

그래핀 첨가에 따른 신축성 카본전극의 전기적 특성 변화

이태원 · 박형호[†]

연세대학교 신소재공학과

The Effect of Graphene on the Electrical Properties of a Stretchable Carbon Electrode

T. W. Lee and H.-H. Park[†]

Department of Materials Science and Engineering, Yonsei University, Seoul 120-749, Korea

(2014년 11월 28일 접수: 2014년 12월 15일 수정: 2014년 12월 26일 게재확정)

초록: 소프트 일렉트로닉스에 대한 많은 수요로 인해 신축성 전극이 주목 받고 있다. 그 후보 중 하나인 카본블랙 복합소재(composite)는 낮은 가격, 용이한 공정성뿐 만 아니라 특정 범위에서 인장에 따라 비저항이 감소하는 장점을 가지고 있다. 하지만 전자소자로 쓰이기엔 전기전도도가 좋지 못 한 단점을 가지고 있다. 그래핀은 2차원 나노구조의 카본 계열 물질로서 뛰어난 전기적 특성과 유연성을 가지고 있으며 그래핀의 첨가로 카본블랙 복합소재의 전도성을 향상시킬 것으로 예상된다. 본 연구에서는 그래핀을 카본블랙 전극에 첨가하여 강화된 전기적 특성을 조사하였다. 그래핀 첨가 카본전극의 전기저항률은 카본블랙 전극과 비교해 감소하였다. 이는 그래핀이 서로 접촉하지 않는 카본블랙 응집체를 연결하여 도전 구조를 강화하였기 때문이다. 또한 그래핀은 인장 시 나타나는 카본블랙 전극의 저항증가를 감소시켰다. 그 원인은 그래핀이 인장 시 멀어지는 카본블랙 응집체 간극을 연결함과 동시에 인장방향으로 정렬되기 때문이다. 결론적으로 그래핀 첨가는 카본블랙 복합소재의 전기적 특성을 향상시켜 신축성 전극으로서 2가지 효과를 부여한다.

Abstract: Stretchable electrodes are focused due to many demands for soft electronics. One of the candidates, carbon black composites have advantages of low cost, easy processing and decreasing resistivity in a certain range during stretching. However, the electrical conductivity of carbon black composites is not enough for electronic devices. Graphene is 2-dimensional nanostructured carbon based material which shows good electrical properties and flexibility. They may help to improve electrical conductivity of the carbon black composites. In this study, graphene was added to a carbon black electrode to enhance electrical properties and investigated. Electrical resistivity of graphene added carbon electrode decreased comparing with that of carbon black electrode because graphene bridged non-contacting carbon black aggregates to strengthen the conductive network. Also graphene reduced an increase in the resistance of the carbon black electrode applied to strain because they connected gap of separated carbon black aggregates and aligned along the stretching direction at the same time. In conclusion, an addition of graphene to carbon black gives two benefits on the electrical properties of carbon black composite as a stretchable electrode.

Keywords: Graphene, stretchable electrode, electrical property, carbon composites

1. 서 론

성능과 사이즈 중심의 발전을 해온 예전과 달리 현재 전자기기는 인간친화적이며 감성중심의 패러다임으로 전환 중에 있다. 이 트렌드에 따라 웨어러블 기기, 전자 피부, 플렉시블 디스플레이 등의 전자기기들이 활발히 연구 중에 있다.¹⁻³⁾ 이러한 시스템을 실현시키기 위해선 인장 시에도 전기적, 기계적 특성을 유지할 수 있는 신축성

전극(stretchable electrode)이 필수적이다.⁴⁾ 플렉시블 소자 중 가장 높은 수준의 기술을 요구하는 신축성 전극은 크게 변형될 수 있으며 관련된 많은 연구들이 진행 중이다.⁵⁾ 신축성 전극을 형성하는 방법에는 크게 2가지가 있다. 하나는 기존의 딱딱한 전자소재로 인장을 수용할 수 있는 특정한 나노 구조를 만드는 것이고, 나머지는 재료 자체가 늘어날 수 있게 제조하는 것이다.⁶⁾ 전자는 주로 실리콘과 같이 널리 쓰이는 소재로 2, 3차원의 구조를 형성해 만들

[†]Corresponding author

E-mail: hhpark@yonsei.ac.kr

© 2014, The Korean Microelectronics and Packaging Society

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.

수 있다. 대표적인 예로 물결무늬(wavy)를 만들어 고무 기판에 부착하는 방법⁷⁾, 소재 일부는 기판에 부착하고 나머지 부분을 긴 띠 형태의 다리 구조로 만드는 팝업(pop-up) 구조⁸⁾, 버클 형태로 실리콘 리본을 형성하는 방법⁹⁾ 등을 들 수 있다. 하지만 이 경우들은 세밀한 공정이 필요하고 물리적 변형이 클 경우 취약한 단점이 있다. 다음으로 탄성 중합체나 PDMS 등의 탄성이 있는 polymer 지지재료(matrix)에 전도성 입자를 첨가하여 신축성 전극을 만드는 방법이 있으며 첨가되는 대표적인 재료는 메탈 기반의 나노구조소재¹⁰⁾ (와이어, 박막, 나노입자 등), 전도성 고분자, 카본나노튜브¹¹⁾, 그래핀 등이 있다. 전도성 고분자는 안정성이 부족하며 메탈 및 카본나노구조 소재는 비싼 가격이 단점으로 나타나나 그 중 초기단계에 쓰이던 카본블랙은 가장 흔한 카본계열의 소재로서 경제성, 가벼운 무게, 용이한 공정 등 많은 장점을 가지고 있다. 또한 카본블랙은 고분자 매트릭스에 필러로 첨가되어 전기적 특성을 강화시키는 데 사용되기도 한다.¹²⁾ 특히 고구조(high structure)를 가진 카본블랙을 첨가한 탄성 중합체(elastomer)는 인장에 따라 특성이 저하되는 일반적인 경우와 다르게 인장 시에도 전기적 특성이 유지되며 비저항은 오히려 감소한다.¹³⁾ 하지만 이러한 복합소재가 전극으로 사용되기 위해선 전기전도성의 향상이 필요하다. 한편 적은 양으로 뛰어난 특성 발현을 위해 두 종류 이상의 카본필러를 고분자 매트릭스에 첨가하여 복합소재를 형성하는 연구가 진행되고 있다. 카본입자는 접촉을 통해 전도성을 발현하기 때문에 필러의 형태 및 분산도에 따라서 전기적 특성 향상에 필수적인 도전경로 형성이 크게 좌우된다.¹⁴⁾ 서로 다른 형태의 카본필러들을 적절히 조합한다면 효과적인 도전경로를 형성하여 전기전도도를 보다 향상시킬 수 있다. 예를 들어 구 형태의 카본블랙에 1 차원 구조인 카본나노튜브나 카본파이버를 첨가하여 적은 양으로 효과적인 도전구조(conductive network)를 형성할 수 있다. 특히 카본나노튜브는 길이 대 직경비가 크기 때문에 쉽게 도전경로 형성이 용이하므로 적은 입자 함량으로도 전기전도도 향상이 가능하고,¹⁵⁾ 높은 전기전도도를 가지므로 카본블랙 입자 사이를 연결해 전기전도도를 향상시킬 수 있는 물질로 알려져 있다.¹⁶⁾ 그래핀은 2차원 구조의 카본물질로 뛰어난 기계적, 전기적 특성을 가질 뿐 아니라 flexible하므로 신축성 전극으로도 연구가 진행 중이다.¹⁷⁾ 1 차원의 카본나노튜브가 카본블랙 전도성 향상에 기여하듯이 그래핀 첨가 또한 판상구조를 통해 카본블랙 응집체 사이를 연결해 복합소재의 전기적 특성 향상을 기대할 수 있다. 본 연구에서는 적은 양의 그래핀 첨가를 통해 카본블랙 응집체(aggregate) 사이를 연결하여 전도도 향상이 필요한 카본블랙 전극의 비저항을 감소시켰다. 동시에 인장 시 비저항이 감소하는 범위를 확대하고 변형에 따른 저항 증가를 최소화하고자 하였다. 이를 통하여 신축성 전극으로의 적용가능성이 있는 그래핀 첨가 하이브리드 카본전극을 제조하고

자 하였다.

2. 실험 방법

그래핀을 첨가하기 전에 카본블랙 페이스트를 제조하였다. 아세틸렌 블랙과 증류수를 혼합한 후 지르코니아 볼과 함께 날젠병에 넣고 110 rpm에서 8시간 볼밀링을 수행하였다. 건조하여 수분을 제거한 볼밀링한 카본블랙을 질산과 황산 혼합산에 침투한 후 산처리를 수행하였다. 이 때 카본블랙과 황산, 질산 및 물의 비율은 1:15:16:5이며 3시간 동안 초음파 처리 후 2시간 동안 교반을 수행하였다. 산처리한 혼합물을 물에 희석시킨 후 아스피레이터로 걸러 내었다. 반복적인 수행으로 중성화 시킨 후 고른 입자를 얻기 위해 건조와 동시에 교반하였다. 볼밀링 및 산처리된 카본블랙을 분산제(byk-102), 증류수, 바인더(수성기반 아크릴 에멀전)와 혼합 후 슬더 페이스트 믹서(ds-200, 동서)를 이용해 카본블랙 페이스트를 제조하였다. 그래핀을 황산과 질산, 물을 3:1:5으로 혼합한 산에 넣은 후 4시간동안 초음파를 동반해 산처리를 수행하였다. 산처리한 그래핀을 중성화하기 위해 반복적으로 물에 희석시킨 후 아스피레이터에 필터링하였고 24시간동안 100도에서 건조시켜 수분을 제거하였다. DMF와 혼합 후 열적환원을 시킨 산화그래핀을 아스피레이터를 이용해 걸러낸 후 건조하였다. 환원된 산화그래핀을 DMF 상에서 분산시킨 후 그래핀과 페이스트를 섞은 혼합물을 150도에서 가열을 통해 점도 조절하여 그래핀이 분산된 카본블랙 페이스트를 제조하였다. 200 메쉬의 실크 스크린을 이용해 유리기판 위에 그래핀이 첨가된 카본블랙 페이스트로 카본전극을 형성하였다. 인쇄된 전극은 80도에 25분간 건조하여 용매를 제거하였다. 이와 같이 카본블랙 페이스트 제조와 그래핀 분산 및 페이스트와의 혼합, 그리고 스크린 인쇄를 통해 그래핀이 첨가된 카본전극을 형성하는 방법을 Fig. 1에 도시하였다. 카본전극의 표면과 단면을 보기 위해 전계 방사 주사 현미경(field emission scanning electron microscopy: FeSEM)을 이용하였다. 인장 시 주사 현미경(SEM)을 통한 분석을 위해 카본전극을 고

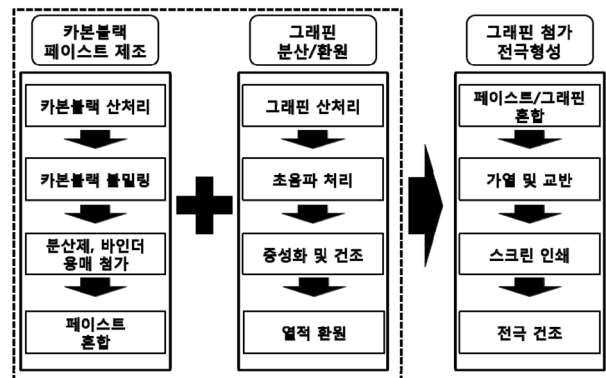


Fig. 1. Fabrication process of graphene added carbon composite electrode.

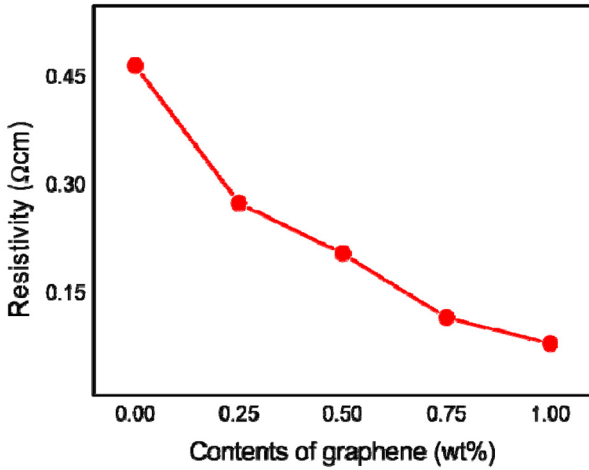


Fig. 2. Electrical conductivity of carbon electrodes with graphene according to the amount of graphene (content [wt%] means the weight percentage of graphene in the total carbon black paste).

정시킬 수 있는 파라 필름 위에 카본샘플을 코팅하였다. 비저항은 홀효과 측정기(Hall effect Measurement System)와 주사 현미경을 이용한 단면측정으로 구하였다. 카본전극의 저항은 멀티미터(3244 hi-tester)를 이용하였고 인장 시 전극을 고정하기 위해 jig를 이용하였다. 자외선 처리된(UV-irradiated) 고무기판 위에 코팅된 카본전극은 0 ~ 100% 변형을 범위에서 20%씩 증가하여 인장 시 저항(resistance)을 측정하였다. 인장 전/중 전극의 양쪽 끝부분, 같은 지점을 측정하였고 측정된 저항값과 부피 변화를 고려해 정상화된(normalized) 비저항을 계산하였다.

3. 결과 및 고찰

첨가하는 그래핀 양을 달리하여 측정한 그래핀 첨가 카본전극의 비저항 값을 Fig. 2와 같이 도시하였다. 전도성이 매우 뛰어난 그래핀 첨가량이 증가할수록 카본 복합소재 전극의 전기전도도가 증가할 것을 예상할 수 있다. Fig. 2와 같이 그래핀 첨가량이 증가할수록 카본 복합소재 전극의 전기저항률이 감소하였다. 카본블랙의 저항률 0.467 Ωcm에서 1 wt%의 그래핀 첨가 시 저항률이 0.081 Ωcm으로 82.7% 감소하였다. 카본입자는 접촉에 의해 전도성을 발현하기 때문에 카본필러의 분포가 전기적 특성과 밀접한 관련이 있다. 따라서 전극 내 카본입자의 분산을 관찰하기 위해 Fig. 3에 주사전자현미경으로 측정된 이미지를 제시하였다. 카본나노튜브는 카본블랙과 함께 고분자 매트릭스에 첨가 시 1차원 구조로 인해 카본블랙 입자들 간의 연결구조를 강화하여 전기적 특성이 향상된다고 알려져 있다.¹⁸⁾ Fig. 3에서 그래핀이 카본블랙 응집체 (aggregate) 틈새에 위치하는 것을 확인할 수 있다. 그래핀 역시 서로 떨어진 카본블랙 응집체 사이를 연결하고 있고 전도입자간 네트워크를 강화하여 전기전도도가

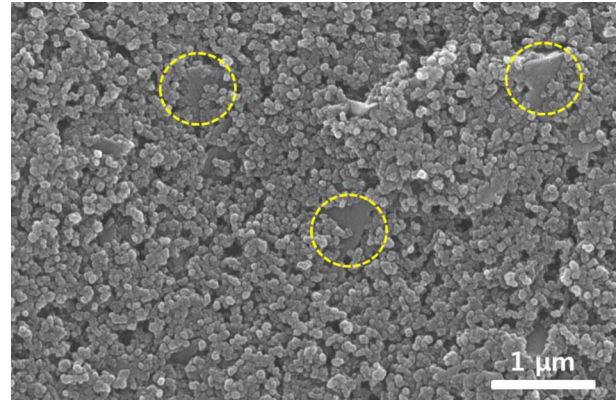


Fig. 3. SEM image of a carbon black electrode with graphene.

증가한 것으로 예상할 수 있으며 그래핀은 카본블랙에 비해 고유의 전기전도도가 훨씬 뛰어난 물질로 알려져 있다.¹⁹⁾ 따라서 그래핀을 첨가하여 기존 카본블랙으로 형성된 도전경로를 보완하여 전기전도도를 향상시킬 수 있었다. 다음으로 물리적 변형에 따른 전기적 특성이 보존되어야 하는 신축성 전극으로서 성능을 확인하고자 하였다. 인장 시 그래핀이 카본전극의 전기적 특성에 미치는 영향을 확인하기 위해 고무기판 위에 형성한 카본전극의 같은 지점의 저항 (resistance)을 인장 전/중 측정하였고 정상화된 비저항 (Normalized resistivity)은 $\rho = R/(A/L) = (WD/L)R$ [ρ : 비저항, R: 저항, A: 단면적, L: 길이, 폭: W, 두께: D]에 따라 인장에 따른 길이 및 면적의 증감비율을 적용하여 계산하였다. 저항측정 시 관련되는 부피 인자는 길이와 두께뿐 이므로 면적의 두께와 폭이 균일하게 감소한다는 가정하에 부피를 계산하였고 과정은 아래와 같다. 전극을 한 방향으로 α 배 인장 시 저항 R' , 비저항 ρ' , 길이 L' , 면적 A' , 두께 D' , 폭 W' 이라고 하면 $L' = \alpha L$, $A' = A/\alpha$ 이다. 인장 시 두께와 폭은 일정하게 감소한다고 가정하므로 $W' = W/\alpha$, $D' = \alpha D$. 멀티미터로 저항측정 시 흐르는 전류의 폭이 일정하므로 비저항 계산 시 인장에 영향을 받는 부피인자는 길이와 두께뿐 이다. 따라서 인장 시 전극의 비저항은 $\rho' = (A'/L')R = (W'D'/L')R = [(W/\alpha)D]R / [\alpha^{1/2}L]$ 이고 정상화된 비저항은(Normalized resistivity) $= \rho'/\rho = (1/\alpha^{3/2})[(WD/L)R'] / [(WD/L)R] = \alpha^{-3/2} (R'/R)$ 이다. 계산결과를 카본전극의 그래핀 첨가 유무에 따라 비저항 변화가 없는 참고샘플과 함께 Fig. 4(a)에, 측정된 저항값은 Fig. 4(b)에 도시하였다. Fig. 4 (a)과 같이 카본블랙 전극의 비저항은 특정 범위까지 인장 시 비저항이 감소하였고 이는 변형에 따른 카본블랙 1차 응집체의 거동과 관련이 있다. 카본블랙은 여러 개의 입자들이 뭉친 1차 응집체와 이들끼리 뭉친 2차 응집체를 이룬다.²⁰⁾ 물리적 힘에 따라 2차응집체는 분산되지만 1차 응집체는 분쇄되지 않는 최소단위이다. 카본블랙 전극을 인장할 때 기존의 형성된 카본입자의 2차응집체가 파괴되어 1차 응집체들로 나뉜다. 동시에 1차 응집체들이 인장방향으로

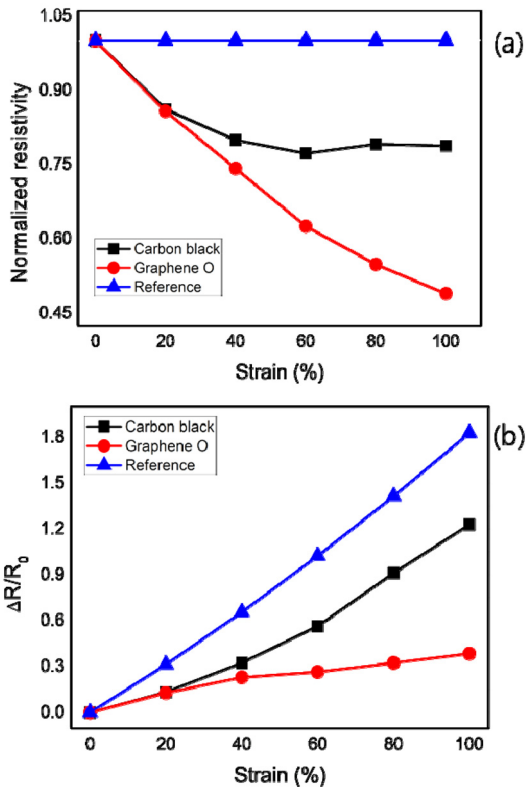


Fig. 4. (a) Normalized resistivity and (b) increase rate of resistance of carbon composite electrodes with/without graphene compared with references according to strain.

회전하여 재배열되어 단위부피당 접촉점이 증가하기 때문에 인장에 따라 비저항이 감소한다.²¹⁾ 더 상세히 서술하면 카본블랙 전극의 비저항은 변형률 60% 이상에서 더 이상 감소하지 않는다. 이러한 결과는 인장에 따른 카본블랙 응집체의 재배열 및 접촉점 증가가 변형률 60% 이내에서 완료되었음을 의미한다. 그래핀이 첨가된 카본블랙 전극의 전기비저항은 첨가하지 않은 카본전극과 비교해 변형률 20%까지 유사한 감소율을 보이다가 20% 이상부터 60% 이내에서 급격히 감소한다. 또한 변형률 60% 이상의 범위에선 더 이상 감소하지 않는 카본블랙 전극과 달리 그래핀을 첨가한 카본블랙 전극의 비저항은 계속 감소하였다. 이는 랜덤하게 분포되어 있던 그래핀의 방향이 변형률이 증가함에 따라 점차 인장 방향으로 정렬되어 카본블랙과의 접촉점이 증가하기 때문인 것으로 판단된다. 비저항이 유지되는 참고 (reference) 샘플과 비교할 때 그래핀 첨가 유무와 관계없이 카본블랙 전극은 인장에 따라 비저항이 감소되나 변형률 60% 이상 범위에선 그래핀을 첨가한 카본전극만 비저항 감소가 계속된다. 다음으로 소자가 작동할 때 저항이 더 중요하므로 인장 시 변형률에 따른 저항증가율을 측정하여 Fig. 4 (b)에 도시하였다. 참고 샘플은 한 방향으로 인장할 때 변형률에 따른 전극의 길이 및 두께 증감율을 감안하여 계산하였다. 이때 인장 시 폭과 깊이는 균등하게 감소한다는 가정 아래 계산하였다. 그래핀이 첨가되지 않는 카본블랙 전

극은 인장 변형률이 증가함에 따라 저항이 급증하였다. 이는 인장으로 인해 카본블랙 입자간 거리가 멀어짐에 따라 접촉되지 않은 카본블랙 응집체 수가 증가하여 도전경로가 파괴되기 때문이다.²²⁾ 하지만 그래핀을 첨가하면 인장 시 서로 떨어진 카본블랙 응집체 들을 연결해주는 다리역할을 하기 때문에 카본블랙 전극에 비해 저항증가율이 감소하게 된다. 또한 인장 시 랜덤하게 분포되었던 그래핀이 인장방향으로 점차 정렬되므로 연결할 수 있는 길이가 증가하여 더 멀리 떨어진 카본블랙 응집체 들을 연결하게 되어 새 도전경로를 형성하게 된다. 이로 인해 Fig. 4 (b)와 같이 60% 이상의 높은 변형률로 인장할 때 그래핀 첨가한 카본전극과 첨가하지 않은 카본블랙 전극의 저항증가율의 격차가 점차 커진다. 구체적으로 변형률 20%에서는 거의 유사한 저항증가를 보인데 반면, 60%에서는 2배, 100%에서는 3배 이상 저항변화율이 차이가 생겼다. 인장에 따라 그래핀을 첨가한 전극 내부에선 두 가지 현상이 동시에 일어난다. 먼저 인장 시 카본블랙 2차 응집체가 파괴되고 1차 응집체 들이 회전 후 정렬됨에 따라 새 도전경로가 형성된다.²¹⁾ 동시에 그래핀은 인장 방향으로 재배열되고 카본블랙 입자 사이를 연결하기 때문에 또다른 도전경로가 형성되어 높은 변형률의 인장이 가해져도 카본블랙 전극과 비교해 저항 증가율을 줄일 수 있다. 그래핀이 이러한 거동을 보이는 이유는 전극 인장 시 카본필러 주변에 국부적인 변형이 더 강하게 나타나기 때문에 카본블랙 입자 근처의 그래핀이 인장에 크게 영향을 받기 때문이다.²³⁾ 인장에 따른 카본전극 내부의 형태를 알기 위해 변형률에 따라 주사전자현미경을 이용해 표면을 관찰한 후 Fig. 5에 도시하였다. 카본전극을 파라필름 위에 코팅한 후 인장하여 전극이 인장된 상태에서 측정하였다. Fig. 5 (a)와 같이 인장을 하지 않았을 때는 표면에 기공이 거의 분포하지 않으나 인장에 따라 점차 기공이 형성되고 표면에 굴곡이 생기는 것을 확인

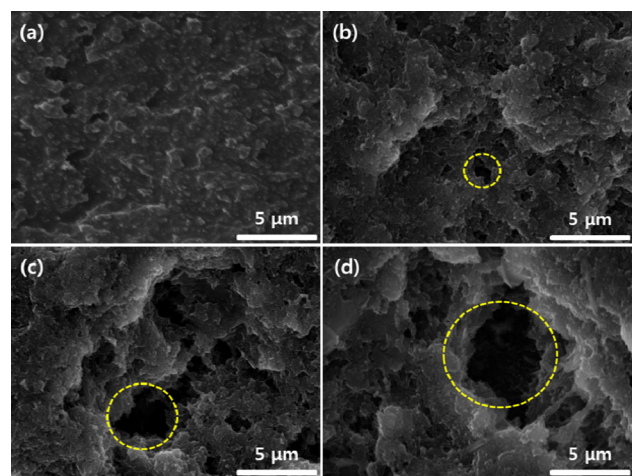


Fig. 5. SEM image of a carbon black electrode during stretching according to strain of (a) 0% (b) 20%, (c) 60%, and (d) 100%.

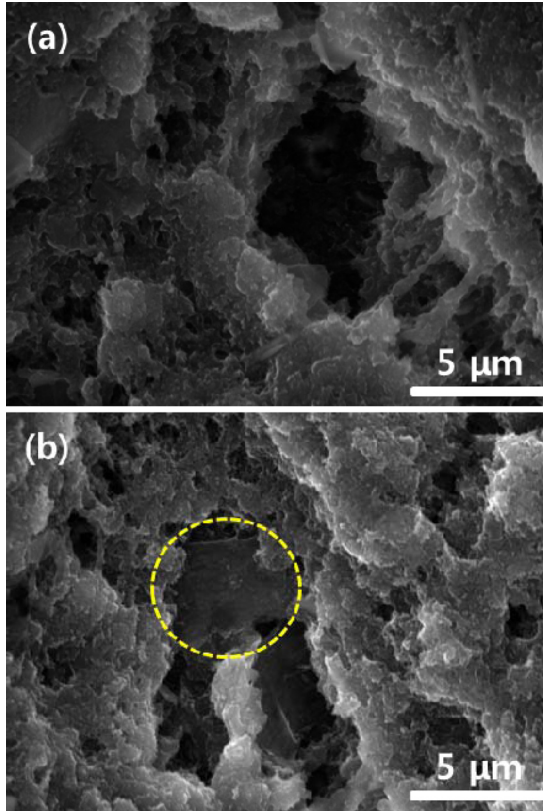


Fig. 6. SEM image of (a) a carbon black electrode and (b) carbon electrode with graphene during stretching.

할 수 있다. 노란 점선 원으로 표시된 기공 크기는 변형률이 증가하는 그림 (b), (c), (d)를 거쳐 점차 기공이 커진다. 이러한 기공으로 인해 카본블랙 입자간 거리가 멀어져 도전경로가 파괴되기 때문에 Fig. 4(b)와 같이 인장시 점차 저항이 증가하는 것으로 예상된다. 또한 인장에 따른 카본전극 내의 그래핀의 분산 및 형태를 파악하여 전기적 특성에 미치는 영향을 알아보기 위해 그래핀 첨가 유무에 따른 두 카본전극 샘플을 SEM으로 측정하여 그 Fig. 6에 나타내었다. Fig. 5와 6 (a)과 같이 카본블랙 전극은 기계적 인장으로 인한 도전경로의 파괴를 의미하는 몇몇의 크랙들이 존재한다. 하지만 그래핀은 서로 떨어진 카본블랙 응집체들을 연결하여 도전경로를 강화하며 Fig. 6 (b)와 같이 인장 방향으로 정렬된 그래핀(노란 점선 원)은 더 큰 인장으로 인한 간극을 연결한다. 하지만 큰 크기 때문에 Fig. 4 (a)와 같이 20% 미만의 인장율에서는 카본블랙입자 연결로 인한 향상효과가 미비한 것으로 보인다. 결론적으로 카본블랙 전극에 그래핀을 첨가하면 카본블랙 1차응집체를 연결해 새 도전경로를 형성하기 때문에 전기전도도를 증가시킬 뿐 아니라 인장시 증가하는 저항변화율을 감소할 수 있다.

4. 결 론

본 연구를 통해 그래핀 첨가에 따른 카본블랙 전극의

전기적 특성 변화에 대해 분석해 보았다. 먼저 첨가량이 증가함에 따라 그래핀을 첨가한 카본블랙 전극의 비저항이 감소하였다. 이는 그래핀이 카본블랙에 비해 더 뛰어난 전도체일 뿐 아니라 카본블랙 응집체 사이를 연결해 도전경로를 형성하기 때문이다. 또한 그래핀 첨가 유무에 따른 인장시 카본전극의 저항변화를 확인하였다. 그래핀 첨가시 카본블랙 전극과 비교해 저항증가가 줄어들었으며 특히 변형률이 클수록 그 차이가 증가하였다. 이는 그래핀이 인장시 떨어진 카본블랙 응집체 사이를 연결함과 동시에 인장방향에 따라 정렬되기 때문이다. 결과적으로 전극을 2배 인장하였을 때 그래핀 첨가로 카본블랙 전극에 비해 18배 적은 저항값을 나타내었고 신축성 전극으로서 가능성을 제시하였다.

References

1. J. Park, S. Wang, M. Li, C. Ahn, J. K. Hyun and D. S. Kim, "Three-dimensional nanonetworks for giant stretchability in dielectrics and conductors", *Nat. Commun.*, 3, 916 (2012).
2. J. -H. Kim, M. -W. Chon and S. -H. Choa, "Technology of Flexible Transparent Conductive Electrode for Flexible Electronic Devices", *J. Microelectron. Packag. Soc.*, 21(2), 1 (2014).
3. B. -J. Kim, "Reliability of Metal Electrode for Flexible Electronics", *J. Microelectron. Packag. Soc.*, 20(4), 1 (2013).
4. J. A. Rogers, T. Someya and Y. Huang, "Materials and Mechanics for Stretchable Electronics", *Science*, 327, 1603 (2010).
5. S. Rosset and H. R. Shea, "Flexible and stretchable electrodes for dielectric elastomer actuators", *Appl. Phys. A.*, 110, 281 (2013).
6. A. Chortos and Z. Bao, "Skin-inspired electronic devices", *Mater Today.*, 17, 321 (2014).
7. W. M. Choi, J. Song, D. Y. Khang, H. Jiang, Y. Y. Huang and J. A. Rogers, "Biaxially Stretchable "Wavy" Silicon Nanomembranes", *Nano Lett.*, 7, 1655 (2007).
8. J. Lee, J. Wu, M. Shi, J. Yoon, S. I. Park, M. Li, Z. Liu, Y. Huang and J. A. Rogers, "Stretchable GaAs Photovoltaics with Designs That Enable High Areal Coverage", *Adv. Mater.*, 23, 986 (2011).
9. D. -H. Kim, J. Song, W. M. Choi, H. -S. Kim, R. -H. Kim, Z. Liu, Y. Y. Huang, K. -C. Hwang, Y. Zhang and J. A. Rogers, "Materials and noncoplanar mesh designs for integrated circuits with linear elastic responses to extreme mechanical deformations", *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.*, 105, 18675 (2008).
10. P. Lee, J. Lee, H. Lee, J. Yeo, S. Hong, K. H. Nam, D. Lee, S. S. Lee and S. H. Ko, "Highly Stretchable and Highly Conductive Metal Electrode by Very Long Metal Nanowire Percolation Network", *Adv. Mater.*, 24, 3326 (2012).
11. T. A. Kim, H. S. Kim, S. S. Lee and M. Park, "Single-walled carbon nanotube/silicone rubber composites for compliant electrodes", *Carbon*, 50, 444 (2012).
12. N. C. Das, T. K. Chaki and D. Khastgir, "Effect of axial stretching on electrical resistivity of short carbon fibre and carbon black filled conductive rubber composites", *Polym. Int.*, 51, 156 (2002).

13. L. Flandin, A. Hiltner and E. Baer, "Interrelationships between electrical and mechanical properties of a carbon black-filled ethylene-octene elastomer", *Polymer*, 42, 827 (2001).
14. Y. Sun, H. D. Bao, Z. X. Guo and J. Yu, "Modeling of the Electrical Percolation of Mixed Carbon Fillers in Polymer-Based Composites", *Macromolecules*, 42, 459 (2009).
15. T. W. Lee, Ch. S. Park and H. H. Park, "The effect of ball-milling on the dispersion of carbon nanotubes: the electrical conductivity of carbon nanotubes-incorporated ZnO", *J. Ceram. Soc. Jpn.*, 122 (8), 1 (2014).
16. M. Wen, X. Sun, L. Su, J. Shen, J. Li and S. Guo, "The electrical conductivity of carbon nanotube/carbon black/polypropylene composites prepared through multistage stretching extrusion", *Polymer*, 53, 1602 (2012).
17. K. S. Kim, Y. Zhao, H. Jang, S. Y. Lee, J. M. Kim and K. S. Kim, "Large-scale pattern growth of graphene films for stretchable transparent electrodes", *Nature*, 457, 706 (2009).
18. L. Bokobza, M. Rahmani, C. Belin, J. L. Bruneel and N. E. Bounia, "Blends of carbon blacks and multiwall carbon nanotubes as reinforcing fillers for hydrocarbon rubbers", *J. Polym. Sci. b Polym. Phys.*, 46, 1939 (2008).
19. A. K. Geim and K. S. Novoselov, "The rise of graphene", *Nat. Mater.*, 6, 183 (2007).
20. S. P. Rwei, F. H. Ku and K. C. Cheng, "Dispersion of carbon black in a continuous phase: Electrical, rheological, and morphological studies", *Colloid Polym. Sci.*, 280, 1110 (2002).
21. K. Yamaguchi, J. J. C. Busfield and A. G. Thomas, "Electrical and mechanical behavior of filled elastomers. I. The effect of strain", *J. Polym. Sci. b Polym. Phys.*, 41, 2079 (2003).
22. L. Flandin, A. Chang, S. Nazarenko, A. Hiltner and E. Baer, "Effect of strain on the properties of an ethylene-octene elastomer with conductive carbon fillers", *J. Appl. Polym. Sci.*, 76, 894 (2000).
23. Y. Fukahori and W. Seki, "Stress analysis of elastomeric materials at large extensions using the finite element method", *J. Mater. Sci.*, 29, 2767 (1994).