

금속 박막 두께가 크랙 기반 신축성 하이브리드 압저항 전극의 스트레인 감지 특성에 미치는 영향

노지연¹ · 김미래² · 김종만^{1,2,3,*}

¹부산대학교 나노융합기술학과

²부산대학교 나노에너지공학과

³부산대학교 에너지융합기술연구소

Effect of Metal Film Thickness on Strain-Sensing Performance of Crack-Based Stretchable Hybrid Piezoresistive Electrode

Ji-Yeon Noh¹, Mirae Kim², and Jong-Man Kim^{1,2,3,*}

¹Department of Nano Fusion Technology, Pusan National University, Busan 46241, Republic of Korea

²Department of Nanoenergy Engineering, Pusan National University, Busan 46241, Republic of Korea

³Research Center for Energy Convergence Technology, Pusan National University, Busan 46241, Republic of Korea

Abstract: In recent decades, many research efforts have been devoted to developing high-performance stretchable strain sensors due to their potential for application in various emerging wearable sensor systems. This work presents a facile yet highly efficient way of modulating the sensing performance of a thin metal film/conductive composite hybrid piezoresistor-based stretchable strain sensor by simply controlling the metal film thickness. The hybrid strain sensor can be simply fabricated by sputtering a thin platinum (Pt) film onto a silver nanowire (AgNW)/dragon skin (DS) composite substrate prepared via a facile embed-and-transfer process in a reproducible manner. The density of the network-shaped mechanical crack induced in the Pt film tended to decrease with increasing the Pt thickness, thereby leading to a higher gauge factor of the sensor. The fabricated hybrid strain sensor also exhibited a large stretchability of 150% owing to its electrical robustness under strain, based on the unique morphology, formed of the network-shaped Pt crack and AgNW percolation network embedded in the DS matrix. Thanks to the balanced strain-sensing performance of the hybrid strain sensor in conjunction with large stretchability, the device was successfully demonstrated as a wearable human-activity monitoring solution that can monitor a wide range of human motions in real time.

(Received 14 July, 2022; Accepted 16 September, 2022)

Keywords: stretchable strain sensor, mechanical crack, conductive composite, metal film thickness

1. 서 론

저항형 스트레인 센서 (Resistive strain sensor)는 인가되는 입력에 비례하는 저항 변화를 통해 변형을 감지하는 소자로 최근 기계적인 신축성 (Mechanical stretchability) 확보를 통해 착용이 용이한 형태로 활발히 개발되고 있으며, 이를 미래형 스마트 헬스 모니터링 시스템 (Smart health monitoring system)을 포함한 다양한 응용 분야의

핵심 기술로 적용하기 위한 많은 시도가 진행되고 있다 [1-3]. 이를 위해 물리적인 외력에 효율적으로 반응할 수 있는 다양한 구조의 압저항 센싱 전극 (Piezoresistive sensory electrode)이 개발되고 있으며 [4-17], 전도성 나노물질 (Conductive nanomaterial)로 구성된 퍼콜레이션 네트워크 (Percolation network) [4-11], 기계적인 크랙 (Crack)이 형성된 금속 박막 (Thin metal film) [12-14], 이중 압저항 전극이 결합된 하이브리드 (Hybrid) 구조 [15-17] 등이 이에 속한다.

현재 높은 민감도 (Sensitivity)와 넓은 동작 범위 (Working range)를 갖는 저항형 스트레인 센서를 구현하기 위해 압저항 전극의 최적 구조 설계에 대한 연구가 활발히

- 김종만: 교수, 노지연: 박사과정, 김미래: 학사과정

*Corresponding Author: Jong-Man Kim

[Tel: +82-10-6289-4519, E-mail: jongkim@pusan.ac.kr]

Copyright © The Korean Institute of Metals and Materials

진행되고 있다 [4,14,15,18-20]. 전도성 나노물질 퍼콜레이션 네트워크의 밀도 (Density)를 조절함으로써 센서 특성을 제어하기 위한 시도가 보고된 바 있다 [4,18]. 이는 주로 전도성 나노물질의 코팅양을 조절하는 간단한 과정을 통해 효과를 얻을 수 있다는 장점이 있지만, 정밀하고 균일한 밀도 제어 및 재현성 (Reproducibility) 확보가 어려운 문제가 있다. 기능성 표면 구조를 도입하여 전도성 나노복합체 (Nanocomposite) 층에 유도되는 스트레인을 재분포 (Redistribution)시키는 전략을 통해 스트레인 센서의 성능을 개선한 연구 결과가 발표되었다 [19,20]. 이러한 방법은 다양한 표면 구조의 설계를 통해 센서의 특성을 제어할 수 있는 기능성은 제시하였으나 표면 구조 형성을 위한 추가 공정이 요구된다는 문제점이 있다. 이외에도 본 연구 그룹에서는 금속 박막과 신축성 기판 사이에 기능성 중간층을 삽입하여 주로 금속 박막에 유도되는 기계적인 크랙의 형상을 제어하는 방식을 통해 크랙 기반 스트레인 센서의 성능을 개선하는 연구를 수행하였다 [14,15]. 이를 통해 비교적 높은 민감도를 유지함과 동시에 넓은 인장 범위를 갖는 스트레인 감지 특성을 확보하였으나, 유도되는 크랙 형상이 중간층 형상에만 의존하여 결정되는 한계가 있다.

본 연구에서는 금속 박막/전도성 복합체 하이브리드 압저항 전극 기반 스트레인 센서의 특성에 금속 박막의 두께가 미치는 영향을 실험적으로 확인함으로써 센서 성능 제어를 위한 이차적인 전략을 제시하고자 하였다. 금속 박막의 두께 변화를 통해 크랙 밀도가 제어될 수 있음을 확인하였으며, 이를 기반으로 센서의 높은 민감도와 넓은 범위 동작 특성을 확보하였다. 이러한 균형 잡힌 성능과 기계적인 신축성으로 인해 하이브리드 스트레인 센서를 인체의 다양한 관절 부위에 쉽게 부착하여 연속적인 관절의 움직임을 모니터링할 수 있었으며, 이로써 실시간 인체 움직임 정보 수집을 위한 착용형 (Wearable) 센서로의 활용 가능

성을 검증하였다.

2. 실험 방법

2.1 AgNW 합성

본 연구에서는 은 나노선 (Silver nanowire, AgNW)을 전도성 복합체 구현을 위한 나노 물질로 활용하였으며, 기존에 보고한 폴리올 (Polyol) 공정을 기반으로 세부 조건을 수정하여 다음과 같이 AgNW를 합성하였다 [21]. 먼저 170°C 온도 조건에서 자력 교반기 (Magnetic stirrer)를 이용하여 1시간 동안 교반한 200 mL 에틸렌 글리콜 (Ethylene glycol, EG) 용액에 10 mM 농도의 염화 제2구리 (Copper(II) chloride) 800 μ L를 넣고 15분 동안 유지하였다. 여기에 0.22 mM 농도의 폴리비닐피롤리돈 (Polyvinyl pyrrolidone)과 91.1 mM 농도의 질산은 (silver nitrate)이 60 mL EG 용액에 각각 혼합된 두 혼합액을 시린지 펌프 (Syringe pump)를 이용하여 동시에 주입하고, 합성 반응을 유도하기 위해 같은 온도 및 교반 조건 하에서 1시간 동안 유지하였다. 합성된 AgNW는 원심분리를 기반으로 아세톤 (Acetone) 및 에탄올 (Ethanol)을 이용하여 수차례 세척을 반복한 후 2 mg/mL의 농도로 에탄올에 분산하여 코팅 (Coating) 용액을 준비하였다.

2.2 하이브리드 신축성 스트레인 센서 제작

그림 1은 하이브리드 압저항 전극 기반 신축성 스트레인 센서의 제작 과정 모식도를 보여준다. 전도성 복합체 기판 제작을 위해 먼저 20 mL AgNW 용액을 스프레이 (Spray) 코팅 공정을 이용하여 폴리이미드 (Polyimide, PI) 시트에 분사함으로써 전도성 네트워크 층을 형성하였다. 그 후 주제 (Prepolymer)와 경화제 (Curing agent)를 1:1의 질량비로 혼합한 탄성중합체 (Elastomer)인 드래곤 스킨 (Dragon

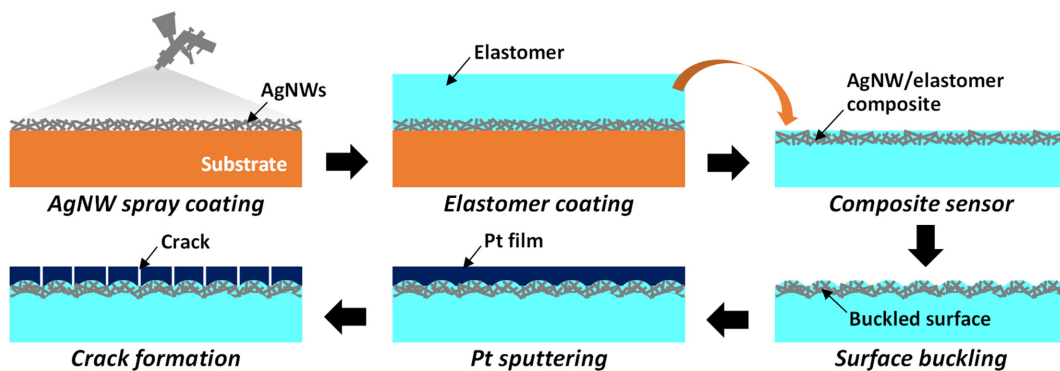


Fig. 1. Schematic illustration of the fabrication process of the Pt film/AgNW/DS composite hybrid piezoresistive electrode-based stretchable strain sensor.

Skin, DS)을 코팅된 AgNW 네트워크 필름 상에 붓고, DS가 AgNW 네트워크 사이에 잘 침투될 수 있도록 진공 데시케이터 (Vacuum desiccator)에서 30분 동안 시편을 유지시켰다. 70°C 오븐에서 45분 동안 열처리를 진행하여 경화시킨 후 PI 시트로부터 분리함으로써 AgNW가 신축성 DS 매트릭스 (Matrix)에 임베딩 (Embedding)된 전도성 복합체 기판을 준비하였으며, 복합체 층의 구조 및 거동의 안정성 확보를 위해 반복적인 인장-이완 (Stretch-release) 과정을 거쳤다. 그 후 이온 스퍼터 (Ion sputter)를 이용하여 백금 (Platinum, Pt) 박막을 증착한 후 인장을 통해 금속 박막에 기계적인 크랙을 유도함으로써 센서 제작을 완료하였다.

2.3 특성 평가

제작된 하이브리드 신축성 스트레인 센서의 표면 크랙 구조는 광학 현미경 (Optical microscope; BM60X, Olympus)을 이용하여 관찰되었다. 유리 기판에 증착된 Pt 박막의 두께는 원자힘 현미경 (Atomic force microscope, AFM; NX10, Park Systems)을 이용하여 측정하였다. 센서의 전기적인 특성은 전동 스탠드 (Motorized stand; JSV-H1000, JISC)를 통해 인장 힘을 인가하면서 디지털 멀티미터 (Digital multimeter; 34465A, Keysight Technologies)를 이용하여 소자의 전기적인 저항 (Electrical resistance) 변화를 실시간으로 측정함으로써 평가되었다.

3. 결과 및 고찰

본 연구에서 제안하는 금속 박막의 두께가 스트레인 감지 특성에 미치는 영향을 확인하기 위해 사용한 하이브리드 압저항 전극 기반 신축성 스트레인 센서는 그림 1에서 나타낸 바와 같이 AgNW/DS 복합체 층을 전사한 후 Pt

박막을 증착하는 간단하면서도 안정적인 임베드-전사 (Embed-and-transfer) 공정을 통해 제작되었다.

그림 2는 하이브리드 스트레인 센서의 제작 결과를 보여준다. 그림 2(a)의 디지털 이미지에서 볼 수 있는 바와 같이 센서는 $\sim 65 \times 3 \times 0.4 \text{ mm}^3$ 의 크기로 제작되었으며, 신축성 구조 및 얇은 두께로 인해 굴곡을 갖는 인체의 관절 부위에도 안정적으로 부착될 수 있다 (그림 2(a) inset). 이는 제작된 소자가 착용형 센서로 적용될 수 있는 가능성을 보여준다.

그림 2(b)의 광학 현미경 이미지는 120% 인장 시 하이브리드 압저항 전극의 대표적인 표면 형상을 보여준다. 신축성 폴리머 기판 상에 증착된 금속 박막에는 인장 시 인장 방향에 대해 수직 방향으로 정렬되는 채널 (Channel) 형상의 크랙이 유도되는 것이 일반적이나 [12,13], 제작된 하이브리드 전극의 Pt 박막 층에는 높은 밀도의 짧은 크랙들이 무작위로 분포된 형상을 나타냈다. 이는 Pt 증착 전 반복적인 인장-이완 과정에서 AgNW/DS 복합체 표면에 형성된 버클 (Buckle) 구조에 의해 재분포된 표면 스트레인이 Pt 크랙 형상을 결정하는데 직접적인 영향을 미친 결과로 판단된다. 그림 2(b) inset의 확대된 광학 현미경 이미지에서 볼 수 있는 바와 같이 인장에 따라 열린 크랙을 통해 드러난 AgNW/DS 복합체를 명확하게 확인할 수 있다. 그림 2(c)는 초기 상태에 있는 센서의 단면 광학 현미경 이미지이며, 제작된 하이브리드 압저항 전극의 대표적인 단면 형상을 보여준다. AgNW가 DS 매트릭스 내에 안정적으로 임베딩된 복합체 층이 센서 기판 표면 영역에 형성되어 있음이 확인되며, 이러한 복합체 층은 금속 박막의 두께 변화에 따른 크랙 형상 및 센서 특성의 제어 가능성을 정의할 수 있도록 하는 안정적인 지지층 역할을 수행할 수 있음을 시사한다.

금속 박막의 두께가 하이브리드 압저항 전극의 표면 형

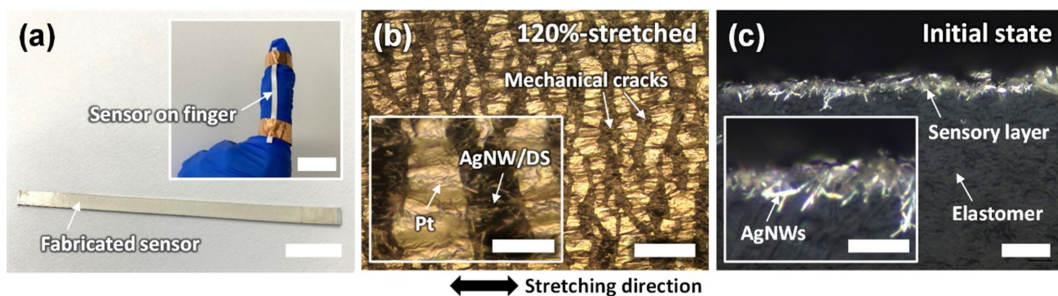


Fig. 2. Fabrication results. (a) digital image of the fabricated hybrid strain sensor, scale bar: 10 mm (inset: digital image of the device attached on the finger joint, scale bar: 20 mm), (b) top-view optical microscope image of the sensor under 120% strain, scale bar: 50 μm (inset: magnified optical microscope image, scale bar: 20 μm), and (c) cross-sectional optical microscope image of the device in the initial state, scale bar: 20 μm (inset: magnified optical microscope image, scale bar: 10 μm).

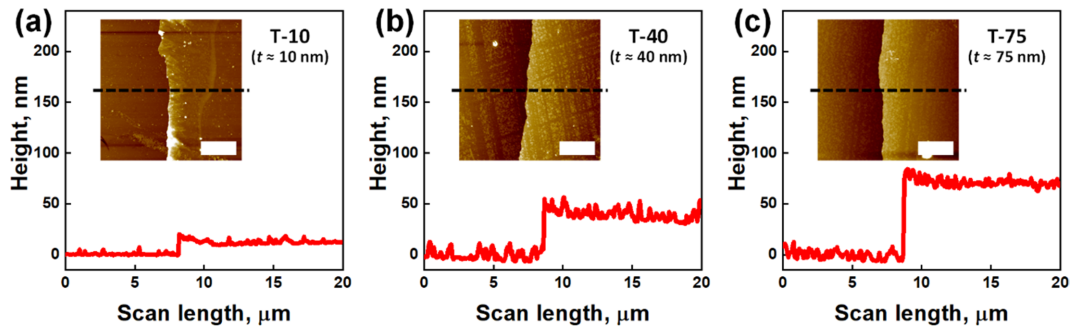


Fig. 3. AFM profiles showing the typical Pt thickness for each sensor model. (a) T-10, (b) T-40, and (c) T-75 (inset: corresponding AFM profiling images, scale bars: 5 μm).

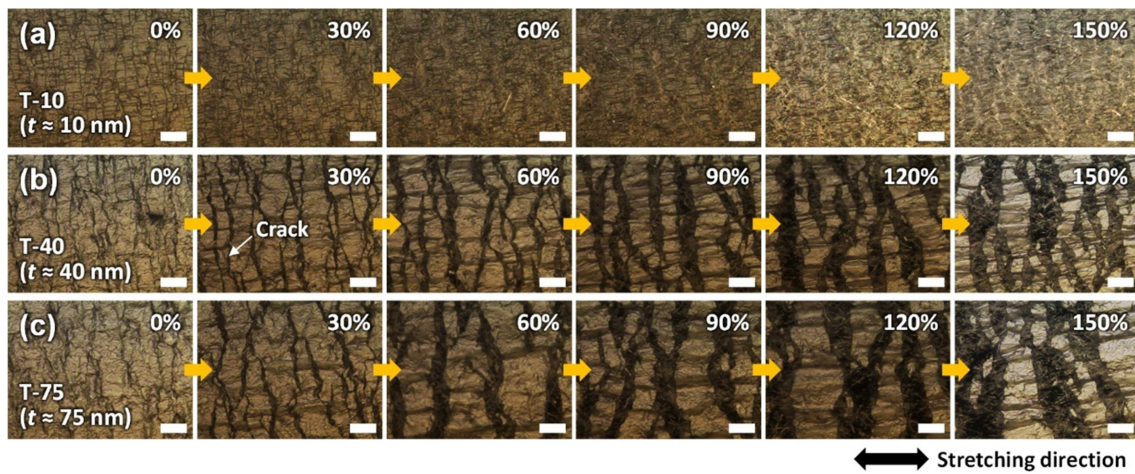


Fig. 4. Top-view optical microscope images showing evolution of the cracking structures of different hybrid sensor models under incremental input strains. (a) T-10, (b) T-40, and (c) T-75 sensors, scale bars: 20 μm .

상에 미치는 영향을 확인하기 위해 동일한 과정을 통해 준비된 신축성 복합체 기판 상에 스퍼터링 (Sputtering) 시간을 조절하여 각각 약 10, 40, 75 nm 두께의 Pt 박막을 증착한 세 가지 센서 모델을 제작하였다. 그림 3은 각 센서 모델에 적용된 Pt 박막 두께를 측정된 AFM 프로파일 (Profile)을 보여준다. 그림 4는 각 센서 모델에 대해 30% 간격으로 150%까지 인장하면서 표면 형상 변화를 관찰한 광학 현미경 이미지이다. 기본적으로 세 가지 센서 모델 모두 짧은 크랙이 무작위로 분포된 표면 형상을 나타냈고, 인장 시 인장 방향으로 크랙의 폭이 증가하면서 그 사이로 AgNW/DS 복합체를 점차 드러내는 형태의 형상 변화가 유도되었다. 하지만, Pt 박막에 유도된 크랙의 밀도는 센서 모델 별로 차이가 있었으며, Pt 박막의 두께가 얇아질수록 크랙의 밀도는 높아지는 경향을 보임을 확인할 수 있다. 이는 Pt 박막의 두께가 얇아질수록 결정립의 크기 (Grain size)가 작아지게 되면서 AgNW/DS 복합체 층의 표면 버클 구조에 의해 재분포되는 표면 스트레인에 대해

서 기계적인 크랙을 유도할 수 있는 유효한 시작점이 많아지기 때문인 것으로 판단된다. 센서 모델 별로 크랙의 밀도는 차이가 있지만 전반적인 표면 형상은 크랙들이 무작위로 교차하는 네트워크 구조를 동일하게 나타내고 있으며, 이는 Pt 두께 조절을 통해 저항형 스트레인 센서의 응답 특성을 예측 가능한 방향으로 제어할 수 있음을 의미한다고 판단된다.

제작된 하이브리드 압저항 전극 기반 신축성 센서의 스트레인 감지 성능은 입력 스트레인에 대한 소자의 상대적인 저항 변화율 ($\Delta R/R_0$)을 측정함으로써 평가하였다. 그림 5(a)는 서로 다른 Pt 두께를 갖는 세 가지 센서 모델의 응답 특성을 보여준다. 향후 편의상 10, 40, 75 nm의 Pt 두께를 갖는 센서를 각각 T-10, T-40, T-75 모델로 명명한다. 그림 5(a)에서 볼 수 있는 바와 같이 세 가지 센서 모델 모두 150%까지의 넓은 인장 범위에 대해서도 비교적 안정적인 응답 특성을 나타냈다. 이는 제작된 하이브리드 압저항 전극이 비교적 큰 외력에 대해서도 물리적인 파

단 없이 안정적인 전류 경로 (Current pathway)를 유지할 수 있을 만큼 높은 전기적 안정성을 가짐을 의미한다. 이러한 전기적 안정성은 하이브리드 압저항 전극의 구조적인 장점에 기인한다. 즉, 그림 4의 인장에 따른 각 센서 모델의 표면 형상 변화 관찰 결과에서 확인한 바와 같이 네트워크 형상의 표면 크랙 사이로 연결되는 금속 박막 구조와 인장 시 열린 크랙으로 분리된 금속 영역을 전기적으로 연결하는 복합체 층에 의해서 외력이 주어진 환경에서도 안정적인 전류 경로가 유지될 수 있기 때문이라고 판단된다.

저항형 스트레인 센서의 민감도는 게이지율 (Gauge factor, GF) 측정을 통해 평가될 수 있으며, 그림 5(a)의 입력 스트레인 대비 $\Delta R/R_0$ 그래프의 선형 구간 (Linear range)에 대한 기울기 (%/%)는 제작된 하이브리드 스트레인 센서의 GF를 의미한다. 센서 응답 곡선은 0-60%, 60-110% 및 110-150%의 세 선형 구간으로 구분될 수 있었

으며, 각 센서 모델의 각 선형 구간에서 얻은 GF 값들을 그림 5(b)에서 비교하였다. T-40 센서의 경우 첫 번째 선형 영역 (0-60%)에서는 ~ 5.3 ($R^2 \approx 0.919$)의 GF를 보였다. 이 스트레인 구간에서는 입력 스트레인의 증가 및 증가에 따라 크랙이 열리고 점차적으로 크랙 갭 (Gap)이 넓어지기는 하나 여전히 전기적인 연결 상태를 비교적 견고하게 유지할 수 있는 Pt 정션 (Junction) 영역이 많이 존재하고, 이를 통해 원활한 전자 전달 (Electron transfer)이 가능하여 상대적으로 낮은 민감도를 나타낸 것이라고 판단된다. 두 번째 선형 영역 (60-110%)에서는 T-40 센서 모델의 GF가 ~ 30.3 ($R^2 \approx 0.926$)으로 증가함을 확인할 수 있다. 이는 인장에 따라 전류 경로 역할을 하는 Pt 정션의 수가 감소하는 것이 주 원인으로 사료되나, 이 스트레인 구간에서는 인장 시 열린 크랙 사이의 AgNW/DS 복합체 층에서 유효하게 제공되는 이차적인 전류 경로에 의해 극심한 저항 변화는 발생되지 않은 것으로 판단된다. 입력 스트레인이 110%를 초과하는 세 번째 선형 영역에서는 센서의 GF가 ~ 162.1 ($R^2 \approx 0.934$)로 크게 증가했다. 이는 이 구간의 큰 입력 스트레인에 의해 Pt 박막에 큰 변형이 유도되면서 Pt 정션의 수가 크게 줄어들기 때문인 것으로 판단된다.

T-10 센서 모델의 경우 세 선형 영역에 대한 GF는 각각 ~ 3.2 ($R^2 \approx 0.937$), ~ 15 ($R^2 \approx 0.935$) 및 ~ 73.2 ($R^2 \approx 0.925$)로 확인되었으며, 이는 모든 선형 구간에 대해 T-40 모델의 경우보다 낮은 민감도 특성을 나타냄을 의미한다. 이러한 민감도의 차이는 Pt 박막에 유도된 표면 크랙 형상의 차이에서 기인한다고 판단된다. 그림 4에서 확인한 바와 같이 보다 얇은 Pt 박막의 두께를 갖는 T-10 센서가 T-40 모델의 경우보다 높은 표면 크랙 밀도를 보여 각 선형 구간에서 보다 많은 Pt 정션 (유효한 전류 경로)을 유지할 수 있으므로 보다 낮은 GF 값을 나타내는 것으로 분석할 수 있다.

이와는 반대로 보다 두꺼운 Pt 박막 두께를 갖는 T-75 센서 모델의 경우 각 선형 구간에서 각각 ~ 7.6 ($R^2 \approx 0.915$), ~ 54.8 ($R^2 \approx 0.902$) 및 ~ 324.8 ($R^2 \approx 0.926$)로 센서 모델 중 가장 큰 GF 값을 보였으며, 이는 가장 낮은 크랙 밀도를 나타내는 T-75 모델이 인장 시 안정적인 전류의 흐름을 유도하는 유효한 Pt 정션의 수가 상대적으로 적기 때문인 것으로 사료된다. 이러한 결과는 Pt 두께의 변화를 통해 하이브리드 압저항 전극의 스트레인 감지 특성을 추가적으로 미세 제어할 수 있음을 보여준다.

하이브리드 스트레인 센서의 착용형 센서로의 응용 가능성을 검증하기 위해 제작된 센서를 인체의 다양한 관절 영

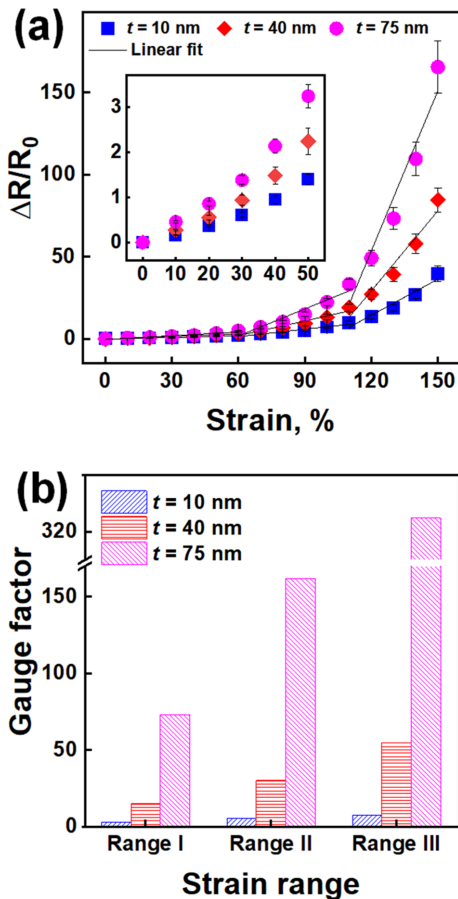


Fig. 5. Strain-sensing performance of the hybrid stretchable strain sensors (T-10, T-40, and T-75 models). (a) relative change in electrical resistance ($\Delta R/R_0$) of each sensor model as a function of applied strain (inset: magnified plots for the strain range up to 50%) and (b) GF values extracted from the linear ranges in the $\Delta R/R_0$ plots in (a).

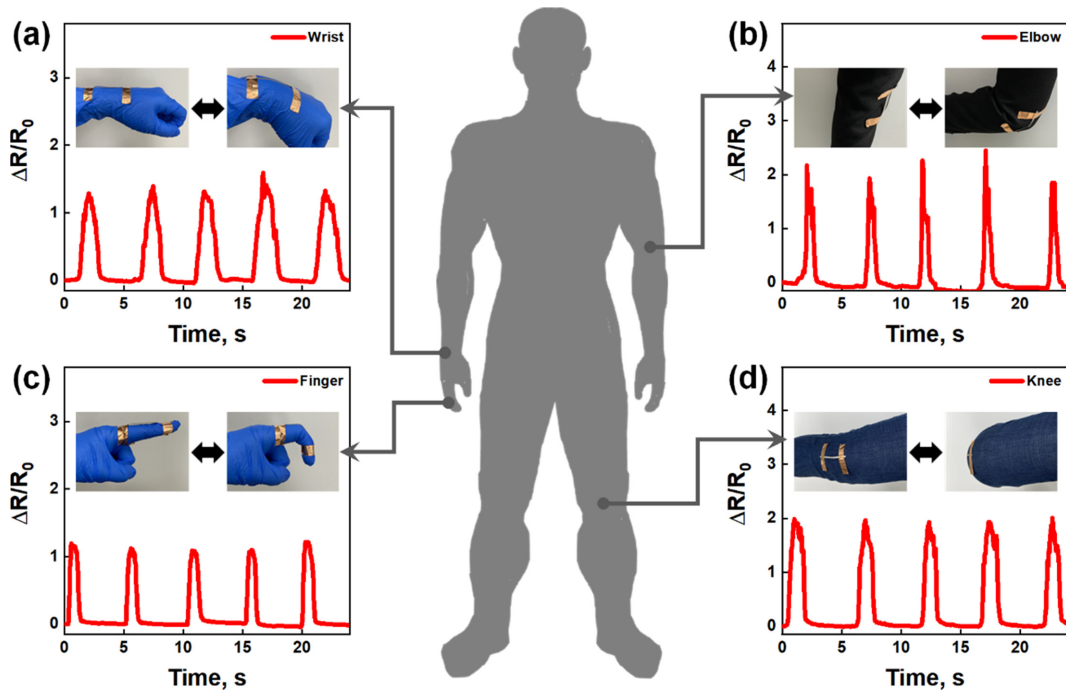


Fig. 6. Demonstration of the hybrid stretchable strain sensor as a wearable human-motion detector. $\Delta R/R_0$ curves obtained from the hybrid sensor attached on the (a) wrist, (b) elbow, (c) finger, and (d) knee joints during the repeated flexion-extension motions (inset: digital images of the sensor attached on each joint region).

역에 부착하고 관절의 움직임에 따른 응답 특성을 실시간으로 관찰하였다. 그림 6은 손목 (Wrist), 팔꿈치 (Elbow), 손가락 (Finger) 및 무릎 (Knee)의 관절 영역에 부착한 하이브리드 스트레인 센서 (T-75 모델)를 이용하여 각 관절의 연속적인 굽힘-펴 (Flexion-extension) 움직임을 모니터링한 결과를 보여준다. 관절에 부착된 신축성 스트레인 센서의 저항은 굽힘 변형에 대해 즉각적으로 반응하여 증가했으며, 펴 동작 시에는 다시 초기 상태로 회복되는 우수한 가역성 (Reversibility)을 보였다. 특히 반복적인 동작에 대해서 안정적이면서도 가역적인 센서 응답 특성을 보여 다양한 응용 분야에 착용형 센서로 적용될 수 있는 가능성을 나타냈다.

4. 결 론

본 연구에서는 Pt 박막의 두께 조절을 통해 인장 시 Pt 박막에 유도되는 크랙의 형상을 프로그래밍 (Programming) 함으로써 Pt 박막/AgNW/DS 복합체 하이브리드 압저항 전극 기반 신축성 스트레인 센서의 추가적인 성능 제어를 제안하였다. 기존 금속 박막 크랙 기반 센서와는 달리 하이브리드 스트레인 센서는 복합체 층 표면의 버클 구조로 인해 네트워크 형상의 Pt 크랙 구조를 나타냈으며, 추

가적인 Pt 박막 두께 변화를 통해 표면 크랙 밀도를 조절할 수 있었다. 제작된 하이브리드 압저항 센서는 네트워크 형상 Pt 크랙과 전도성 복합체 하이브리드 구조로 인해 150%의 인장 범위까지 안정적인 응답 특성을 보였으며, 크랙 밀도 및 센서의 민감도는 Pt 박막의 두께와 각각 반비례 및 비례 관계를 보임을 확인하였다. 그 결과로 150%의 넓은 인장 범위와 최대 324.8의 높은 GF를 동시에 갖는 균형 잡힌 스트레인 감지 특성을 확보할 수 있었다. 마지막으로 신축성 스트레인 센서의 착용을 통해 관절의 반복적인 움직임을 실시간으로 감지할 수 있음을 실험적으로 검증함으로써 착용형 센서로의 충분한 활용 가능성을 제시하였다.

감사의 글

이 과제는 부산대학교 기본연구지원사업(2년)에 의하여 연구되었음.

REFERENCES

1. H. Souri, H. Banerjee, A. Jusuf, N. Radacsi, A. A. Stokes, I. Park, M. Sitti, and M. Amjadi, *Adv. Intell. Syst.* **2**, 2000039

- (2020).
2. T. Q. Trung and N.-E. Lee, *Adv. Mater.* **28**, 4338 (2016).
 3. S. Yao, P. Swetha, and Y. Zhu, *Adv. Healthcare Mater.* **7**, 1700889 (2018).
 4. M. Amjadi, A. Pichitpajongkit, S. Lee, S. Ryu, and I. Park, *ACS Nano* **8**, 5154 (2014).
 5. R. Wang, W. Xu, W. Shen, X. Shi, J. Huang, and W. Song, *Inorg. Chem. Front.* **6**, 3119 (2019).
 6. K.-H. Kim, J.-G. Cha, and J.-M. Kim, *Korean J. Met. Mater.* **56**, 835 (2018).
 7. J. Lee, S. Kim, J. Lee, D. Yang, B. C. Park, S. Ryu, and I. Park, *Nanoscale* **6**, 11932 (2014).
 8. J.-H. Kong, N.-S. Jang, S.-H. Kim, and J.-M. Kim, *Carbon* **77**, 199 (2014).
 9. H. M. Soe, A. A. Manaf, A. Matsuda, and M. Jaafar, *J. Mater. Sci.: Mater. Electron.* **31**, 11897 (2020).
 10. Y. Yu, Y. Luo, A. Guo, L. Yan, Y. Wu, K. Jiang, Q. Li, S. Fan, and J. Wang, *Nanoscale* **9**, 6716 (2017).
 11. T. Yamada, Y. Hayamizu, Y. Yamamoto, Y. Yomogida, A. Izadi-Najafabadi, D. N. Futaba, and K. Hata, *Nat. Nanotechnol.* **6**, 296 (2011).
 12. D. Kang, P. V. Pikhitsa, Y. W. Choi, C. Lee, S. S. Shin, L. Piao, B. Park, K.-Y. Suh, T.-I. Kim, and M. Choi, *Nature* **516**, 222 (2014).
 13. T. Yang, X. Li, X. Jiang, S. Lin, J. Lao, J. Shi, Z. Zhen, Z. Li, and H. Zhu, *Mater. Horiz.* **3**, 248 (2016).
 14. K.-H. Kim, T. M. Nguyen, S.-H. Ha, E. J. Choi, Y. Kim, W.-G. Kim, J.-W. Oh, and J.-M. Kim, *ACS Appl. Mater. Interfaces* **12**, 45590 (2020).
 15. K.-H. Kim, S. K. Hong, S.-H. Ha, L. Li, H. W. Lee, and J.-M. Kim, *Mater. Horiz.* **7**, 2662 (2020).
 16. Y. Zheng, Y. Li, K. Dai, Y. Wang, G. Zheng, C. Liu, and C. Shen, *Compos. Sci. Technol.* **156**, 276 (2018).
 17. S. Chen, Y. Wei, X. Yuan, Y. Lin, and L. Liu, *J. Mater. Chem. C* **4**, 4304 (2016).
 18. J. Lee, M. Lim, J. Yoon, M. S. Kim, B. Choi, D. M. Kim, D. H. Kim, I. Park, and S.-J. Choi, *ACS Appl. Mater. Interfaces* **9**, 26279 (2017).
 19. K.-H. Kim, N.-S. Jang, S.-H. Ha, J. H. Cho, and J.-M. Kim, *Small* **14**, 1704232 (2018).
 20. M. S. Kim, K. Kim, D. Kwon, S. Kim, J. Gu, Y. S. Oh, and I. Park, *Langmuir* **36**, 8939 (2020).
 21. N.-S. Jang, K.-H. Kim, and J.-M. Kim, *Korean J. Met. Mater.* **59**, 575 (2021).