

3D 프린팅된 하이드로젤 마이크로렌즈를 통한 마이크로 LED의 광학적 특성 향상 연구

고유진¹, 김정현^{1,2}, 박상윤^{1,2}, 김강현^{1,3}, 홍성민¹, 이보연⁴, 이한얼^{1,2,3} 

¹ 전북대학교 재료공학과

² 전북대학교 JBNU-KIST 산학연융합학과

³ 전북대학교 전자공학부

⁴ 한국기계연구원 바이오기계연구실

Micro Light-Emitting Diodes with 3D-Printed Hydrogel Microlens for Optical Property Enhancements

Yujin Ko¹, Jeong Hyeon Kim^{1,2}, Sang Yoon Park^{1,2}, Kang Hyeon Kim^{1,3},
Seong Min Hong¹, Bo-Yeon Lee⁴, and Han Eol Lee^{1,2,3}

¹ Division of Advanced Materials Engineering, Jeonbuk National University, Jeonju 54896, Korea

² Department of JBNU-KIST Industry-Academia Convergence Research, Jeonbuk National University, Jeonju 54896, Korea

³ Division of Electronics and Information Engineering, Jeonbuk National University, Jeonju 54896, Korea

⁴ Department of Bionic Machinery, Korea Institute of Machinery & Materials, Daejeon 34103, Korea

(Received July 7, 2024; Revised July 19, 2024; Accepted July 19, 2024)

Abstract: Micro light-emitting diodes (μ LEDs) have been utilized in various fields such as displays, and smart devices, due to their superior stabilities. Since the applications of the μ LEDs have been extended to medical devices and wearable sensors, excellent optical properties and uniformity of the μ LEDs are important. Hence, several researchers have investigated to enhance the optical efficiency of the μ LEDs through micro/nano lens. However, the reported methods for realizing the micro/nano lens have some drawbacks such as complex and high-cost manufacturing processes. Herein, we developed μ LEDs with 3D-printed hydrogel microlenses. The printed hydrogel had high transparency and excellent adhesive strength, allowing it to attach onto top surface of the μ LEDs without any additional adhesives. Microscale printing technology using a 3D printer achieved quick and fine printing in desired shapes and arrangements, showing the possibility of mass production. The 3D-printed microlens can be applied to improve not only the optical properties of μ LEDs but also other optical devices.

Keywords: Micro light-emitting diodes, Hydrogel, 3D printing, Microlenses

✉ Han Eol Lee; haneol@jbnu.ac.kr

Copyright ©2024 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.

4차 산업혁명은 정보통신기술(information and communications technology, ICT)의 융합으로 이루어진 차세대 산업혁명으로써, 인공지능(artificial intelligence, AI), 사물인터넷(internet of things, IoT), 빅데이터, 클라우드 컴퓨팅 등 다양한 기술이 융합되어 산업 전반에 혁신을 가

져오고 있다 [1-3]. 이러한 혁신의 중심에는 고성능, 고효율, 고품질의 디스플레이 기술이 있으며, 다양한 디스플레이 요소 기술 중에서도 마이크로 LED (micro light-emitting diode, μ LED)는 차세대 디스플레이 기술로 주목받고 있다 [4]. μ LED는 전통적인 LED 디스플레이 기술을 밝기 및 명암비 향상, 수명 및 내구성 강화, 광전기적 효율성 증대 등 여러 측면에서 획기적으로 개선한 기술로, 기존의 액정 디스플레이(liquid crystal display, LCD), 유기 발광다이오드(organic light-emitting diode, OLED)와 비교하여 높은 광전기적 효율성, 낮은 전력 소모, 긴 수명 등 다양한 장점을 제공한다 [5,6]. 이러한 기술적 장점은 μ LED가 다양한 분야에 널리 적용 가능하게 만들고 있다. 특히 μ LED의 안정성 및 긴 수명의 장점 덕분에 TV, 모니터와 같이 장기간 사용해야 하는 가정용 디스플레이뿐만 아니라, 스마트폰과 웨어러블 디바이스와 같이 외부의 다양한 환경 속에서 사용해야 하는 휴대용 기기에도 적용이 가능하다. 또한, 4차 산업혁명과 맞물려 급성장 중인 증강현실(augmented reality, AR)과 가상현실(virtual reality, VR) 디바이스에서도 μ LED는 고해상도와 빠른 응답 속도로 몰입감을 극대화할 수 있으며, 자동차 디스플레이, 대형 상업용 디스플레이, 의료용 디스플레이 등 다양한 산업에서도 μ LED의 활용도는 높아지고 있다 [6-8]. 그러나 μ LED는 복잡한 제조 공정, 높은 비용, 열 방출의 어려움으로 인한 효율 저하, 마이크로 소자의 불균일한 특성으로 인한 화질 및 밝기 차이 등 여러 가지 문제에 직면해 있다. 특히, 광전기적 특성 저하와 소자 간의 불균일한 특성은 μ LED의 상용화를 저해하는 주요 요인으로 지적되고 있으며, 이는 반드시 해결해야 할 과제이다 [8]. 따라서 수많은 연구자들은 지금까지 마이크로/나노 크기의 렌즈를 광학소자 상부에 형성하여, 소자의 특성을 균일하게 만들고자 다양한 기술을 개발해 왔다 [9]. 대표적으로 포토리소그래피(photolithography), 나노임프린트 리소그래피(nanoimprint lithography), 전자빔 리소그래피(electron beam lithography) 등이 있으며, 이러한 기술들은 주로 높은 정밀도와 균일한 마이크로 렌즈를 구현할 수 있어 광학, 전자기기, 바이오센서 등 여러 분야에서 활용되어 왔다. 하지만 이러한 기존 기술들은 복잡한 공정 방식과 느린 공정 속도의 문제점으로 인해 상용 광학소자와 집적하기 어렵다는 치명적인 단점을 가지고 있었다 [10,11].

본 연구에서는 μ LED 상에 10~20 μm 크기의 하이드로젤 마이크로 렌즈를 3D 프린팅하여, 소자의 광학적 특성을 향상시키고자 하였다. 3D 프린팅으로 마이크로 렌즈를 제작하는 방법은 기존에 보고된 포토리소그래피 기반 패터닝 방식에 비해 미세한 패턴 제작, 설계의 자율성, 소비 시

간 감소, 정밀성 등 다양한 장점을 제공한다. 여기서는, 글리세롤(glycerol)과 하이드로젤(hydrogel)을 중합하여 프린팅 재료로 사용하고자 하였다. 글리세롤을 중합한 하이드로젤은 기존에 보고된 3D 프린팅 하이드로젤에 비해 많은 수분을 함유하고 있으며, 기존 하이드로젤에 비해 건조/습한 환경에서 소재의 부피 변화가 미비한 것으로 익히 알려져 있다 [12-14]. 이러한 특성을 활용하면, 외부 환경 변화에도 크기 변화가 적고 안정적인 마이크로 렌즈를 제작할 수 있어, 이를 μ LED의 특성 향상에 활용될 수 있음을 확인하고자 한다.

그림 1(a)는 하이드로젤 기반 마이크로 렌즈를 갖는 μ LED 형성 방법에 대한 개략도를 보여준다. i) GaAs 기판에 $400 \times 400 \mu\text{m}^2$ 크기의 μ LED 10 \times 10개의 어레이를 형성하고, ii) 소자의 상부에는 3D 프린팅 기술을 이용하여 하이드로젤 점패턴을 형성하였다. iii) 365 nm 파장의 자외선(ultraviolet, UV)을 조사하여 하이드로젤 렌즈를 경화(curing)하고, 소자에 안정적으로 부착시킨 뒤, iv) 광학적 특성이 향상된 μ LED를 구현하였다. 본 연구에서 사용된 μ LED는 무기 반도체 소재인 GaAs 기판에 AlInGaP 레이어를 성장시킨 시편을 활용하였다. μ LED 소자의 크기는 $400 \times 400 \mu\text{m}^2$ 이며, 10 \times 10개의 어레이 형태로 이루어져 있다. 제작 공정은 포토리소그래피 공정을 기반으로 μ LED 칩 형성, p-n 접합 형성, 컨택 홀, 전극, 소자 보호층 형성 공정의 순서로 진행된다. 먼저, μ LED 칩 형성 공정에서는 포토레지스트(photoresist, PR)인 SU-8 3010을 웨이퍼에 도포하여 식각 마스크층을 만들어 준다. 이후, ICP-RIE(inductively coupled plasma-reactive ion etching) 장비를 통해 소자 칩을 제외하고 불필요한 레이어는 버퍼층까지 식각 공정을 진행하였다. 다음으로 p-n 접합 형성 공정은 소자 칩 부위에 SU-8 3010 PR을 통해 p-type AlInGaP 패턴을 제작하였으며, 양자우물층(multi-quantum well) MQW 레이어까지 ICP-RIE를 통해 식각하여 n-type AlInGaP층이 노출되도록 하였다 [16]. 이는 화합물 반도체 소재로 구성된 LED층의 p-n 접합을 형성하도록 해주며, μ LED 소자에 전압을 가했을 때 p-type층의 정공(hole)과 n-type층의 전자(electron) 접합면에서 결합함으로써 발광할 수 있게 만들어 주는 주요 공정이다. 이후, 컨택 홀 패턴을 p-type층과 n-type 상부에 만들어 주고, 원치 않는 단락 전류가 형성되지 않도록 만들어 준다. 다음으로, 금속 전극 소재로써 Au 300 nm를 증착하여, 외부 전력을 공급할 수 있도록 만들어 준다. 마지막으로 소자의 손상 및 오염도를 최소화하기 위해 보호층 형성 공정을 진행한다.

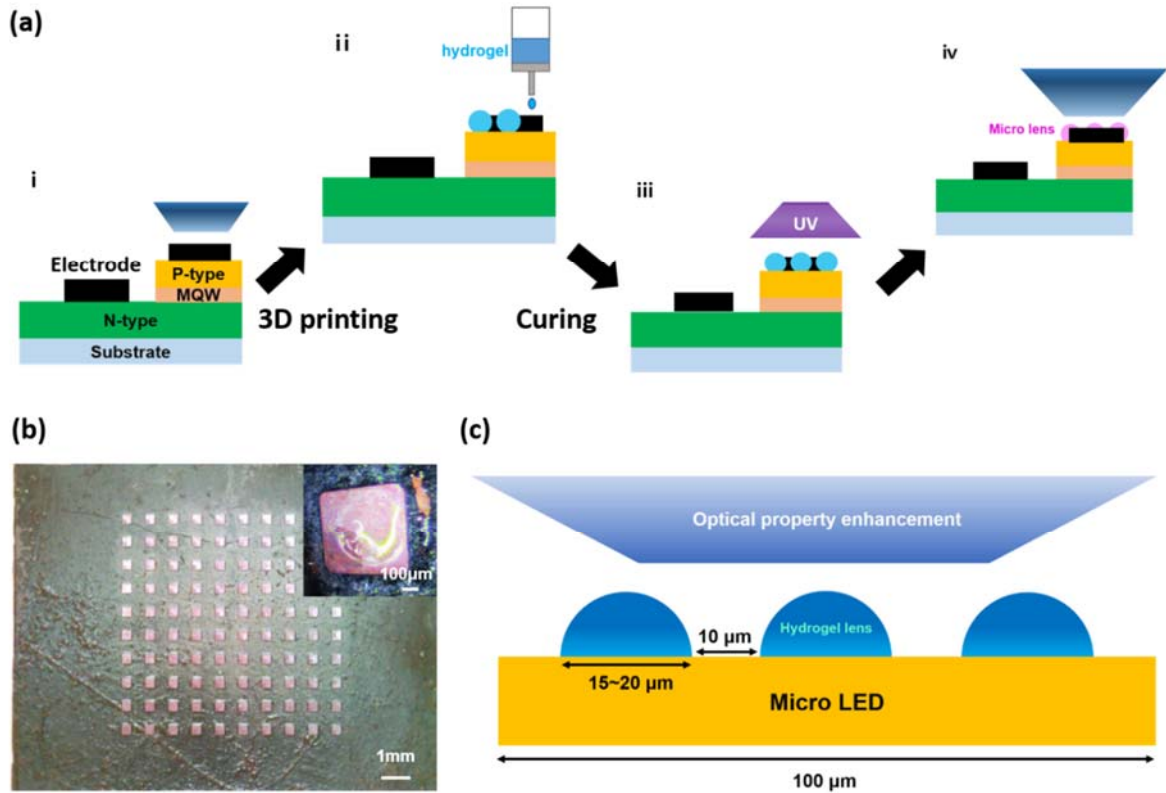


Fig. 1. (a) Schematic for fabricating 3D printed hydrogel microlenses onto μ LED chip, (b) $400 \times 400 \mu\text{m}$ red μ LED array with hydrogel microlenses, and (c) dimensional information of the μ LED with hydrogel microlenses for optical property enhancement.

포토리소그래피 및 식각 과정을 통해 보호층에 필요한 패턴링을 진행하였고, 이는 전력 인가를 위해 전극의 특정 영역을 노출시키기 위해서이다 [15-22]. 그림 1(b)는 선술된 방식으로 제작된 적색 μ LED 어레이 모습을 보여준다. $400 \times 400 \mu\text{m}^2$ μ LED 어레이는 $400 \mu\text{m}$ 간격으로 기판 위에 규칙적으로 배열되어 있으며, 오른쪽 상단의 삽입 이미지는 단일 적색 μ LED의 확대 모습으로, p-n 접합이 잘 형성되어 있음을 확인할 수 있다. 그림 1(c)는 소자의 광학적 특성을 향상시키고자 하이드로젤 렌즈를 μ LED칩 상부에 프린팅한 측면도를 보여준다. 그림에서 하이드로젤 렌즈의 크기는 $15 \sim 20 \mu\text{m}$, 렌즈 간 간격은 $10 \mu\text{m}$ 로 각각 설정하였다. 이는 각 하이드로젤 렌즈가 다른 렌즈와 물리적으로 유격되면서 μ LED의 빛의 산란을 최소화하고, 작동 시 발생하는 열 분산이 잘 되도록 하며, 균일한 광학적 특성을 보장하려고 하였기 때문이다. 또한, 하이드로젤 렌즈 패턴링의 안정성을 유지하기 위해 설계했다 [23].

그림 2(a)는 제작된 $400 \times 400 \mu\text{m}^2$ 크기의 적색 μ LED 어레이가 안정적으로 발광하는 모습을 보여준다. 그림 2(b)

의 I-V 그래프에서 보이는 바와 같이 구동전압(turn-on voltage)은 약 $1.5 \sim 2 \text{ V}$ 사이였고, $2 \sim 10 \text{ V}$ 까지 안정적으로 작동함을 확인할 수 있었다. 그림 2(c)는 μ LED의 전계발광 그래프(electroluminescence, EL)를 보여주며, 제작된 μ LED가 $620 \sim 650 \text{ nm}$ 파장 대역의 적색 빛을 발하고 있음을 파악할 수 있었다 [24-29].

3D 프린팅을 하기 위해서는, 프린팅 소재가 외부 환경에 안정적이고, 노즐 내에서 굳지 않아야 하며, 프린팅 후에도 형태를 유지할 수 있어야 한다. 하지만 기존 연구에서 일반 하이드로젤은 화학적 안정성 부족, 장기간 형태 유지 불가능, 원치 않는 경화 현상 등의 문제가 발생하였다. 이를 해결하기 위해, 우리는 글리세롤과 중합한 하이드로젤을 마이크로 렌즈로 사용할 프린팅 소재로 선정하였다. 이 소재는 강한 습윤성의 글리세롤이 함유되어 있기 때문에, 건조한 환경, 습한 환경에서도 기존 하이드로젤보다 장시간 형태를 유지할 수 있을 것으로 예측되었다. 높은 안정성을 갖는 글리세롤 중합 하이드로젤을 3D 프린팅 하기 위해서 하이드로젤의 구성물질 성분비를 조절하는 실험을 진행하였다. 본 실험에서는 알긴산 나트륨(sodium alginate),

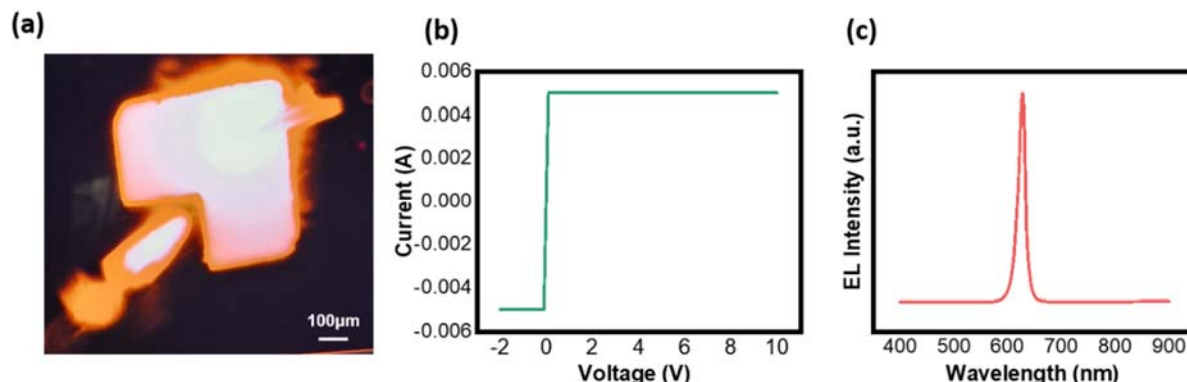


Fig. 2. (a) Magnified photograph of red μ LED without hydrogel-based microlens, (b) I-V and, and (c) electroluminescence (EL) curves of red μ LED without hydrogel-based microlens.

프로펜아미드(prop-2-enamide), 과황산암모늄(ammonium persulfate, APS), 1,2-Bis(dimethyl-amino)ethane, 황산칼슘(calcium sulfate dihydrate), BIS 아크릴아마이드(BIS-acrylamide)의 비율을 조절하여 오랜 시간 동안 굳지 않고 안전하게 프린팅이 가능한 비율을 개발하였다. 하이드로젤을 합성하기 위해, 먼저 알긴산 나트륨 분말을 상온 이상의 온도에서 스테어링 바(stirring bar)를 사용하여 100~200 rpm의 속도로 24시간 분산시켰다. 이후 프로펜아미드, BIS 아크릴아마이드, 과황산암모늄을 알긴산 나트륨 수용액에 순차적으로 넣고 글리세롤을 알긴산 나트륨의 부피 백분율 18%v/v만큼 첨가하여 약 120분 동안 중합을 진행하였다. 이때, 중합촉진제로 사용되는 황산칼슘, 프로펜아미드(prop-2-enamide)는 가장 나중에 첨가하여, 중합과정 중 의도치 않은 경화를 방지하였다. 이후 8시간 동안 100~200 rpm, 50°C 이상 온도에서 중합을 진행하였다 [30].

제작된 글리세롤 중합 하이드로젤은 유리 기판에 선형으로 프린팅 되었으며, 글리세롤의 유무에 따라 결과의 차이를 보였다 [그림 3(a)]. 특히, 그림 3(a)-i의 상부 이미지는 글리세롤이 함유되지 않은 하이드로젤의 60 μ m 너비의 선형 패턴 프린팅 결과를 보여주며, 퍼짐 현상과 불필요한 끊김 현상이 발견되었다. 그림 3(a)-ii의 하부 이미지는 18%v/v의 글리세롤이 함유된 하이드로젤을 이용하여 30 μ m 너비의 선을 3D 프린팅한 결과를 보여주며, 글리세롤이 첨가되어 점도가 높아진 덕분에 성공적인 선형 프린팅이 가능했음을 알 수 있다.

그림 3(b)의 점도 비교 그래프에 따르면, 글리세롤 중합 하이드로젤의 3D 프린팅 결과는 글리세롤 첨가량에 따른 하이드로젤의 점도 변화와 관련이 있음을 알 수 있었다 [31,32]. 글리세롤이 함유됨에 따라 점도가 높아지는데,

높은 점도의 하이드로젤이 노즐에서 출력되어 기판에 프린팅 될 경우에 소재가 퍼지지 않고 형태를 잘 유지했으며 장시간 공기 중에 노출되었음에도 굳지 않았다. 하지만 점도가 4,000 cp 이상으로 높아질 경우, 노즐에서 정상적인 출력이 불가능하여 3D 프린터의 노즐을 막는 문제가 발생했으며, 글리세롤 첨가 비율을 최적화하는 것이 필요하였다. 그림 3(c)는 3D printer (Dr.Invivo 4D6 bio)에 직경 70 μ m 프린팅 노즐을 장착하여 4×4개의 하이드로젤 렌즈 어레이 프린팅을 진행한 결과를 보여준다. 설정했던 값인 렌즈 직경 1.5 mm와 렌즈 간 간격 1.5 mm로 일정하고 균일하게 패턴링 된 것을 확인할 수 있다. 3D 프린팅 공정은 균일하게 잘 되었으나, 경화 과정 후 그림 3(d)와 같이 하이드로젤 렌즈 형태의 변화가 발생했다. 좌측 상단의 이미지는 365 nm UV 경화 장치를 통해 경화 과정을 진행하는 모습이며, 우측 상단 이미지와 같이 경화된 하이드로젤 렌즈가 일부 말라 버리거나 불균일한 타원 형태로 변화하는 결과를 보여준다. 이는 하이드로젤에 글리세롤이 함유된 소재의 경화 조건이 아직 최적화되지 않았음을 확인할 수 있으며, 주로 경화 시간이 과도했을 때 발생하는 결과로 확인된다. 본 경화 조건은 안정적이지 못한 상태로, 렌즈의 물리적 특성 및 안정성에 큰 영향을 미치고 있으므로, 조건을 최적화하여 이러한 문제를 해결할 필요가 있다 [33,34].

최종적으로, μ LED의 표면에 글리세롤 함유 하이드로젤을 3D 프린팅하여 마이크로 렌즈를 형성하고, 그 광학적 특성을 분석하였다. 그림 4(a)는 하이드로젤 렌즈를 프린팅하지 않은 400×400 μ m² 크기의 μ LED를 보여주며, p-n 접합이 안정적으로 형성되어 있음을 확인할 수 있다. 그림 4(b)는 GaAs 기판 상에 제작된 10×10개의 적색 μ LED 어레이 상에 하이드로젤 기반 마이크로 렌즈를 3D 프린팅하

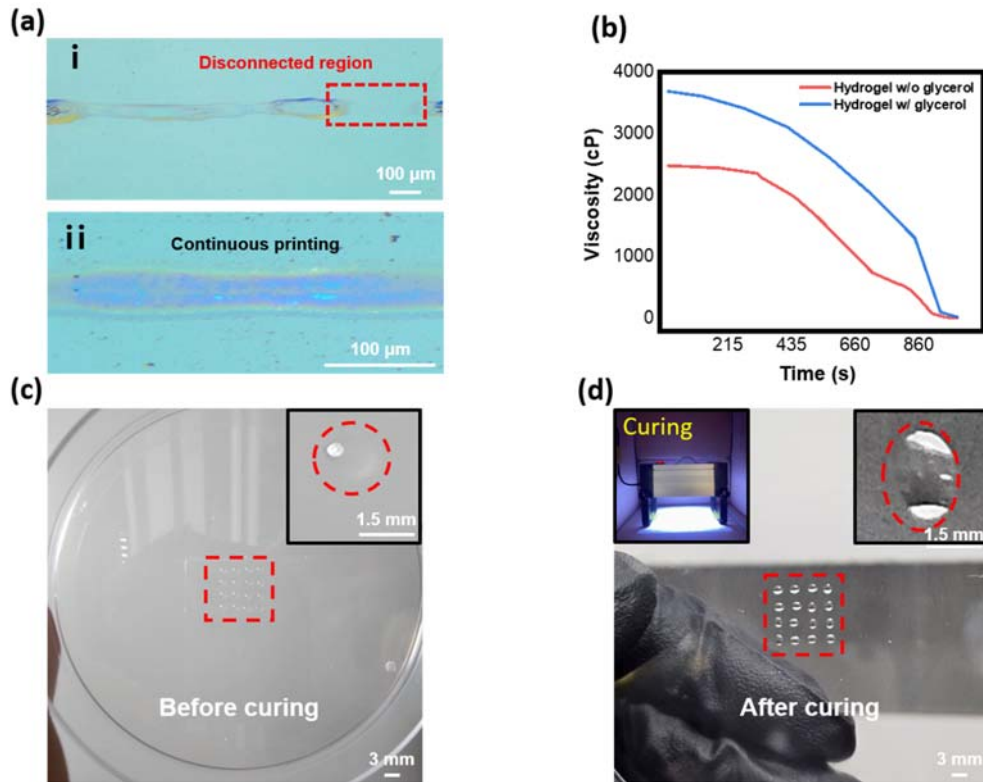


Fig. 3. (a) Optical microscopic images of 3D printed hydrogel lines, (b) comparison of viscosity curve according to glycerol comprisal. 3D printed hydrogel lens array (c) before and (d) after UV curing (the left top image shows hydrogel lens curing system with 365 nm wavelength UV radiation. The right top image presents the deformed hydrogel microlens after UV curing).

는 모습을 보여준다. 3D 프린팅 시, 노즐의 토출 압력은 40~100 kpa 사이로 조절했으며, 노즐 직경은 70 μm , 프린팅 속도는 8 mm/s, 채움 밀도(Infill density)는 15%로 설정하였다. 이는 일정한 하이드로젤의 제어, 흐름 그리고 구조적 안정성과 균일성을 보완하기 위해 설정한 값이었으며, 결과적으로 목표 크기의 하이드로젤 렌즈를 성공적으로 프린팅할 수 있었다. 그림 4(c)는 80~100 μm 직경의 하이드로젤 렌즈의 개수를 1~4개로 변화시켜 가며 μLED 상부에 3D 프린팅한 결과를 보여준다. μLED 의 경우, 그림 4c의 좌측 상부 그림처럼 p-type AlInGaP/MQW/n-type AlInGaP층이 겹쳐진 영역에서만 발광하므로, 현미경 사진의 백색 영역에만 마이크로 렌즈를 3D 프린팅 진행하였다. 3D 프린팅한 하이드로젤 렌즈는 그림 4(c)의 좌측 하부 그림에서 보이는 것처럼, 렌즈 개수와 관계없이 일정한 균일한 패턴닝이 가능함을 확인할 수 있었다. 그림 4(c)의 우측 상부 이미지는 3D 프린터에 입력한 마이크로 렌즈의 프린팅 위치, 우측 하부 이미지는 프린팅 이후 경화 과정으로 인한 퍼짐과 과경화(overcuring)된 모습을 보여준다. 선술한 것처럼 하이드로젤의 경화 시간 조건이 최적화되지

않았으며, 프린팅된 소재의 점도가 낮아 발생한 결과로 보인다. 또한, 프린팅 기판으로 사용된 p-type AlInGaP 소재가 소수성 특성을 가지기 때문에, 하이드로젤 렌즈가 안정적으로 부착되지 못하고 퍼짐 현상이 발생한 것으로 분석되며, 추후 실험에서는 O_2 플라즈마 처리를 통해 AlInGaP 표면물성을 친수성으로 전환한 후 프린팅 실험을 수행할 계획이다 [35,36]. 그림 4(d)는 EL 그래프를 보여주며, 소자 상부의 마이크로 렌즈의 개수가 변화하더라도 적색 μLED 의 발광 파장의 변화가 거의 없음을 확인할 수 있다. 그림 4(e)는 렌즈 개수에 따른 μLED 발광세기의 변화를 보여준다. 하이드로젤 렌즈의 수가 1~4개로 증가하더라도, 발광세기는 증가 혹은 감소와 같이 일정한 경향성을 보여주지 않았다. 이는 하이드로젤 경화 과정 중에서 마이크로 렌즈가 퍼짐 현상에 의해 모두 1개의 렌즈로 불규칙하게 응집되는 현상을 보였기 때문이며, 불규칙한 빛의 굴절 때문에 광학적 특성의 향상이 보이지 않았을 것으로 유추된다. 이번 결과는 하이드로젤 기반 마이크로 렌즈 연구를 진행하는 과정에서 중요한 참고자료가 될 것이며, 앞으로 추가 연구를 통해 다른 변수들이 전기적 및 광학적 특

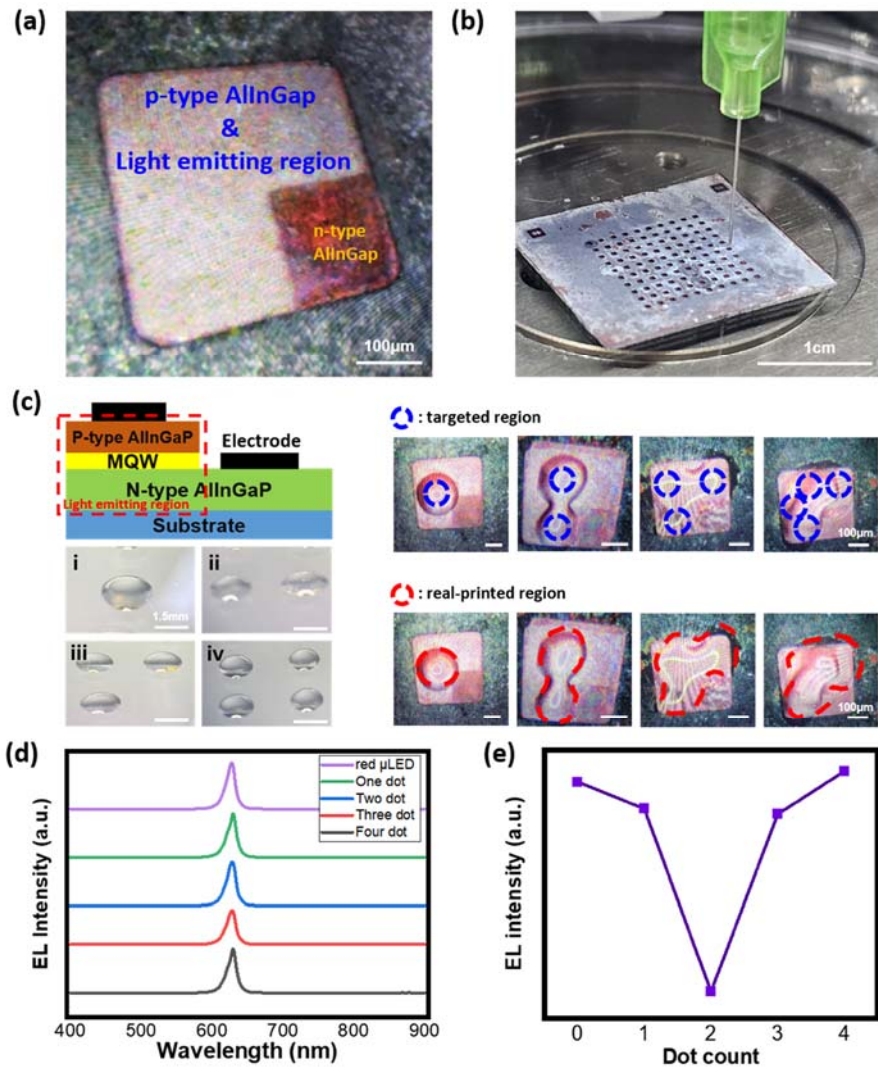


Fig. 4. (a) Magnified optical image of $400 \times 400 \mu\text{m}^2$ red μLED without hydrogel microlens, (b) 3D printing process of hydrogel lenses on the μLED array, (c) overall structure of the μLED with hydrogel microlenses (left top) (side view of hydrogel lenses, showing 3D printing uniformity) and targeted printing region, and real-printed hydrogel region on the μLED chip (right), (d) EL graph, and (e) EL intensity of the μLED with hydrogel lenses according to the number of the hydrogel lenses.

성에 미치는 영향을 지속적으로 탐구하고자 한다.

본 연구에서는 하이드로젤 기반 마이크로 렌즈를 μLED 상에 프린팅하고 소자의 광학적 특성을 향상시키고자 연구를 진행하였다. 특히, 3D 프린팅 공정을 통해 마이크로 렌즈를 제작하는 기술은, 기존의 마이크로 렌즈 제작 공정에 비해 시간과 비용을 절감할 수 있었으며, 다양한 변수를 제어함에 따라 원하는 형태의 렌즈를 제작할 수 있었다. 글리세롤 하이드로젤에 함유시킴으로써, 기존 하이드로젤이 갖는 문제인 i) 까다로운 3D 프린팅 조건, ii) 프린팅 후 퍼짐 현상을 개선할 수 있었다. 하이드로젤 렌즈는 μLED 에

서 미세한 발광 변화를 유도했지만 크기와 개수에 따른 경향성을 보이지 않았다. 이는 하이드로젤의 점도와 같은 물리적 특성을 향상시켜야 하고 경화 조건을 최적화하기 위한 추가적인 개선이 필요함을 나타낸다. 또한 3D 프린팅 공정 과정에서 압력조건을 조절하여, 노즐 크기를 더욱 줄이는 등의 개선을 통해 목표치인 $10 \sim 20 \mu\text{m}$ 범위 내의 균일한 마이크로 렌즈를 출력할 수 있도록 실험할 계획이다. 이후 연구에서는 하이드로젤의 물질 특성 최적화, 경화 조건의 정밀화, 3D 프린팅 공정 과정 최적화를 통해 광학소자 특성을 향상할 수 있을 것으로 보인다.

ORCID

Han Eol Lee

<https://orcid.org/0000-0003-2866-5947>

감사의 글

This work was supported by the National Research Foundation of Korea (NRF) grants funded by the Ministry of Science, ICT and Future Planning (MSIT) (NRF-2022R1A4A3033320 and RS-2023-00278906), and the Commercializations Promotion Agency for R&D Outcomes (COMPA) grant funded by the Korean Government (Ministry of Science and ICT, 2023).

REFERENCES

- [1] M. Xu, J. M. David, and S. H. Kim, *Int. J. Financ. Res.*, **9**, 90 (2018).
doi: <https://doi.org/10.5430/ijfr.v9n2p90>
- [2] K. Rabah, *Lake Inst. J.*, **1**, 1 (2018).
- [3] J. H. Alias, N. H. Norma, S. J. Doe, and A. B. Smith, *Int. J. Eng. Technol. (UAE)*, **7**, 3722 (2018).
doi: <https://doi.org/10.14419/ijet.v7i4.21244>
- [4] S. Zhang, H. Zheng, L. Zhou, H. Li, Y. Chen, C. Wei, T. Wu, W. Lv, G. Zhang, S. Zhang, Z. Gong, B. Jia, H. Lin, Z. Gao, W. Xu, and H. Ning, *Crystals*, **13**, 1001 (2023).
doi: <https://doi.org/10.3390/cryst13071001>
- [5] Y. Huang, E. L. Hsiang, M. Y. Deng, and S. T. Wu, *Light: Sci. Appl.*, **9**, 105 (2020).
doi: <https://doi.org/10.1038/s41377-020-0341-9>
- [6] W. C. Miao, F. H. Hsiao, Y. Sheng, T. Y. Lee, Y. H. Hong, C. W. Tsai, H. L. Chen, Z. Liu, C. L. Lin, R. J. Chung, Z. T. Ye, R. H. Horng, S. C. Chen, H. C. Kuo, and J. H. He, *Adv. Opt. Mater.*, **12**, 2300112 (2024).
doi: <https://doi.org/10.1002/adom.202300112>
- [7] T. Jung, J. H. Choi, S. H. Jang, and S. J. Han, *SID Symp. Dig. Tech. Pap.*, **50**, 442 (2019).
doi: <https://doi.org/10.1002/sdtp.12951>
- [8] J. H. Lee, Y. Ahn, H. E. Lee, Y. N. Jang, A. Y. Park, S. Kim, Y. H. Jung, S. H. Sung, J. H. Shin, S. H. Lee, S. H. Park, K. S. Kim, M. S. Jang, B. J. Kim, S. H. Oh, and K. J. Lee, *Adv. Healthcare Mater.*, **12**, 2201796 (2023).
doi: <https://doi.org/10.1002/adhm.202201796>
- [9] T. Y. Lee, L. Y. Chen, Y. Y. Lo, S. S. Swayamprabha, A. Kumar, Y. M. Huang, S. C. Chen, H. W. Zan, F. C. Chen, R. H. Horng, and H. C. Kuo, *ACS Photonics*, **9**, 2905 (2022).
doi: <https://doi.org/10.1021/acsp.2c00285>
- [10] H. Ito, M. Arai, Y. Matsui, and D. Itagaki, *J. Non-Cryst. Solids*, **362**, 246 (2012).
doi: <https://doi.org/10.1016/j.jnoncrysol.2012.10.018>
- [11] D. Baek, S. H. Lee, B. H. Jun, and S. H. Lee, *Nanotechnology for Bioapplications, Advances in Experimental Medicine and Biology*, 217-233 (2021).
doi: https://doi.org/10.1007/978-981-33-6158-4_9
- [12] A. Pimpin and W. Srituravanich. *Eng. J.*, **16**, 37 (2012).
doi: <https://doi.org/10.4186/ej.2012.16.1.37>
- [13] Z. Gao, L. Han, J. Wan, G. Fu, X. Yang, Q. Guo, X. Ji, W. Chu, H. Tian, and M. Lai, *Arabian J. Chem.*, **17**, 105789 (2024).
doi: <https://doi.org/10.1016/j.arabj.2024.105789>
- [14] Y. Xu, P. Huang, S. To, L. M. Zhu, and Z. Zhu, *Adv. Opt. Mater.*, **10**, 2270066 (2022).
doi: <https://doi.org/10.1002/adom.202270066>
- [15] H. E. Lee, *Electronics*, **10**, 2644 (2021).
doi: <https://doi.org/10.3390/electronics10212644>
- [16] H. E. Lee, J. H. Shin, J. H. Park, S. K. Hong, S. H. Park, S. H. Lee, J. H. Lee, I. S. Kang, and K. J. Lee, *Adv. Funct. Mater.*, **29**, 1808075 (2019).
doi: <https://doi.org/10.1002/adfm.201808075>
- [17] X. Zhou, P. Tian, C. W. Sher, J. Wu, H. Liu, R. Liu, and H. C. Kuo, *Prog. Quantum Electron.*, **71**, 100263 (2020).
doi: <https://doi.org/10.1016/j.pquantelec.2020.100263>
- [18] Z. Chen, S. Yan, and C. Danesh, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **54**, 123001 (2021).
doi: <https://doi.org/10.1088/1361-6463/abcfe4>
- [19] Y. Zhao, J. Liang, Q. Zeng, Y. Li, P. Li, K. Fan, W. Sun, J. Lv, Y. Qin, Q. Wang, J. Tao, and W. Wang, *Opt. Express*, **29**, 20217 (2021).
doi: <https://doi.org/10.1364/oe.428482>
- [20] H. E. Lee, J. H. Choi, S. H. Lee, M. Jeong, J. H. Shin, D. J. Joe, D. H. Kim, C. W. Kim, J. H. Park, J. H. Lee, D. Kim, C. S. Shin, and K. J. Lee, *Adv. Mater.*, **30**, 1870208 (2018).
doi: <https://doi.org/10.1002/adma.201870208>
- [21] H. E. Lee, J. H. Shin, J. H. Park, S. K. Hong, S. H. Park, S. H. Lee, J. H. Lee, I. S. Kang, and K. J. Lee, *Adv. Funct. Mater.*, **29**, 1808075 (2019).
doi: <https://doi.org/10.1002/adfm.201808075>
- [22] H. E. Lee, *J. Korean Inst. Electr. Electron. Mater. Eng.*, **34**, 221 (2021).
doi: <https://doi.org/10.4313/JKEM.2021.34.4.221>
- [23] D. Larrea-Wachtendorff, V. D. Grosso, and G. Ferrari. *Gels*, **8**, 152 (2022).
doi: <https://doi.org/10.3390/gels8030152>
- [24] S. H. Lee, J. Kim, J. H. Shin, H. E. Lee, I. S. Kang, K. Gwak, D. S. Kim, D. Kim, and K. J. Lee, *Nano Energy*, **44**, 447 (2018).
doi: <https://doi.org/10.1016/j.nanoen.2017.12.011>
- [25] H. E. Lee, S. H. Lee, M. Jeong, J. H. Shin, Y. Ahn, D. Kim, S. H. Oh, S. H. Yun, and K. J. Lee, *ACS Nano*, **12**, 9587 (2018).

- doi: <https://doi.org/10.1021/acsnano.8b05568>
- [26] H. E. Lee, D. Lee, T. I. Lee, J. Jang, J. Jang, Y. W. Lim, J. H. Shin, S. M. Kang, G. M. Choi, D. J. Joe, J. H. Kim, S. H. Lee, S. H. Park, C. B. Park, T. S. Kim, K. J. Lee, and B. S. Bae, *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **14**, 28258 (2022).
doi: <https://doi.org/10.1021/acsnano.8b05568>
- [27] H. E. Lee, D. Lee, T. I. Lee, J. H. Shin, G. M. Choi, C. Kim, S. H. Lee, J. H. Lee, Y. H. Kim, S. M. Kang, S. H. Park, I. S. Kang, T. S. Kim, B. S. Bae, and K. J. Lee, *Nano Energy*, **55**, 454 (2019).
doi: <https://doi.org/10.1016/j.nanoen.2018.11.017>
- [28] J. Shin, H. Kim, S. Sundaram, J. Jeong, B. I. Park, C. S. Chang, J. Choi, T. Kim, M. Saravanapavanantham, K. Lu, S. Kim, J. M. Suh, K. S. Kim, M. K. Song, Y. Liu, K. Qiao, J. H. Kim, Y. Kim, J. H. Kang, J. Kim, D. Lee, J. Lee, J. S. Kim, H. E. Lee, H. Yeon, H. S. Kum, S. H. Bae, V. Bulovic, K. J. Yu, K. Lee, K. Chung, Y. J. Hong, A. Ougazzaden, and J. Kim, *Nature*, **614**, 81 (2023).
doi: <https://doi.org/10.1038/s41586-022-05612-1>
- [29] G. H. Ju, J. H. Kim, S. Y. Park, K. H. Kim, and H. E. Lee, *J. Korean Inst. Electr. Electron. Mater. Eng.*, **37**, 241 (2024).
doi: <https://doi.org/10.4313/JKEM.2024.37.3.2>
- [30] H. Yuk, B. Lu, S. Lin, K. Qu, J. Xu, J. Luo, and X. Zhao, *Nat. Commun.*, **11**, 1604 (2020).
doi: <https://doi.org/10.1038/s41467-020-15316-7>
- [31] Y. Fang, H. Yu, L. Chen, and S. Chen, *Chem. Mater.*, **21**, 4711 (2009).
doi: <https://doi.org/10.1021/cm9020063>
- [32] P. Cass, W. Knowler, E. Peregida, N. P. Holmes, and T. Hughes, *Ultrason. Sonochem.*, **17**, 326 (2010).
doi: <https://doi.org/10.1016/j.ultsonch.2009.08.008>
- [33] C. A. Bonino, J. E. Samorezov, O. Jeon, E. Alsberg, and S. A. Khan, *Soft Matter*, **7**, 11510 (2011).
doi: <https://doi.org/10.1039/c1sm06109g>
- [34] X. Li, J. Gou, and O. Ilegbusi, *Res. Sq.* (2023).
doi: <https://doi.org/10.21203/rs.3.rs-2968926/v1>
- [35] J. S. Song, Y. C. Choi, S. H. Seo, D. C. Oh, M. W. Cho, T. Yao, and M. H. Oh, *J. Cryst. Growth*, **264**, 98 (2004).
doi: <https://doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2003.12.063>
- [36] R. H. Kim, D. H. Kim, J. Xiao, B. H. Kim, S. I. Park, B. Panilaitis, R. Ghaffari, J. Yao, M. Li, Z. Liu, V. Malyarchuk, D. G. Kim, A. P. Le, R. G. Nuzzo, D. L. Kaplan, F. G. Omenetto, Y. Huang, Z. Kang, and J. A. Rogers, *Nat. Mater.*, **9**, 929 (2010).
doi: <https://doi.org/10.1038/nmat2879>