium suboxide(TiO_x)를 코팅시켜 전자 수송층으로 이용하여 inverted 태양전지를 구현하였다. TiO_x 코팅된 CNT는 CNT를 통해 빠른 전도도 경로를 제공하고 TiO_x를 통해 정공주입을 방해함으로써 태양전지의 효율을 향상시킨다고 보고했다(그림 11).¹⁸

2.2.2 탄소 기반의 전하 수송층을 이용한 inverted 발광소자

2012년에 UNIST의 송명훈 교수와 KAIST의 김상욱 교수 공동연구팀은 ZnO 안에 CNT(ZnO/ CNT)를 첨가한 복합체를 전자 수송층을 개발함으로써 발광소자의 소자성능을 향상시켰다. 특히 N-doping을 제조된 ZnO/N-CNT 복합체 전자 수송층은 ZnO 전자 수송층보다 전자 이동도를 5배 증가시켰다. 또한 ZnO/N-CNT를 사용한 발광소자(14.3 cd/A)는 ZnO만 사용한 발광소자(6.9 cd/A)보다 발광효율(luminance efficiency)이 110% 향상되었다고 보고했다(그림 12).¹⁹

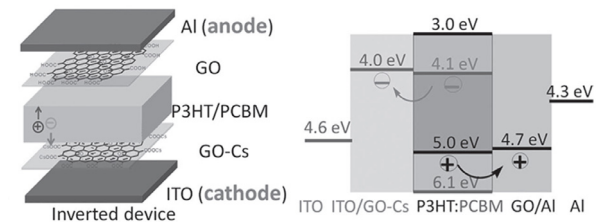


그림 10. GO와 GO-Cs 전하 수송층을 사용하는 inverted 태양전지 구조.

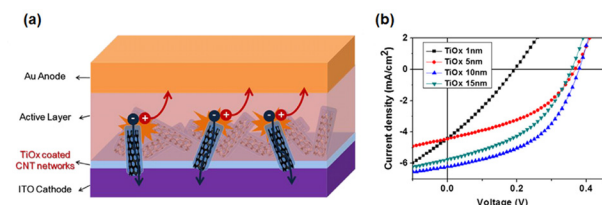


그림 11. TiO_x-coated CNT를 전자 수송층으로 사용한 inverted 태양전지 구조 (a) 및 소자 특성 비교 (b).

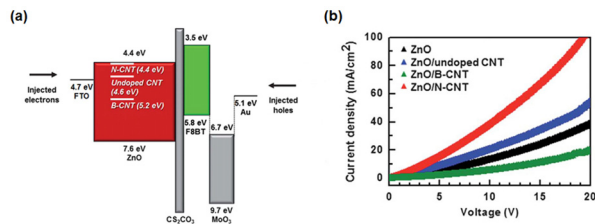


그림 12. ZnO/N-CNT를 전하 수송층으로 사용한 inverted 발광소자 구조 (a) 및 전자 이동도 특성분석 비교 (b).

3. 결론

지금까지 탄소를 기반으로 하는 전하 수송층을 이용한 태양전지/발광소자에 대한 연구동향을 간략히 살펴 보았다. convention 구조의 태양전지/발광소자에서 지금까지 PEDOT:PSS 물질을 정공 수송층으로 많이 사용하여 효과적인 정공 수송을 통해 소자성능은 우수한 편이지만 PEDOT:PSS와 발광층 사이에 exciton quenching의 문제는 여전히 존재하며 장파장에서의 투과율 감소라는 문제는 여전히 가지고 있고 또한 소자안정성에서도 문제가 여전히 남아 있다. 하지만 최근에 GO, rGO, GO:SWCNT 등의 물질로 정공 수송층을 대체하면서 소자성능의 향상 뿐 아니라 소자안정성 또한 확보할 수 있었다. 특히 소자의 안정성이 우수한 inverted 구조의 태양전지/발광소자에서는 전자와 정공의 주입 및 전송의 균형이 맞지 않아 소자성능을 최대한으로 이끌어 내지 못하였는데, GO-Cs, QD/NCNT, ZnO/N-CNT 등을 통해 전자의 이동도를 향상시키고 전하 블로킹을 통한 소자성능을 개선할 수 있었다.

최근 3년간 탄소를 기반으로 하는 전하 수송층 개발이 미국, 중국, 유럽, 한국 등 전세계적으로 활발하게 이루어지고 있어서 보다 우수한 전하 수송 능력을 가진 물질이 빠른 시일 안에 보고될 거라 예상된다. 이와 같이 탄소를 기반으로 하는 전하 수송층을 잘 개발하고 활용한다면 고분자 태양전지/발광소자의 상업화가 향후 몇 년 안에 이루어질 수 있을 거라 생각한다.

참고문헌

1. Y. H. Kim, S. H. Lee, J. Noh, and S. H. Han, *Thin Solid Films*, **510**, 305 (2006).
2. J. van de Lagemaat, T. M. Barnes, G. Rumbles, S. E. Shaheen, T. J. Coutts, C. Weeks, I. Levitsky, J. Peltola, and P. Glatkowski, *Appl. Phys. Lett.*, **88**, 233503 (2006).
3. H. Yan, P. Lee, N. R. Armstrong, A. Graham, G. A. Evmenenko, P. Dutta, and T. J. Marks, *J. Am. Chem. Soc.*, **127**, 3172 (2005).
4. X. H. Yang, D. C. Muller, D. Neher, and K. Meerholz, *Adv. Mater.*, **18**, 948 (2006).
5. H. Ma, H. L. Yip, F. Huang, and A. K. Y. Jen, *Adv. Funct. Mater.*, **20**, 1371 (2010).
6. J. S. Park, B. R. Lee, J. M. Lee, J. S. Kim, S. O. Kim, and M. H. Song, *Appl. Phys. Lett.*, **96**, 243306 (2010).
7. B. R. Lee, H. Choi, J. SunPark, H. J. Lee, S. O. Kim, J. Y. Kim, and M. H. Song, *J. Mater. Chem.*, **21**, 2051 (2011).
8. H. Choi, J. S. Park, E. Jeong, G. H. Kim, B. R. Lee, S. O. Kim, M. H. Song, H. Y. Woo, and J. Y. Kim, *Adv. Mater.*, **23**, 2759 (2011).
9. S. S. Li, K. H. Tu, C. C. Lin, C. W. Chen, and M. Chhowalla, *Acs Nano*, **4**, 3169 (2010).
10. J. M. Yun, J. S. Yeo, J. Kim, H. G. Jeong, D. Y. Kim, Y. J. Noh, S. S. Kim, B. C. Ku, and S. I. Na, *Adv. Mater.*, **23**, 4923 (2011).
11. J. Kim, V. C. Tung, and J. X. Huang, *Adv. Energy Mater.*, **1**, 1052 (2011).
12. V. C. Tung, J. Kim, and J. X. Huang, *Adv. Energy Mater.*, **2**, 299 (2012).
13. J. Liu, Y. H. Xue, Y. X. Gao, D. S. Yu, M. Durstock, and L. M. Dai, *Adv. Mater.*, **24**, 2228 (2012).
14. J. M. Lee, B.-H. Kwon, H. I. Park, H. Kim, M. G. Kim, J. S. Park, E. S. Kim, S. Yoo, D. Y. Jeon, and S. O. Kim, *Adv. Mater.*, DOI: 10.1002/adma.201204454 (2013).
15. Z. Zhong, Y. F. Dai, D. G. Ma, and Z. Y. Wang, *J. Mater. Chem.*, **21**, 6040 (2011).
16. B. R. Lee, J. W. Kim, D. Kang, D. W. Lee, S. J. Ko, H. J. Lee, C. L. Lee, J. Y. Kim, H. S. Shin, and M. H. Song, *Acs Nano*, **6**, 2984 (2012).
17. B. R. Lee, J. S. Kim, Y. S. Nam, H. J. Jeong, S. Y. Jeong, G. Lee, J. T. Han, and M. H. Song, *J. Mater. Chem.*, **22**, 21486 (2012).
18. S. H. Jin, G. H. Jun, S. H. Hong, and S. Jeon, *Carbon*, **50**, 4483 (2012).
19. J. S. Park, J. M. Lee, S. K. Hwang, S. H. Lee, H. J. Lee, B. R. Lee, H. I. Park, J. S. Kim, S. Yoo, M. H. Song, and S. O. Kim, *J. Mater. Chem.*, **22**, 12695 (2012).