



# 비접촉 생체신호 모니터링 응용을 위한 세라믹/메탈 할라이드 복합막 기반 습도센서 개발

박태웅<sup>1</sup>, 김익수<sup>2</sup>, 김민지<sup>2</sup>, 박철환<sup>3</sup>, 서의경<sup>4</sup> , 오종민<sup>2</sup> 

<sup>1</sup> 한국기술교육대학교 에너지신소재화학공학부

<sup>2</sup> 광운대학교 전자재료공학과

<sup>3</sup> 광운대학교 화학공학과

<sup>4</sup> 광운대학교 법학과

## Development of Humidity Sensor Based on Ceramic/Metal Halide Composite Films for Non-Contact Biological Signal Monitoring Applications

Tae-Ung Park<sup>1</sup>, Ik-Soo Kim<sup>2</sup>, Min-Ji Kim<sup>2</sup>, Chulhwan Park<sup>3</sup>, Eui-kyoung Seo<sup>4</sup>, and Jong-Min Oh<sup>2</sup>

<sup>1</sup> School of Energy Materials and Chemical Engineering, Korea University of Technology and Education, Cheonan 31253, Korea

<sup>2</sup> Department of Electronic Materials Engineering, Kwangwoon University, Seoul 01897, Korea

<sup>3</sup> Department of Chemical Engineering, Kwangwoon University, Seoul 01897, Korea

<sup>4</sup> Division of Law, Kwangwoon University, Seoul 01897, Korea

(Received May 16, 2022; Revised May 24, 2022; Accepted May 25, 2022)

**Abstract:** Capacitive-type humidity sensors with a high sensitivity and fast response/recovery times have attracted a great attention in non-contact respiration biological signal monitoring applications. However, complicated fabrication processes involving high-temperature heat treatment for the hygroscopic film is essential in the conventional ceramic-based humidity sensors. In this study, a non-toxic ceramic/metal halide (BaTiO<sub>3</sub>(BT)/NaCl) humidity sensor was prepared at room temperature using a solvent-free aerosol deposition process (AD) without any additional process. Currently prepared BT/NaCl humidity sensor shows an excellent sensitivity (245 pF/RH%) and superior response/recovery times (3s/4s) due to the NaCl ionization effect resulting in an immense interfacial polarization. Furthermore, the non-contact respiration signal variation using the BT/NaCl sensor was determined to be over 700% by maintaining the distance of 20 cm between the individual and the sensor. Through the AD-fabricated sensor in this study, we expect to develop a non-contact biological signal monitoring system that can be applied to various fields such as respiratory disease detection and management, infant respiratory signal observation, and touchless skin moisture sensing button.

**Keywords:** Humidity sensor, Non-contact monitoring, Ceramic/metal halide composite, Aerosol deposition

✉ Eui-kyung Seo; seo0903@kw.ac.kr  
Jong-Min Oh; jmOH@kw.ac.kr

Copyright ©2022 KIEEME. All rights reserved.

This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

전 세계적으로 미세먼지 및 새로운 바이러스 출현에 의한 심각한 호흡기 질환 및 이로 인한 후유증이 발생하고 있어 지속적으로 개인별 건강상태를 감지 및 관리하는 호흡 생체신호 감지 기반 휴먼 인터페이스 기술에 대한 관심이 높아지고 있다 [1,2]. 특히, 최근 고성능 습도센서를 이용하

여 마스크 내 삽입하여 호흡을 모니터링 하는 방식에서 더 나아가 접촉에 의한 불편함 및 장착 방법에 따른 측정 에러를 줄일 수 있도록 비접촉으로 호흡 신호를 모니터링하는 연구에 대한 관심이 높아지고 있다 [3,4]. 이러한 비접촉 생체신호 모니터링 기술의 개발은 호흡기 관련 특수 및 일반적인 질병의 관찰 및 관리 [5,6], 운전자의 졸음 및 음주 시의 실시간 호흡 패턴 관찰을 통한 신속 응급 조치 및 후속 법적 증거로의 활용 [7], 가정 내 호흡수 및 폐활량 관리 및 영유아 수면 시 호흡 상태 확인 [8] 등 실생활과 밀접한 다양한 분야에서의 응용이 기대되고 있다.

호흡 습기에 의한 생체신호 모니터링 용용을 위한 습도 센서에 사용되는 다양한 물질들 중에서도, 페로브스카이트 구조의 BaTiO<sub>3</sub>(BT) 세라믹 물질은 고유전율 물질로서 화학적 불활성뿐만 아니라, 다공성 구조 및 친수성 특성을 가지고 있어 외부 수분의 흡착이 용이하여 내구성이 우수한 정전용량형(capacitive-type) 습도 센서 제작에 주로 이용되고 있다 [9-11]. BT 나노로드, BT 벌크, BT 나노 혹은 마이크로 입자 등 다양한 형상의 BT를 정전용량형 습도 센서의 감습막으로 사용하기 위하여 전기화학반응 및 수열합성, 고상반응 및 스크린 프린팅 기법, 스펀 코팅 등의 제작 방법들이 활용돼 왔다 [9-12]. 일반적으로 정전용량형 습도센서로서 40초 이하의 응답/회복 시간에서 우수한 수준으로 보고된 BT 습도센서의 감도 범위는 140~230 pF/RH%이다 [9-14]. 하지만 기존 공정들은 복잡한 재료 합성 및 준비과정 혹은 300°C 이상의 상대적인 고온 열처리 공정이 필수적이라는 한계가 존재해 왔다.

1900년대 후반에 개발되어 주목을 받기 시작한 에어로졸 데포지션(aerosol deposition, AD) 방법은 2010년 중 후반에 이르러 정전용량형 습도 센서의 감습막을 코팅할 수 있는 기존 방식의 대안으로 활발히 연구가 진행돼 왔다. AD 공정은 상온에서 성막하려는 원료 분말을 저진공 상태에서 에어로졸화하여 노즐을 통해 기판에 분사하는 방식으로 입자들의 충돌에 의한 연속적인 분쇄 및 결합으로 인한 단일 및 복합체 물질 감습막의 고속 코팅이 가능하며 단순/단일 공정이 가능하다는 매력적인 장점들을 지니고 있다. 또한, 세라믹 기반 복합체 필름 형성에 있어서 기존 공정들 대비 상온에서 무용매 공정으로 제작하는 데 있어서는 거의 유일한 공정이라고 볼 수 있다. 하지만 AD 공정을 이용하여 BT 세라믹 기반의 고감도 습도 센서를 확보하기 위해서는 AD 코팅 공정 후 여전히 추가적인 후열처리 공정이 요구되었다 [11,14].

상기의 추가 후열처리 공정 문제를 개선하고자, BT 세라믹을 모재(matrix)로 사용하여 메탈 할라이드 첨가제(filler) 물질을 섞은 복합막을 감습막으로 사용하는 연구

가 진행되어 왔다 [15]. 앞선 연구를 통해 상온에서 세계 최고 수준의 감도 및 응답/회복 시간 나타내는 세라믹/메탈 할라이드 정전용량형 습도 센서 제작 및 계면분극 극대화로 인한 신규 센싱 원리가 보고되었지만, CsPb<sub>2</sub>Br<sub>5</sub>(CPB) 메탈 할라이드 물질을 첨가제로 사용할 경우 Cs, Pb 성분으로 인한 유독성 및 세라믹/메탈 할라이드 분말의 용액 합성 공정이 필수적이라는 문제들이 존재해 있어 이에 대한 추가적인 연구가 필요한 상황이다.

본 연구에서는 무독성 물질이며 이온화가 용이한 NaCl을 메탈 할라이드 첨가제로 선택하고, 추가적인 복합체 합성 및 열처리 공정 없이 고감도(>100 pF/RH%) 및 고속 응답(<5s) 정전용량형 BT/NaCl 습도 센서를 확보하여 비접촉 호흡 생체신호 모니터링 분야로의 응용 가능성을 평가하고자 한다. 이를 위해 빗살전극형(inter-digital electrode, IDE) 기판 상에 AD 공정 조건 변화를 통해 BT/NaCl 복합막을 제작하였으며 BT/NaCl 복합막의 습도 센싱 특성을 측정 한 후, 거리에 따른 비접촉 호흡 습기 모니터링 특성을 평가하였다.

BT/NaCl 복합 감습막을 제작을 위한 AD 공정 장비는 크게 에어로졸 챔버, 성막 챔버 및 진공 펌프 등으로 구성된다 [11,14,15]. 코팅층의 제작을 위한 선행 과정으로 에어로졸 챔버 내에 BT/NaCl 혼합분말을 위치시킨 후, 혼합분말의 에어로졸화 및 운송을 돕는 N<sub>2</sub> 가스를 주입시킨다. 동시에, 에어로졸 챔버 하단부에 위치한 진동기를 동작시켜 줌으로써 더욱 풍부한 에어로졸을 발생시켜 준다. 이때, 충분히 발생한 에어로졸은 에어로졸 챔버와 성막 챔버 사이의 부분압력 차이에 의해 연결된 teflon 관을 따라 빠르게 가속화되어 성막 챔버로 올라가게 된다. 성막 챔버로 올라간 에어로졸은 그림 1과 같이 최종적으로 노즐로부터 5 mm의 거리를 두고 떨어져 고정되어 있는 IDE 기판상에 노즐 입구로부터 분사되며 코팅층을 형성하게 된다. 분사되는 에어로졸 입자들은 IDE 기판상의 감습막의 성막 면적(4.5 mm × 7 mm)을 고려하여 시스템을 통해 미리 설정된 5 mm × 8 mm 정도의 범위를 X-Y 축을 따라 이동하며 성막 된다.

AD 공정용 BT/NaCl 복합 원료 분말을 만들기 위해 평균입도가 2.5 μm인 NaCl 분말(Daejung Chemical & Metals Co., Ltd., Gyeonggi-Do, South Korea)과 평균입도가 0.45 μm인 세라믹 BT 분말(SBT-045B, Samsung Fine Chemical, Ulsan, South Korea)을 5:5의 무게 비율로 건식 볼밀링법으로 12시간 혼합한 뒤 수분을 최대한 제거하기 위해 드라이오븐에 100°C에서 24시간 건조하였다. IDE 기판은 유리기판 상에 포토리소그래피 및 스퍼터링 공정을 사용하여 200 nm 두께 수준의 Pt/Ti 전극 100

μm의 핑거 폭 및 간격으로 제작하였다. 또한, AD 공정 변수로서 N<sub>2</sub> 가스 유량 및 스캔횟수를 변화시켜 주었으며 BT/NaCl 복합막과 성막률 및 습도 센싱 감도 특성을 비교를 위해 단일 BT 분말을 사용하여 BT 감습막도 AD 공정으로 제작하였다.

그림 2는 IDE 기판 상에 성막한 BT/NaCl 및 BT 감습막의 N<sub>2</sub> 가스 유량 및 스캔 횟수에 따른 성막률(depositon rate) 결과이다. 그림 2(a)에서 볼 수 있듯이 가스 유량이 6 L/min에서 BT막의 경우 133 nm/min의 성막률을 보인 반면 BT/NaCl 복합막의 경우 33 nm/min의 성막률을 보였다. 이는 BT의 밀도(6.02 g/cm<sup>3</sup>)보다 상대적으로 NaCl의 밀도(2.15 g/cm<sup>3</sup>)가 낮고 NaCl 입자 사이즈가 커서 NaCl의 낮은 운동에너지 및 분쇄 효과의 감소가 BT/NaCl 복합체의 성막을 저해하는 것으로 판단되며, 운동에너지를 높이기 위해 N<sub>2</sub> 가스 유량을 12 L/min까지 증

가한 결과 BT/NaCl의 성막률은 3배 수준으로 증가하였다. 또한, 그림 2(b)에서 12 L/min 가스 유량 조건에서 스캔 횟수를 증가한 경우 6 회 이상에서부터 성막률이 눈에 띄게 증가하였다. 이는 기존에 보고된 성막 메커니즘에서와 같이 본 연구의 초기 성막 단계에서는(6회 스캔 이하) 소성 변형에 의한 단단한 앵커층을 형성시키기 위해 성막률이 높지 않지만 고밀도의 앵커층을 기반으로 분쇄효과가 증가하여 6회 이상부터는 성막률이 향상된 것으로 추정된다 [16,17]. 상기의 가스 유량 및 스캔 횟수에 대한 기초 조건 실험 결과로부터 500~600 nm 두께의 BT/NaCl 복합막을 제작하였다.

그림 3은 정전용량형 습도 센서의 중요 특성인 감도 [sensitivity, pF/RH(relative humidity)%] 및 응답/회복 시간(response/recovery time, second)을 측정하기 위해 자체 구성한 장비 시스템의 모식도와 실제 장비 사진들이다. 일반적으로 호흡에 의한 상대습도 영역은 40~80 RH% 정도이므로 감도 측정을 위한 온습도챔버(TH3-ME-025, Jeio Tech)의 상대 습도 측정 구간은 35~85 RH%로 설정하였으며, 측정 온도는 25°C로 고정하고 5 RH%씩 상대습도를 증가하고 정확한 측정을 위해 상대습도를 증가시킨 후 10분 이상 습도를 안정화시켰다. 해당 상대 습도에서 10초 단위로 측정된 20 point 이상의 정전용량 값들의 평균값을 해당 상대습도에서 측정된 정전용량 값으로 사용하였다. 정전용량 값을 구하기 위한 임피던스 아날라이저(4192A, Hewlett Packard) 장비의 측정 주파수는 100 Hz이며 인가한 AC 전압은 1 V이다. 응답 시간 측정은 35 RH% 상대습도 수준으로 측정된 실내에서 75 RH% (25도)로 유지시켜 놓은 온습도 챔버로 이동시켜 임피던스 아날라이저 장비로 1초 단위로 정전용량 값의 변화를 측정하였으며, 회복 시간 측정은 반대 이동 순서로 측정 진행하였다.

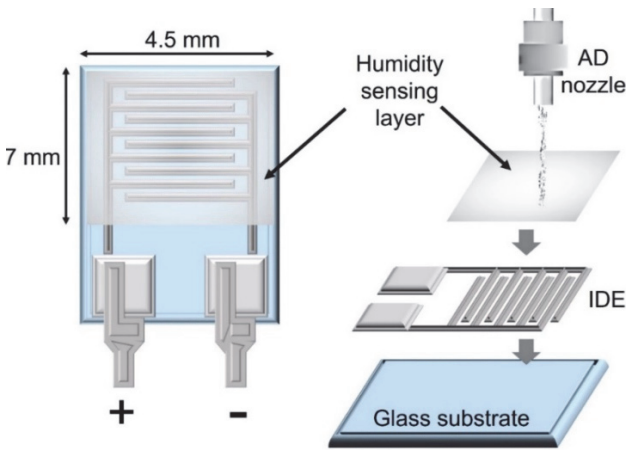


Fig. 1. Schematic diagram of the AD fabricated capacitive-type humidity sensor.

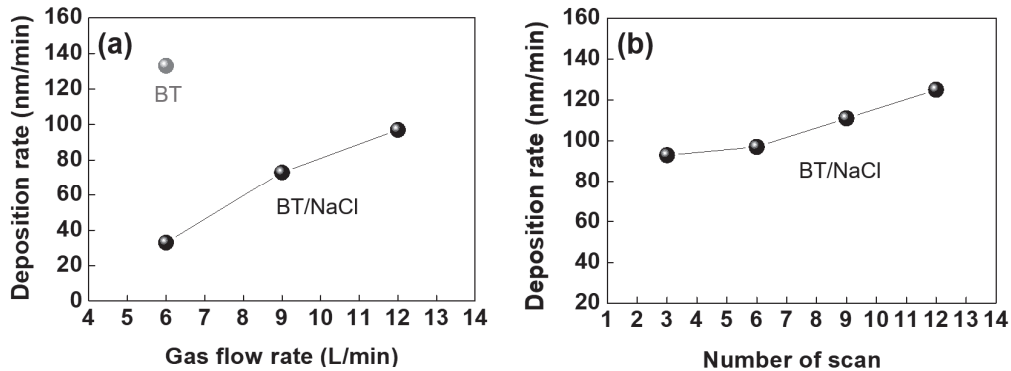


Fig. 2. Deposition rate of (a) BT and BT/NaCl film as a function of N<sub>2</sub> gas flow rate and (b) BT/NaCl film as a function of scanning number.

그림 4는 제작한 BT 및 BT/NaCl 습도 센서의 감도 및 BT/NaCl 센서의 응답/회복 시간 특성 결과이다. 그림 4(a)에서 BT 센서의 감도 값은 0.34 pF/RH%, BT/NaCl 센서는 245 pF/RH%이며, BT 센서 대비 BT/NaCl 센서의 높은 감도는 수분 내 자연적으로 존재하는 이온들 외에 NaCl 이 습기와 만나면서 생기는 Na, Cl 모바일 이온들로 인한 거대한 계면 분극 향상 효과에 기인한 것으로 사료된다. 이는 기존에 보고된 세라믹/메탈 할라이드 습도 센서의 센싱 메커니즘을 통해 설명될 수 있으며 [15], BT/NaCl 센서의 감도가 BT/CPB 센서의 감도(21426Pf/RH%)보다 낮은 이유는 CPB로부터 발생된 Cs, Pb 이온들의 전하량이 커서 큰 쌍극자 모멘트에 의한 더 높은 계면 분극을 제공하기 때

문이라고 생각된다. 반대로, 그림 4(b)에서처럼 BT/CPB 센서의 응답/회복 시간(5s/5s)보다 BT/NaCl 센서의 응답/회복 시간(3s/4s)이 빠른 이유는 이온화된 Na, Cl 이온이 상대적으로 더 가벼워서 계면 분극이 더 빠르게 형성된 것이 그 연유인 것으로 추정된다. 또한, 일반적으로 성인의 호흡 주기는 3~4초 수준으로(분당 15~20회) 알려져 있어 호흡에 의한 응답/회복 시간 면에서는 BT/NaCl 센서가 더 유리할 것으로 판단된다 [18]. 또한, 기존의 AD 공정으로 제작된 BT 센서의 경우 400도 후열처리를 진행하고 나서야 감도를 171 pF/RH%까지 향상시킬 수 있었다. 이와 비교했을 때 열처리 공정이 없이 그 이상의 감도를 보이고 있는 BT/NaCl의 습도센서가 더 높은 제작 경제성 및 센싱

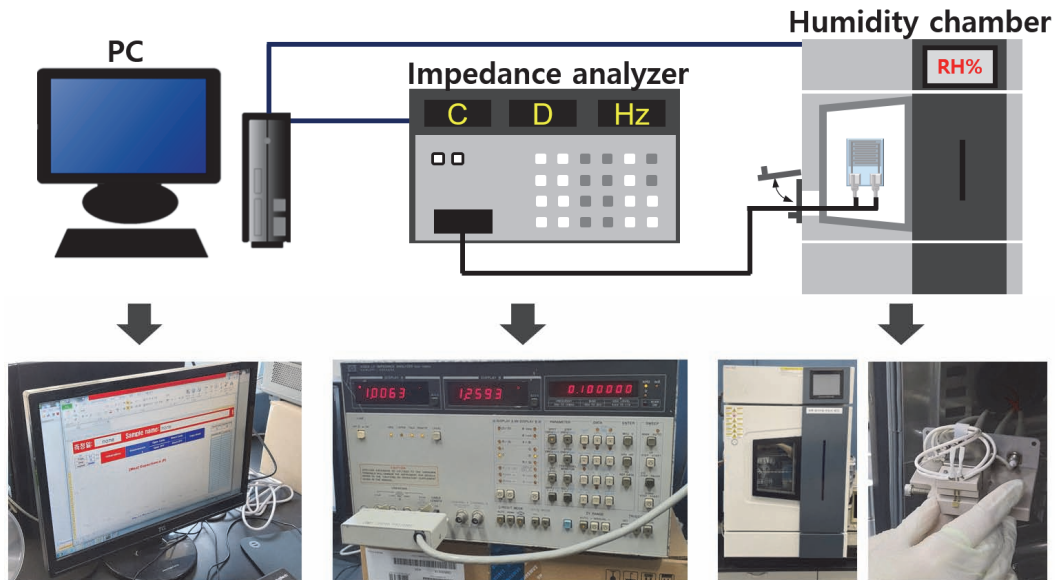


Fig. 3. Schematic representation of capacitive-type humidity sensing experiments.

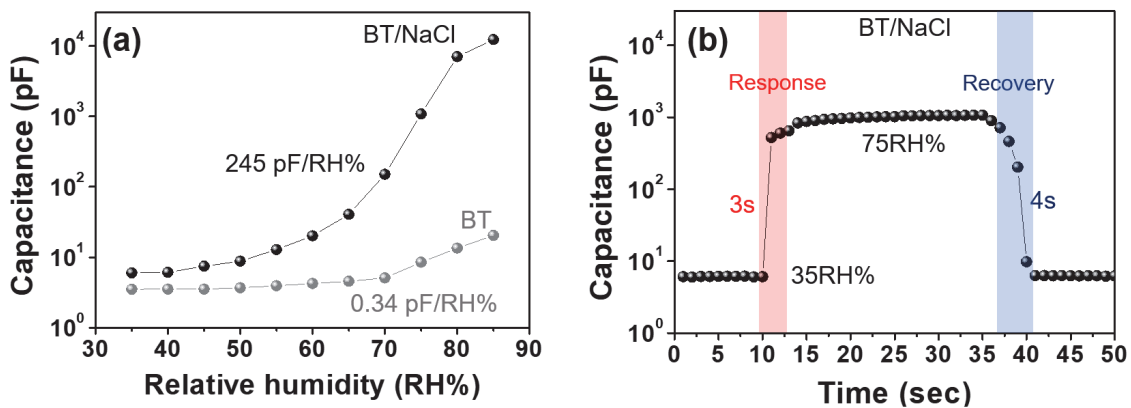


Fig. 4. (a) Humidity sensitivity of BT and BT/NaCl sensing device as a function of relative humidity and (b) response and recovery times for the BT/NaCl sensing device with sudden changes in humidity (from 35 to 75% RH).

특성 향상 효과를 가짐을 확인할 수 있다 [14].

그림 5는 BT/NaCl 습도 센서를 이용한 비접촉 호흡 습기 모니터링 측정 방법과 비접촉 거리에 따른 호흡 습기에 의한 정전용량 변화율[ $\Delta C/C_0$  (%)]을 측정한 결과를 보여 주고 있다. 여기서,  $C_0$ 는 초기에 측정된 정전용량 값이며  $\Delta C$ 는 측정된 값( $C_x$ )과 초기 값의 차이이다. 그림 5(a)는 그림 3에서 습도 챔버 내부에 있던 센서 측정 지그를 습도 챔버 외부로 옮겨 놓은 사진이며, 줄자로 센서와 사람 간의 거리를 고정하였다. 박자에 맞춰 입을 통해 숨을 내쉬고 1초 간격으로 호흡에 의해 변화되는 정전용량 값을 측정하였으며, 각 거리마다 5번 이상 호흡 사이클(들숨과 날숨)을 측정하고 각 피크의 최고 값들의 평균값을 구하였다. 그림 5(b)에서와 같이 10, 20, 25, 30 cm 측정 거리에서 모두 호흡 습기 신호가 측정되었으며 각각의 호흡 신호 평균 변화율은 1,437, 729, 210, 23%임을 확인할 수 있었다. 하지만 그림 5(c)의 25, 30 cm 거리에서의 확대 그래프에서 볼 수 있듯이 25 cm 거리에서부터 피크 값이 차이가 매우 커지기 시작하고 30 cm 거리에서는 변화율 또한 급격히 감소하였다. 예러울은 20 cm 이하의 거리에서는 5% 이하였으며, 25 cm 이상의 거리에서는 20% 이상이였다. 일반적으로 보고된 기존 연구들로부터 300% 수준의 신호 변화율

은 매우 높은 변화율 수준에 속하므로 [19-22], 20 cm까지 내의 거리에서 마스크 등의 장착 없이 비접촉 호흡 모니터링이 가능할 것으로 판단된다.

결론적으로 본 연구에서 AD 공정을 통해 추가적인 합성 및 열처리 공정 없이 무독성 및 고속/고감도 BT/NaCl 습도 센서를 성공적으로 제작할 수 있었으며, 비접촉 호흡 습기 모니터링 측정을 통해 높은 호흡 습기 신호에 의한 변화율을 확인하였다. 향후 본 연구 결과를 기반으로 하여 큰 전하량을 갖는 비납계 메탈 할라이드 복합 소재 적용, 복합막 내부/표면 미세 구조 제어 공정 기술 개발, 여러가지 상황에서의 생체 신호 패턴 분석 및 정밀 데이터 측정/전송 장치 개발 등을 통해 호흡 질병 감지 및 관리, 음성 인식, 피부 습기를 통한 버튼 구동, 영유아 호흡 신호 관찰 및 기저귀 상태 감지 등 다양한 분야의 비접촉 생체 신호 모니터링 시스템 응용들이 기대된다.

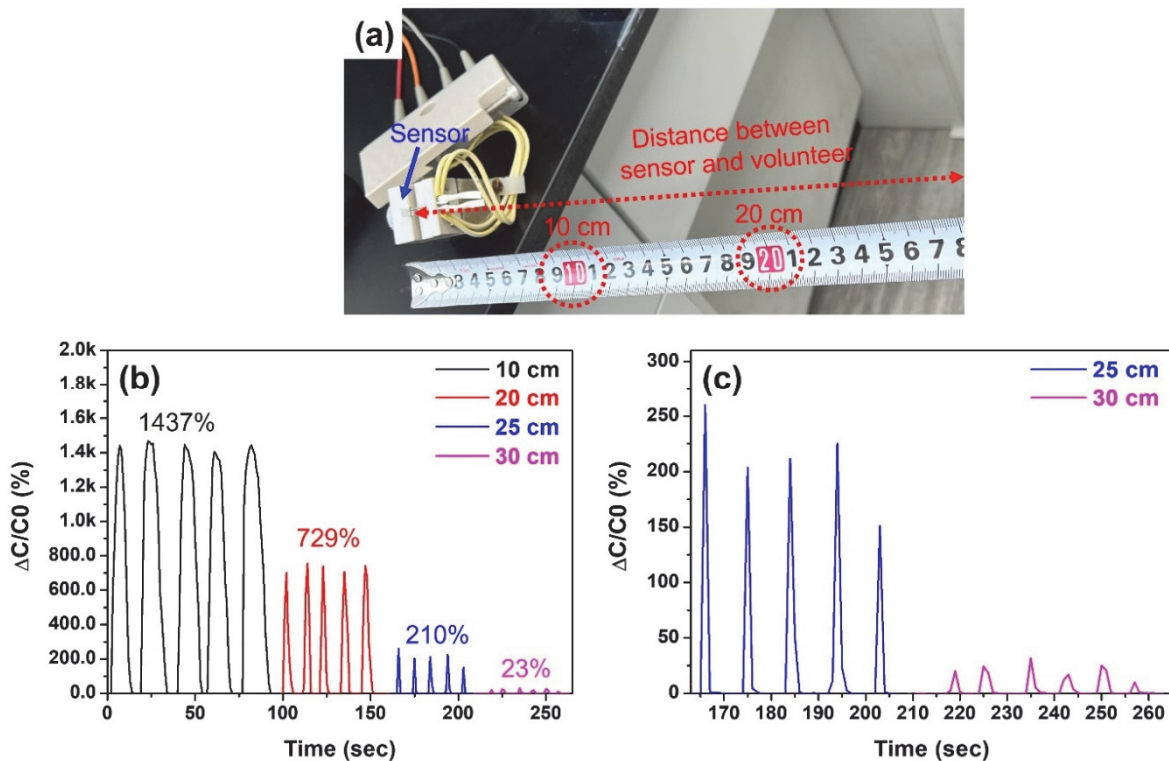
#### ORCID

Eui-kyung Seo

<https://orcid.org/0000-0001-5995-9724>

Jong-Min Oh

<https://orcid.org/0000-0001-6303-2876>



**Fig. 5.** (a) Experimental setup of non-contact human breath monitoring, (b)  $\Delta C/C_0$  according to the distance (from 10 to 30 cm) between the sensor and a volunteer, and (c) magnified  $\Delta C/C_0$  traces for distance (25, 30 cm) between the sensor and a volunteer.

## 감사의 글

본 연구는 과학기술정보통신부가 지원하는 한국연구재단(No.2020R1F1A107349113)과 산업통상자원부 지원의 한국산업기술진흥원(P0012451, 산업혁신인재성장지원사업) 및 2021년도 광운대학교 융·복합 연구과제 지원사업의 지원을 받아 수행된 연구임.

## REFERENCES

- [1] Z. Duan, Y. Jiang, and H. Tai, *J. Mater. Chem. C*, **9**, 14963 (2021). [DOI: <https://doi.org/10.1039/d1tc04180k>]
- [2] F. Q. AL-Khalidi, R. Saatchi, D. Burke, H. Elphick, and S. Tan, *Pediatr. Pulmonol.*, **46**, 523 (2011). [DOI: <https://doi.org/10.1002/ppul.21416>]
- [3] I. I. Immoreev and P.G.S.D.V. Fedotov, *Proc. 2002 IEEE Conference on Ultra Wideband Systems and Technologies (IEEE Cat. No.02EX580)* (IEEE, Baltimore, USA, 2002) p. 201. [DOI: <https://doi.org/10.1109/UWBST.2002.1006348>]
- [4] K. Ota, Y. Ota, M. Otsu, and A. Kajiwara, *Proc. 2011 IEEE Sensors Applications Symposium* (IEEE, San Antonio, USA, 2011) p. 159. [DOI: <https://doi.org/10.1109/SAS.2011.5739786>]
- [5] A. Cesareo, Y. Previtali, E. Biffi, and A. Aliverti, *Sensors*, **19**, 88 (2019). [DOI: <https://doi.org/10.3390/s19010088>]
- [6] C. Massaroni, A. Nicolò, D. L. Presti, M. Sacchetti, S. Silvestri, and E. Schena, *Sensors*, **19**, 908 (2019). [DOI: <https://doi.org/10.3390/s19040908>]
- [7] Y. Su, G. Chen, C. Chen, Q. Gong, G. Xie, M. Yao, H. Tai, Y. Jiang, and J. Chen, *Adv. Mater.*, **33**, 2101262 (2021). [DOI: <https://doi.org/10.1002/adma.202101262>]
- [8] M. Villarroel, S. Chaichulee, J. Jorge, S. Davis, G. Green, C. Arteta, A. Zisserman, K. McCormick, P. Watkinson, and L. Tarassenko, *npj Digital Med.*, **2**, 128 (2019). [DOI: <https://doi.org/10.1038/s41746-019-0199-5>]
- [9] Y. He, T. Zhang, W. Zheng, R. Wang, X. Liu, Y. Xia, and J. Zhao, *Sens. Actuators, B*, **146**, 98 (2010). [DOI: <https://doi.org/10.1016/j.snb.2010.02.030>]
- [10] J. Yuk and T. Troczynski, *Sens. Actuators, B*, **94**, 290 (2003). [DOI: [https://doi.org/10.1016/S0925-4005\(03\)00371-X](https://doi.org/10.1016/S0925-4005(03)00371-X)]
- [11] J. G. Liang, C. Wang, Z. Yao, M. Q. Liu, H. K. Kim, J. M. Oh, and N. Y. Kim, *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **10**, 851 (2018). [DOI: <https://doi.org/10.1021/acsami.7b14082>]
- [12] K. Z. Soderznik, C. Fabrega, F. Hernandez-Ramirez, J. D. Prades, and M. Čeh, *Proceedings*, **15**, 9 (2019). [DOI: <https://doi.org/10.3390/proceedings2019015009>]
- [13] M. Viviani, M. T. Buscaglia, V. Buscaglia, M. Leoni, and P. Nanni, *J. Eur. Ceram. Soc.*, **21**, 1981 (2001). [DOI: [https://doi.org/10.1016/S0955-2219\(01\)00155-8](https://doi.org/10.1016/S0955-2219(01)00155-8)]
- [14] J. G. Liang, E. S. Kim, C. Wang, M. Y. Cho, J. M. Oh, and N. Y. Kim, *Sens. Actuators, B*, **265**, 632 (2018). [DOI: <https://doi.org/10.1016/j.snb.2018.03.093>]
- [15] M. Y. Cho, S. Kim, I. S. Kim, E. S. Kim, Z. J. Wang, N. Y. Kim, S. W. Kim, and J. M. Oh, *Adv. Funct. Mater.*, **30**, 1907449 (2020). [DOI: <https://doi.org/10.1002/adfm.201907449>]
- [16] W. K. Tan, Y. Shigeta, A. Yokoi, G. Kawamura, A. Matsuda, and H. Muto, *Appl. Surf. Sci.*, **483**, 212 (2019). [DOI: <https://doi.org/10.1016/j.apsusc.2019.03.278>]
- [17] C. Lee, M. Y. Cho, M. Kim, J. Jang, Y. Oh, K. Oh, S. Kim, B. Park, B. Kim, S. M. Koo, J. M. Oh, and D. Lee, *Sci. Rep.*, **9**, 2166 (2019). [DOI: <https://doi.org/10.1038/s41598-019-38477-y>]
- [18] M. Y. Cho, I. S. Kim, S. H. Kim, C. Park, N. Y. Kim, S. W. Kim, S. Kim, and J. M. Oh, *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **13**, 5602 (2021). [DOI: <https://doi.org/10.1021/acsami.0c21097>]
- [19] W. Jeong, J. Song, J. Bae, K. R. Nandanapalli, and S. Lee, *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **11**, 44758 (2019). [DOI: <https://doi.org/10.1021/acsami.9b17584>]
- [20] X. Huang, B. Li, L. Wang, X. Lai, H. Xue, and J. Gao, *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **11**, 24533 (2019). [DOI: <https://doi.org/10.1021/acsami.9b04304>]
- [21] J. Luo, Y. Yao, X. Duan, and T. Liu, *J. Mater. Chem. C*, **6**, 4727 (2018). [DOI: <https://doi.org/10.1039/c8tc00457a>]
- [22] S. Kano and M. Fujii, *ACS Sustainable Chem. Eng.*, **6**, 12217 (2018). [DOI: <https://doi.org/10.1021/acssuschemeng.8b02550>]