

신축성 접착 필름 위에 놓인 그래핀 종이의 주름 생성

김상윤* · 정명희* · 석지원**†

Wrinkling of Graphene Papers Placed on Stretchable Adhesive Films

Sang-Yun Kim*, Myeong Hee Jeong*, Ji Won Suk**†

ABSTRACT: Graphene flakes are generally mass-produced by converting graphene oxide into reduced graphene oxide using chemical or thermal reduction. These graphene flakes can be stacked to form a free-standing graphene paper, which can be used for various applications. However, a graphene paper lacks stretchability, which hinders its application in stretchable devices. In this work, we introduced wrinkles in a graphene paper to make it stretchable. A graphene paper fabricated by vacuum-filtering a graphene dispersion was placed on a pre-stretched adhesive film. When the pre-stretched adhesive film returned to the original state, the graphene paper was wrinkled. The effect of the pre-stretching and wet condition of the graphene papers was experimentally investigated by using scanning electron microscopy. In addition, we observed the change of the period of the wrinkles in the graphene paper depending on the pre-stretching.

초 록: 일반적으로 그래핀 플레이크는 산화그래핀을 화학적 또는 열적 환원 공정을 통해 환원그래핀으로 변환하여 대량 생산하고 있다. 그래핀 플레이크는 다양한 형태로 응용되는데, 그 중 진공여과를 이용한 적층 공정을 통해 종이형 필름으로 제작이 가능하다. 그래핀 종이는 신축성이 부족한 단점이 있어 신축성 소자 응용에 제약이 있다. 본 연구에서는 신축성이 있는 그래핀 종이를 제작하기 위하여, 그래핀 종이에 주름을 만들었다. 신축성이 뛰어난 접착 필름을 미리 늘린 후, 그 위에 그래핀 종이를 붙이고, 접착 필름을 원래 상태로 놓아 주어 그래핀 종이에 주름을 만들었다. 이 때, 접착 필름에 가하는 당김 정도 및 젖은 상태에 따라 주름의 형상이 변하는 것을 실험적으로 관찰하였다. 특히, 그래핀 종이와 접착 필름의 전단 탄성 계수 차에 의하여 주름의 주기가 바뀌는 현상을 관찰하였다.

Key Words: 환원그래핀(Reduced graphene oxide), 종이(Paper), 주름(Wrinkle), 전단 탄성 계수(Shear modulus), 신축성(Stretchability)

1. 서 론

최근, 탄소나노튜브(CNT, carbon nanotube)[1,2], 나노와이어(nanowire)[3], 그래핀(graphene)[4-6]과 같은 기계적, 전기적, 열적 특성이 우수한 나노소재를 활용한 다양한 응용 분야가 연구되고 있다. 대표적으로, 나노복합재료[7-9], 에너지 저장/변환 소자[10,11], 센서[12], 액츄에이터[13], 기

능성 코팅[14-17], 투명 전극[18], 나노전자소자[19] 등이 있다. 특히, 2차원 탄소나노소재인 그래핀은 매우 우수한 영률(Young's modulus)과 파괴 강도(fracture strength)[20], 전자 이동도(carrier mobility)[21], 열전도율[22], 투명도[23]를 갖고 있어 차세대 신소재로 각광받고 있다.

흑연에서 기계적인 박리로 단일층 또는 다층의 그래핀을 얻을 수 있으나, 형상과 두께가 불균일하고 매우 소량의

Received 4 February 2021, received in revised form 10 February 2021, accepted 2 April 2021

*School of Mechanical Engineering, Sungkyunkwan University

**†School of Mechanical Engineering, Department of Smart Fab. Technology, Sungkyunkwan University, Corresponding author
(E-mail: jwsuk@skku.edu)

그래핀 플레이크만을 얻을 수 있어 기초 연구에만 활용되었다[24]. 최근에는 그래핀을 대량으로 합성하기 위해서 흑연을 산화한 후, 이를 박리하여 단일층 산화그래핀(graphene oxide)을 합성하고, 다시 화학적/열적 방법으로 환원하여 환원그래핀(reduced graphene oxide)을 합성하는 방법이 가장 많이 활용되고 있다[25,26]. 단일층의 환원그래핀 플레이크는 진공여과를 이용하여 종이 형태의 필름으로 제작이 가능하며, 에너지 저장 소자의 전극, 필터 등 다양한 분야에 활용되고 있다[27,28]. 그러나, 그래핀 종이는 낮은 신축성으로 인해 스트레처블(stretchable) 소자와 같은 차세대 응용 분야에 활용되는데 한계가 있다.

신축성을 높이는 방법으로, 주름 구조를 이용하는 방법[29], 종이 공예에서 사용되는 키리가미(kirigami) 패턴을 이용하는 방법[30] 등을 통해 소자에 가해지는 응력을 구조적으로 분산하는 기술이 보고되었다. 특히, 주름 구조는 그래핀 소재에 다양하게 활용되고 있는데, 화학기상증착법으로 합성한 3-10 층의 대면적 그래핀을 미리 당겨진 PDMS(polydimethylsiloxane) 위에 올리고, PDMS를 원래 상태로 돌려서 그래핀에 주름을 생성하는 방법이 보고되었다[31]. 이러한 방법으로 신축성 그래핀/PDMS 복합재료를 만들고 액츄에이터로 활용이 가능함을 제시하였다[31]. 또한, 유사한 방법으로 산화그래핀 필름을 PDMS 위에 올려 주름을 만들고, 환원 과정을 통해 그래핀 필름으로 변환한 후, 주름진 그래핀 필름에 PDMS를 부어 그래핀/PDMS 복합재료를 만드는 방법이 보고되었다[32].

본 연구에서는 환원그래핀 플레이크를 이용하여 그래핀 종이를 만들고, 미리 당겨진 고신축성 접착 필름에 그래핀 종이를 올려서 주름진 그래핀 종이를 제작하였다. 접착 필름이 당겨진 정도에 따라서 그래핀 종이에 생성되는 주름의 변화를 주사전자현미경(SEM, scanning electron microscopy)으로 관찰하였다. 더불어, 주름을 생성할 때, 그래핀 종이의 젖음 정도에 따라 주름이 어떻게 변화하는지도 관찰하였다.

2. 실험 방법

2.1 환원그래핀 분석

상업적으로 이용가능한 환원그래핀 분말(rGO-V50, Standard Graphene)을 사용하였다. 환원 그래핀 분말을 이용해 제작한 주름진 종이의 형상은 주사전자현미경(JSM-7600, Jeol)을 이용해 관찰하였다. 환원그래핀의 화학적 구조는 광전자 분광법(XPS, X-ray photoelectron spectroscopy, ESCALAB-250 with monochromated Al K_{α} radiation, Thermo-scientific)을 활용하였다. 탄소 XPS 스펙트럼 분석을 위하여, 배경 신호를 Shirley 모델을 이용해 처리한 후 Gaussian-Lorentzian 함수로 디컨볼루션(deconvolution)을 수행하였다. 이 때, C=C 결합은 Doniach-Sunjc 형태를 이용하였다.

또한, 라만 분광법(ALPHA300M, 532 nm wavelength)을 이용하여 환원그래핀 종이의 특성을 분석하였다.

2.2 주름진 환원그래핀 종이 제작

주름진 환원그래핀 종이를 만들기 위하여, 상업용 환원 그래핀 분말을 DMF(dimethylformamide)에 혼합하고(3 mg/40 mL), 초음파 분산기를 이용하여 분산하였다. 분산액을 PTFE(polytetrafluoroethylene) 멤브레인 필터를 이용하여 진공 여과함으로써 환원그래핀 종이를 제작하였다. 그래핀 종이를 미리 늘려 놓은 신축성과 접착력이 뛰어난 고분자 VHB 테이프(3M)에 전사하였다. 이 때 VHB 테이프와 접촉을 좋게 하기 위해 종이를 에탄올에 약간 적신 후 전사하는

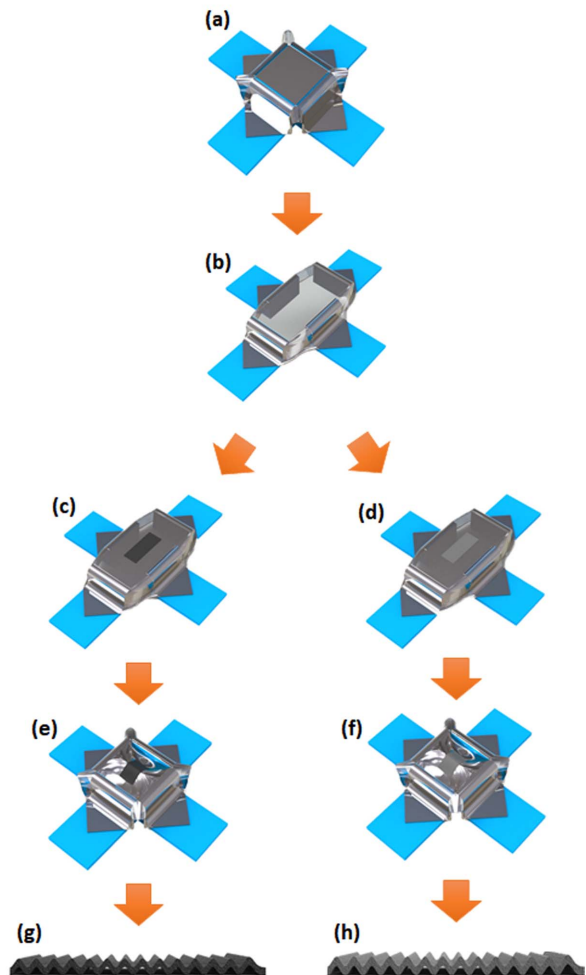


Fig. 1. Schematic of the fabrication processes of wrinkled reduced graphene oxide (wrGO) papers. (a) VHB tape placed on a zig. (b) Pre-stretched VHB tape. (c) wet and (d) fully dried rGO papers placed on the pre-stretched VHB tapes. (e, f) Wrinkle formation when the pre-stretched VHB tapes return to the original positions. (g) wrGO paper fabricated by using a wet rGO paper (W-wrGO). (h) wrGO paper fabricated by using a fully dried rGO paper (FD-wrGO)

데, 전사 후 에탄올을 완전히 말린 경우(FD-wrGO, Fig. 1(d))와 말리지 않은 경우(W-wrGO, Fig. 1(c))로 나누어 종이의 젖은 상태를 조절하였다. 그 후 테이프를 원래 위치로 되돌려 주름진 환원그래핀 종이를 만들었다.

3. 실험 결과 및 논의

본 연구에서는 상업용 환원그래핀 분말을 이용하여 환



Fig. 2. Photograph of a rGO paper fabricated by vacuum filtration of rGO flakes dispersed in DMF

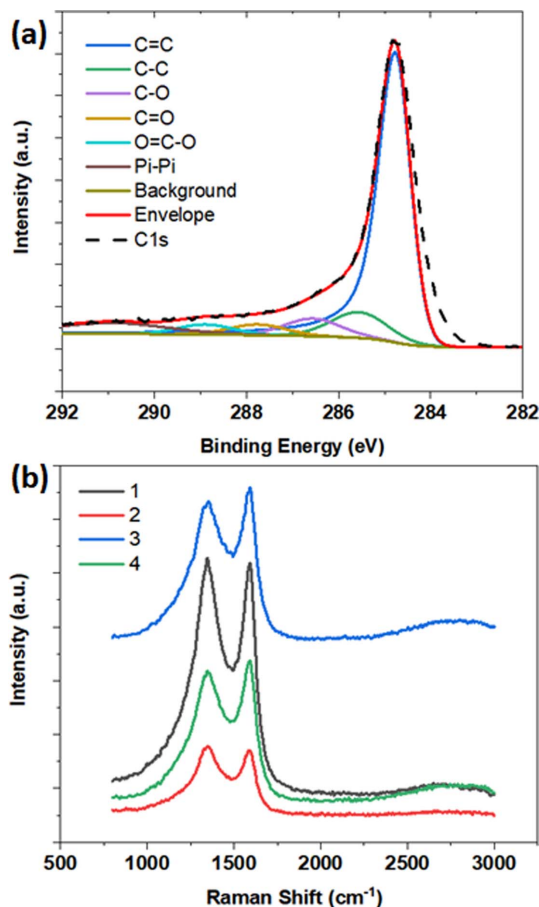


Fig. 3. (a) XPS C 1s core-level spectrum and (b) Raman spectra of the rGO paper

원그래핀 종이를 제작하였다. Fig. 2는 DMF에 분산된 환원그래핀 분말을 진공 여과하여 제작한 그래핀 종이이다. 초음파 처리를 통해 환원그래핀의 형상을 평평하게 함으로써, 그래핀 종이 제작이 가능하였다[11].

환원그래핀의 화학적, 구조적 특성을 파악하고자, 제작한 환원그래핀 종이에 대해 광전자 분광법과 라만 분광법으로 측정하였다. Fig. 3(a)는 탄소에 대한 광전자 분광 스펙트럼으로, C=C, C-C, C-O, C=O, O=C-O 결합들이 각각 284.5 eV, 285.3 eV, 286.3 eV, 287.6 eV, 288.8 eV의 결합에너지에 위치하는 것을 확인하였다[33,34]. 이러한 산소 기능기들은 산화그래핀에 비해 매우 작은 부분을 차지하고 있어, 그래핀 분말이 잘 환원된 것을 확인할 수 있었다. 더불어, 시료의 4군데에서 측정한 라만 분광 스펙트럼의 경우도, 일반적인 환원그래핀과 마찬가지로, 약 1350 cm⁻¹에 위치한 D 밴드와 약 1580 cm⁻¹에 위치한 G 밴드를 뚜렷하게 보여주고 있다. 이 때, D 피크 강도(intensity)에 대한 G 피크 강도의 상대적인 비율은 0.98로 일반적인 환원그래핀과 유사하였다.

인장시험을 통해서, 환원그래핀 종지와 VHB 접착 테이프의 stress-strain 곡선을 Fig. 4와 같이 얻었다. 환원그래핀 종지는 약 0.7%의 스트레인에서 약 4.4 MPa의 파괴강도를 나타냈고, VHB 접착 테이프는 약 755%의 스트레인에서 약 363 kPa의 파괴강도를 나타냈다. 일반적인 그래핀 종지와

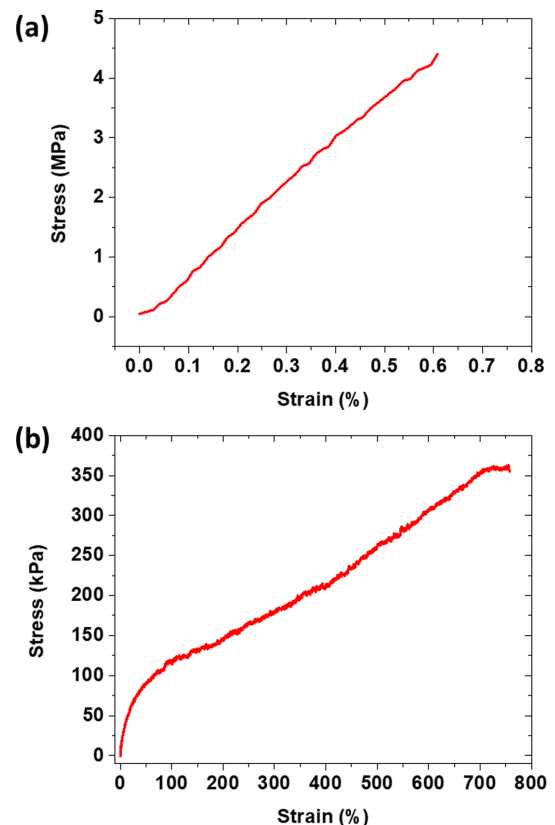


Fig. 4. Stress-strain curves of (a) the rGO paper and (b) VHB tape

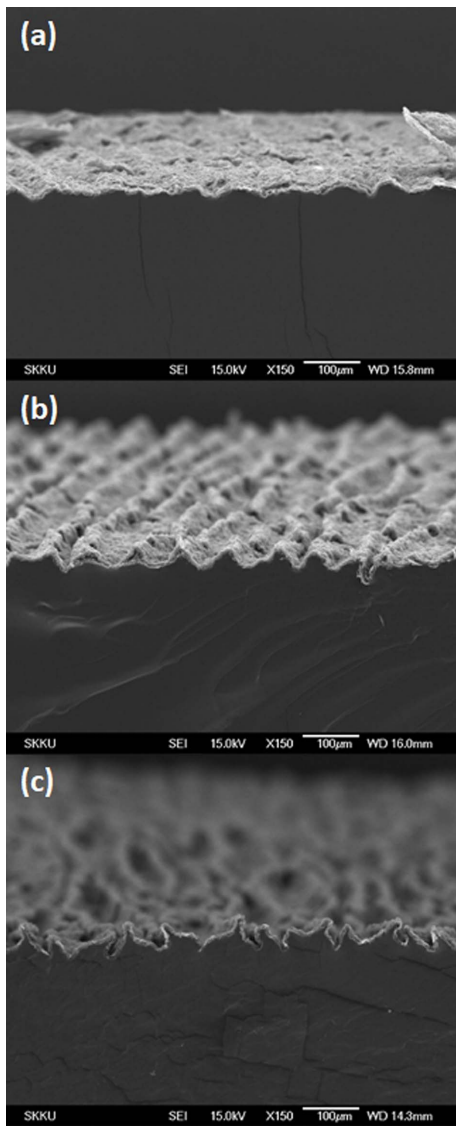


Fig. 5. Cross-sectional SEM images of FD-wrGO papers. (a) 50% pre-stretching. (b) 100% pre-stretching. (c) 150% pre-stretching

마찬가지로 환원그래핀 플레이크를 진공여과하여 제조한 환원그래핀 종이 역시 매우 낮은 스트레인에서 파괴가 일어나기 때문에 그 자체로는 신축성을 갖는 구조로 활용하기 어렵다. 하지만, VHB 접착 필름의 고신축성과 고접착성을 이용하여 그래핀 종이를 VHB 필름에 고정하여 주름을 제조함으로써, 신축성을 갖는 환원그래핀 종이를 제작하였다.

Fig. 5와 Fig. 6은 주름진 환원그래핀 종이를 측면에서 관찰한 주사전자현미경 사진이다. 접착 필름을 원래 길이의 50%(Fig. 5(a), Fig. 6(a)), 100%(Fig. 5(b), Fig. 6(b)), 150%(Fig. 5(c), Fig. 6(c)) 만큼 미리 늘린 후 환원그래핀 종이를 올리고, 접착 필름을 원래 위치로 돌려 놓았을 때 생긴 주름으로, Fig. 5는 그래핀 종이를 완전히 건조하여 주름을 제작

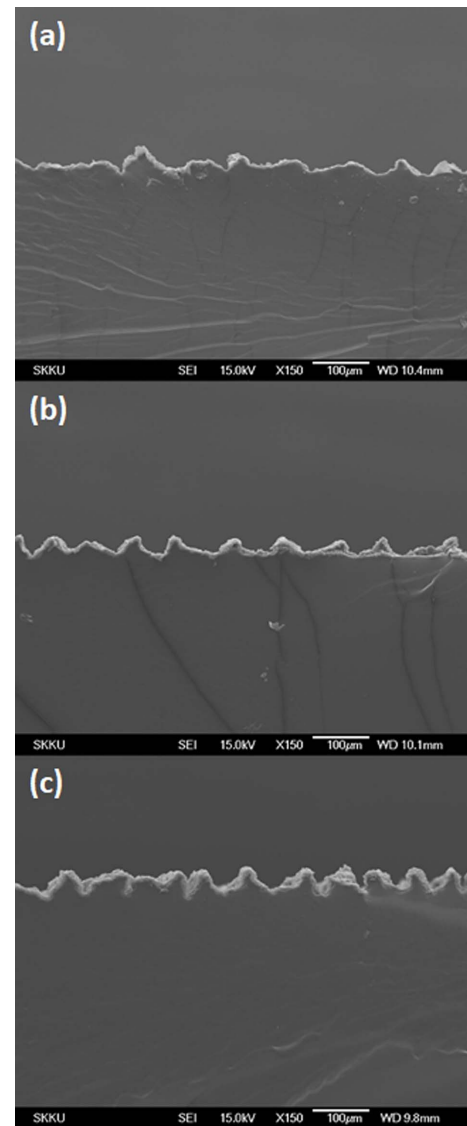


Fig. 6. Cross-sectional SEM images of W-wrGO papers. (a) 50% pre-stretching. (b) 100% pre-stretching. (c) 150% pre-stretching

한 경우(FD-wrGO)이고, Fig. 6은 그래핀 종이가 에탄올에 젖어 있는 상태에서 주름을 제작한 경우(W-wrGO)이다.

주사전자현미경 단면 사진을 통해 측정한 FD-wrGO 종이의 평균 주름 진폭은 미리 당긴 정도가 50%, 100%, 150% 일 때, 각각 $26.5 \pm 11.3 \mu\text{m}$, $26.4 \pm 3.91 \mu\text{m}$, $33.3 \pm 7.52 \mu\text{m}$ 로, 접착 필름을 당긴 정도가 클수록 진폭이 증가함을 알 수 있다. 마찬가지로, W-wrGO 종이의 평균 주름 진폭은, 50%, 100%, 150%인 경우에 $19.6 \pm 4.20 \mu\text{m}$, $22.3 \pm 5.89 \mu\text{m}$, $28.6 \pm 6.73 \mu\text{m}$ 을 나타냈다. 이를 통해 미리 당김 정도가 클수록, 상대적으로 큰 압축력이 작용해서 큰 주름이 만들어지는 것을 확인하였다. 더불어, FD-wrGO 종이가 W-wrGO 종이에 비해 같은 조건에 진폭이 큰 주름이 만들어 지는 것을 발견하였는데(Fig. 7), 이는 젖은 상태에서 그래핀 종이의 탄

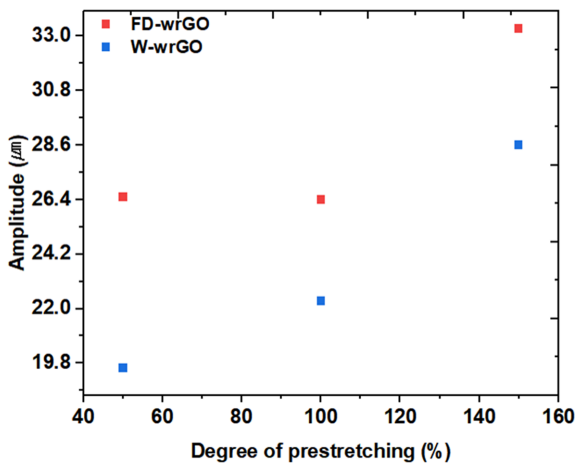


Fig. 7. Amplitude change according to the pre-stretching degree of FD-wrGO and W-wrGO papers

성 특성 변화 및 접착 필름과의 상호작용력 변화에 의해 생기는 현상으로 보인다. Yanping Cao와 동료 연구진에 따르면, 필름과 기판으로 이루어진 두 층의 복합재료에서 주름 형성 메커니즘은 두 층의 전단 탄성 계수(shear modulus)의 비와 밀접하게 관련되어 있다[35]. (필름 전단 탄성 계수)/(기판 전단 탄성 계수)가 클수록 당기는 정도가 같더라도 작은 압축 스트레인에서도 주름이 만들어 지게 된다. 따라

서, FD-wrGO의 경우 그래핀 종이와 완전히 건조되어 전단 탄성 계수가 크기 때문에, 미리 당기는 정도가 같더라도 보다 큰 주름을 만드는 것으로 보인다.

또한, 접착 필름을 미리 당긴 정도에 따라서, 주름의 형상이 변하는 것을 관찰하였다. 특히, FD-wrGO의 경우, 100%로 당긴 경우와 150%로 당긴 경우를 고배율 주사전자현미경으로 관찰하면, 주름의 형상이 변하는 것을 볼 수 있다(Fig. 8). Fabian Brau와 동료 연구진에 따르면, 소프트한 기판에 단단한 필름이 붙어 있는 경우, 압축 정도가 커짐에 따라서, 주름의 형상이 바뀌게 되는데, 압축 정도가 작을 때, 하나의 주기 함수로 표현되는 주름이 두 개의 주기 함수로 표현되는 주름으로 바뀌는 것을 보고하였다[35,36]. 이러한 현상을 “period-doubling”으로 말하며, Fig. 8과 같이, FD-wrGO 종이를 150%로 미리 당겼을 경우, “period-doubling”이 발생함을 관찰하였다. 특히, W-wrGO 종이에 비해서, FD-wrGO 종이의 경우 이러한 현상이 뚜렷하게 나타나는데, 이는 FD-wrGO의 전단 탄성 계수가 W-wrGO 종이에 비해서 크기 때문인 것으로 보인다.

4. 결 론

본 연구에서는 미리 당겨진 접착 필름에 환원그래핀 종이를 붙여 주름을 만들었으며, 접착 필름을 당기는 정도나 환원그래핀 종이의 젖은 상태에 따라 주름의 구조가 바뀌는 것을 관찰하였다. 접착 필름을 미리 당기는 정도가 클수록 주름의 평균 진폭이 커지고, 완전히 건조한 환원그래핀 종이의 경우 큰 진폭의 주름을 만들 수 있었다. 특히, 환원그래핀 종子和 접착 필름 사이에 전단 탄성 계수 차이가 커서, 완전히 건조한 그래핀 종이의 경우, 150%로 미리 당겼을 때, 주름의 주기가 변화하는 현상을 실험적으로 확인하였다. 본 연구 결과는 환원그래핀 종이를 이용한 신축성 소재 개발에 활용될 수 있을 것이다.

후 기

본 연구는 정부(과학기술정보통신부)의 재원으로 한국연구재단-기초연구사업의 지원을 받아 수행된 연구입니다 (No. 2019R1A2C2089785).

REFERENCES

1. Venkataraman, A., Amadi, E.V., Chen, Y., and Papadopoulos, C., “Carbon Nanotube Assembly and Integration for Applications,” *Nanoscale Research Letters*, Vol. 14, No. 1, 2019, pp. 220.
2. Qu, S., Dai, Y., Zhang, D., Li, Q., Chou, T.-W., and Lyu, W., “Carbon Nanotube Film Based Multifunctional Composite Materials: An Overview,” *Functional Composites and Structures*, Vol. 2, No. 2, 2020, pp. 022002.

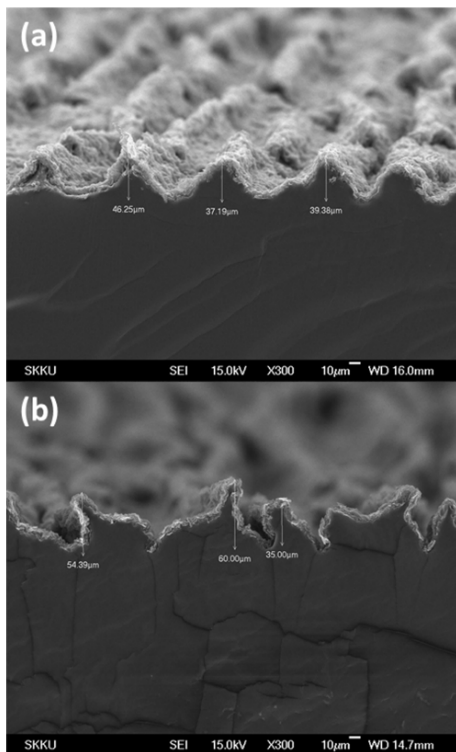


Fig. 8. High-magnification SEM image of FD-wrGO papers. Comparison of the wrinkle shapes of the papers under (a) 100% and (b) 150% pre-stretching

3. Garnett, E., Mai, L., and Yang, P., "Introduction: 1D Nanomaterials/Nanowires," *Chemical Reviews*, Vol. 119, No. 15, 2019, pp. 8955-8957.
4. Zhu, Y., Murali, S., Cai, W., Li, X., Suk, J.W., Potts, J.R., and Ruoff, R.S., "Graphene and Graphene Oxide: Synthesis, Properties, and Applications," *Advanced Materials*, Vol. 22, No. 35, 2010, pp. 3906-3924.
5. Megra, Y.T., and Suk, J.W., "Adhesion Properties of 2D Materials," *Journal of Physics D: Applied Physics*, Vol. 52, No. 36, 2019, pp. 364002.
6. Suk, J.W., Hao, Y., Liechti, K.M., and Ruoff, R.S., "Impact of Grain Boundaries on the Elastic Behavior of Transferred Polycrystalline Graphene," *Chemistry of Materials*, Vol. 32, No. 14, 2020, pp. 6078-6084.
7. Jang, H., Lee, H.-J., and Suk, J.W., "Mechanical and Electrical Characteristics of Polyurethane-Based Composite Fibers," *Composites Research*, Vol. 33, No. 2, 2020, pp. 50-54.
8. Shen, X., and Kim, J.-K., "3D Graphene and Boron Nitride Structures for Nanocomposites with Tailored Thermal Conductivities: Recent Advances and Perspectives," *Functional Composites and Structures*, Vol. 2, No. 2, 2020, pp. 022001.
9. Yamamoto, G., Shirasu, K., Hashida, T., Takagi, T., Suk, J.W., An, J., Piner, R.D., and Ruoff, R.S., "Nanotube Fracture During the Failure of Carbon Nanotube/Alumina Composites," *Carbon*, Vol. 49, No. 12, 2011, pp. 3709-3716.
10. Goktas, N.I., Wilson, P., Ghukasyan, A., Wagner, D., McNamee, S., and LaPierre, R.R., "Nanowires for Energy: A Review," *Applied Physics Reviews*, Vol. 5, No. 4, 2018, pp. 041305.
11. Kang, J., Lim, T., Jeong, M.H., and Suk, J.W., "Graphene Papers with Tailored Pore Structures Fabricated from Crumpled Graphene Spheres," *Nanomaterials*, Vol. 9, No. 6, 2019, pp. 815.
12. Vo, T.T., Lee, H.-J., Kim, S.-Y., and Suk, J.W., "Synergistic Effect of Graphene/Silver Nanowire Hybrid Fillers on Highly Stretchable Strain Sensors Based on Spandex Composites," *Nanomaterials*, Vol. 10, No. 10, 2020, pp. 2063.
13. Park, S., An, J., Suk, J.W., and Ruoff, R.S., "Graphene-Based Actuators," *Small*, Vol. 6, No. 2, 2010, pp. 210-212.
14. Piao, C., and Suk, J.W., "Enhanced Cooling Performance of Polymer Actuators Using Carbon Nanotube Composites," *Composites Research*, Vol. 30, No. 2, 2017, pp. 165-168.
15. Piao, C., Jang, H., Lim, T., Kim, H., Choi, H.R., Hao, Y., and Suk, J.W., "Enhanced Dynamic Performance of Twisted and Coiled Soft Actuators using Graphene Coating," *Composites Part B: Engineering*, Vol. 178, 2019, pp. 107499.
16. Zhao, Z., Hou, T., Wu, N., Jiao, S., Zhou, K., Yin, J., Suk, J.W., Cui, X., Zhang, M., Li, S., Qu, Y., Xie, W., Li, X.-B., Zhao, C., Fu, Y., Hong, R.-D., Guo, S., Lin, D., Cai, W., Mai, W., Luo, Z., Tian, Y., Lai, Y., Liu, Y., Colombo, L., and Hao, Y., "Polycrystalline Few-Layer Graphene as a Durable Anticorrosion Film for Copper," *Nano Letters*, Vol. 21, No. 2, 2021, pp. 1161-1168.
17. Piao, C., and Suk, J.W., "Graphene/Silver Nanoflower Hybrid Coating for Improved Cycle Performance of Thermally-Operated Soft Actuators," *Scientific Reports*, Vol. 10, No. 1, 2020, pp. 17553.
18. Kholmanov, I.N., Magnuson, C.W., Aliev, A.E., Li, H., Zhang, B., Suk, J.W., Zhang, L.L., Peng, E., Mousavi, S.H., Khaniyev, A.B., Piner, R., Shvets, G., and Ruoff, R.S., "Improved Electrical Conductivity of Graphene Films Integrated with Metal Nanowires," *Nano Letters*, Vol. 12, No. 11, 2012, pp. 5679-5683.
19. Suk, J.W., Kirk, K., Hao, Y., Hall, N.A., and Ruoff, R.S., "Thermoacoustic Sound Generation from Monolayer Graphene for Transparent and Flexible Sound Sources," *Advanced Materials*, Vol. 24, No. 47, 2012, pp. 6342-6347.
20. Lee, C., Wei, X., Kysar, J.W., and Hone, J., "Measurement of the Elastic Properties and Intrinsic Strength of Monolayer Graphene," *Science*, Vol. 321, No. 5887, 2008, pp. 385-388.
21. Suk, J.W., Lee, W.H., Lee, J., Chou, H., Piner, R.D., Hao, Y., Akinwande, D., and Ruoff, R.S., "Enhancement of the Electrical Properties of Graphene Grown by Chemical Vapor Deposition via Controlling the Effects of Polymer Residue," *Nano Letters*, Vol. 13, No. 4, 2013, pp. 1462-1467.
22. Balandin, A.A., Ghosh, S., Bao, W., Calizo, I., Teweldebrhan, D., Miao, F., and Lau, C.N., "Superior Thermal Conductivity of Single-Layer Graphene," *Nano Letters*, Vol. 8, No. 3, 2008, pp. 902-907.
23. Nair, R.R., Blake, P., Grigorenko, A.N., Novoselov, K.S., Booth, T.J., Stauber, T., Peres, N.M.R., and Geim, A.K., "Fine Structure Constant Defines Visual Transparency of Graphene," *Science*, Vol. 320, No. 5881, 2008, pp. 1308-1308.
24. Novoselov, K.S., Geim, A.K., Morozov, S.V., Jiang, D., Zhang, Y., Dubonos, S.V., Grigorieva, I.V., and Firsov, A.A., "Electric Field Effect in Atomically Thin Carbon Films," *Science*, Vol. 306, No. 5696, 2004, pp. 666-669.
25. Chen, D., Feng, H., and Li, J., "Graphene Oxide: Preparation, Functionalization, and Electrochemical Applications," *Chemical Reviews*, Vol. 112, No. 11, 2012, pp. 6027-6053.
26. Park, H., Lim, S., Nguyen, D.D., and Suk, J.W., "Electrical Measurements of Thermally Reduced Graphene Oxide Powders under Pressure," *Nanomaterials*, Vol. 9, No. 10, 2019, pp. 1387.
27. Park, S., Suk, J.W., An, J., Oh, J., Lee, S., Lee, W., Potts, J.R., Byun, J.-H., and Ruoff, R.S., "The Effect of Concentration of Graphene Nanoplatelets on Mechanical and Electrical Properties of Reduced Graphene Oxide Papers," *Carbon*, Vol. 50, No. 12, 2012, pp. 4573-4578.
28. Ke, Q., and Wang, J., "Graphene-Based Materials for Supercapacitor Electrodes – A Review," *Journal of Materials*, Vol. 2, No. 1, 2016, pp. 37-54.
29. Deng, S., and Berry, V., "Wrinkled, Rippled and Crumpled Graphene: An Overview of Formation Mechanism, Electronic Properties, and Applications," *Materials Today*, Vol. 19, No. 4, 2016, pp. 197-212.
30. Zheng, W., Huang, W., Gao, F., Yang, H., Dai, M., Liu, G., Yang, B., Zhang, J., Fu, Y.Q., Chen, X., Qiu, Y., Jia, D., Zhou, Y., and Hu, P., "Kirigami-Inspired Highly Stretchable Nanoscale Devices Using Multidimensional Deformation of Monolayer MoS₂," *Chemistry of Materials*, Vol. 30, No. 17, 2018, pp. 6063-6070.
31. Zang, J., Ryu, S., Pugno, N., Wang, Q., Tu, Q., Buehler, M.J., and Zhao, X., "Multifunctionality and Control of the Crumpling and Unfolding of Large-Area Graphene," *Nature Materials*, Vol. 12, No. 4, 2013, pp. 321-325.

32. Feng, C., Yi, Z., Dumée, L.F., Garvey, C.J., She, F., Lin, B., Lucas, S., Schütz, J., Gao, W., Peng, Z., and Kong, L., "Shrinkage Induced Stretchable Micro-wrinkled Reduced Graphene Oxide Composite with Recoverable Conductivity," *Carbon*, Vol. 93, 2015, pp. 878-886.
33. Suk, J.W., Murali, S., An, J., and Ruoff, R.S., "Mechanical Measurements of Ultra-thin Amorphous Carbon Membranes using Scanning Atomic Force Microscopy," *Carbon*, Vol. 50, No. 6, 2012, pp. 2220-2225.
34. Yang, D., Velamakanni, A., Bozoklu, G., Park, S., Stoller, M., Piner, R.D., Stankovich, S., Jung, I., Field, D.A., Ventrice, C.A., and Ruoff, R.S., "Chemical Analysis of Graphene Oxide Films After Heat and Chemical Treatments by X-ray Photoelectron and Micro-Raman Spectroscopy," *Carbon*, Vol. 47, No. 1, 2009, pp. 145-152.
35. Cao, Y., and Hutchinson, J.W., "Wrinkling Phenomena in Neo-Hookean Film/Substrate Bilayers," *Journal of Applied Mechanics*, Vol. 79, No. 3, 2012, pp. 031019.
36. Brau, F., Vandeparre, H., Sabbah, A., Poulard, C., Boudaoud, A., and Damman, P., "Multiple-length-scale Elastic Instability Mimics Parametric Resonance of Nonlinear Oscillators," *Nature Physics*, Vol. 7, No. 1, 2011, pp. 56-60.