(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2024-0178998
(43) 공개일자 2024년12월31일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
*H02N 1/04* (2006.01) *H10N 30/00* (2023.01)
*H10N 30/50* (2023.01) *H10N 30/857* (2023.01)
*H10N 30/87* (2023.01)
(52) CPC특허분류
*H02N 1/04* (2013.01)
*H10N 30/50* (2023.02)
(21) 출원번호 10-2023-0081460
(22) 출원일자 2023년06월23일
심사청구일자 2023년06월23일

(71) 출원인
**울산과학기술원**
울산광역시 울주군 언양읍 유니스트길 50
(72) 발명자
**고현협**
울산광역시 울주군 언양읍 유니스트길 50 울산과학기술원
**박용진**
울산광역시 울주군 언양읍 유니스트길 50 울산과학기술원
**노윤구**
울산광역시 울주군 언양읍 유니스트길 50 울산과학기술원
(74) 대리인
**특허법인지원**

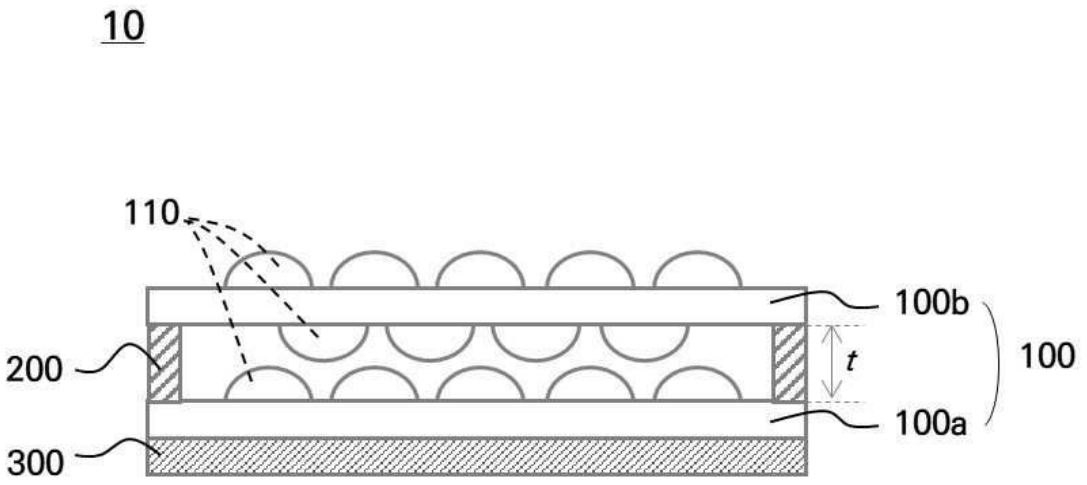
전체 청구항 수 : 총 9 항

(54) 발명의 명칭 **다층 구조의 마찰전기 나노발전기**

## (57) 요 약

본 발명은 마찰전기 나노발전기에 관한 것으로, 더욱 상세하게는 서로 다른 소재의 마찰전기층이 교대로 적층된 마찰전기 나노발전기에 관한 것이다.

*대 표 도* - 도1



(52) CPC특허분류
*H10N 30/704* (2024.05)
*H10N 30/857* (2023.02)
*H10N 30/87* (2023.02)

이 발명을 지원한 국가연구개발사업
과제고유번호 1711184436
과제번호 2021R1A2C3009222
부처명 과학기술정보통신부
과제관리(전문)기관명 한국연구재단
연구사업명 개인기초연구(과기정통부)
연구과제명 생체유래 강유전/이온 복합소재 기반 생분해성 시냅스 촉각 소자
기 여 율 3/10
과제수행기관명 울산과학기술원
연구기간 2023.03.01 ~ 2024.02.29
이 발명을 지원한 국가연구개발사업
과제고유번호 1711186594
과제번호 2022M3H4A1A02076825
부처명 과학기술정보통신부
과제관리(전문)기관명 한국연구재단
연구사업명 나노소재기술개발
연구과제명 이온트로닉 소재 및 소자 기반 초실감형 메타버스용 웨어러블 다중 촉감 인지/재현 시스템 개발
기 여 율 7/10
과제수행기관명 울산과학기술원
연구기간 2023.01.01 ~ 2023.12.31

# 명 세 서

## 청구범위

### 청구항 1

적어도 일면에 마이크로돔 패턴이 형성된 PDMS 필름; 및

적어도 일면에 마이크로돔 패턴이 형성된 강유전체 복합필름을 포함하며,

상기 PDMS 필름과 상기 강유전체 복합필름은 각각 마찰전기층으로 이용되는 것이며,

상기 PDMS 필름의 마이크로돔 패턴과 상기 강유전체 복합필름의 마이크로돔 패턴이 서로 대향하도록 상기 PDMS 필름과 상기 강유전체 복합필름이 순차적으로 적층되는 것인,

마찰전기 나노발전기.

### 청구항 2

제1항에 있어서,

상기 강유전체 복합필름은 $BaTiO_3$(BTO)을 포함하는 것인,

마찰전기 나노발전기.

### 청구항 3

제2항에 있어서,

상기 강유전체 복합필름은 PDMS을 더 포함하는 것인,

마찰전기 나노발전기.

### 청구항 4

제3항에 있어서,

상기 강유체 복합필름은 1H,1H,2H,2H-퍼플로오로옥틸트리클로로실란(FOTS)으로 표면처리된 것인,

마찰전기 나노발전기.

### 청구항 5

제1항에 있어서,

상기 PDMS 필름과 상기 강유전체 복합필름은 소정의 간격으로 이격되어 배치되는 것인,

마찰전기 나노발전기.

### 청구항 6

제1항에 있어서,

상기 강유전체 복합필름은 외부에서 인가되는 압력을 전달받는 것인,

마찰전기 나노발전기.

**청구항 7**

제1항에 있어서,

전극 기판 상에 배치되며 상기 PDMS 필름으로 구성되는 제1 마찰전기층; 및

상기 제1 마찰전기층 상에 적층되며 상기 강유전체 복합필름으로 구성되는 제2 마찰전기층을 포함하는 것인,

마찰전기 나노발전기.

**청구항 8**

제1항에 있어서,

전극 기판 상에 배치되며 상기 강유전체 복합필름으로 구성되는 제1 마찰전기층;

상기 제1 마찰전기층 상에 적층되며 상기 PDMS 필름으로 구성되는 제2 마찰전기층; 및

상기 제2 마찰전기층 상에 적층되며 상기 강유전체 복합필름으로 구성되는 제3 마찰전기층을 포함하는 것인,

마찰전기 나노발전기

**청구항 9**

제1항에 있어서,

전극 기판 상에 배치되는 제1 마찰전기층;

상기 제1 마찰전기층 상에 적층되는 제2 마찰전기층;

상기 제2 마찰전기층 상에 적층되는 제3 마찰전기층; 및

상기 제3 마찰전기층 상에 적층되는 제4 마찰전기층을 포함하며,

상기 제1 마찰전기층과 상기 제3 마찰전기층은 상기 PDMS 필름이며,

상기 제2 마찰전기층과 상기 제4 마찰전기층은 상기 강유전체 복합필름인 것인,

마찰전기 나노발전기.

## *발명의 설명*

### *기 술 분 야*

[0001] 본 발명은 마찰전기 나노발전기에 관한 것으로, 더욱 상세하게는 서로 다른 소재의 마찰전기층이 교대로 적층된 마찰전기 나노발전기에 관한 것이다.

### *배 경 기 술*

[0002] 마찰전기 나노발전기(Triboelectric nanogenerator; TENG)는 주변 또는 기계적 접촉에 의하여 전기 에너지를 생성하는 장치로서, 전자 피부(electronic skins), 신체 동작 센서(body motion sensor), 로봇 촉각 센서(robotic tactile sensor)와 같은 다양한 센서로 적용할 수 있으며, 진동, 바람, 파동 에너지 등을 이용한 에너지 수집 장치로 적용할 수 있다. 인간-기계 인터페이스(human-machine interfaces (HMIs)) 개발에 관심이 높아지면서, 저전력 소모, 다중 감지, 메모리 및 학습 기능을 갖춘 장치를 필요로 한다. 이러한 측면에서, TENG는 특히, 생물학적 시냅스를 모방하여 메모리 및 학습 기능을 모두 실현하는 시냅스 트랜지스터와 결합할 때 상당히 다양한 산업적 파급효과를 일으킬 수 있다. TENG의 감지 및 에너지 수집 기능과 시냅스 장치의 기억 및 학습 기능을 결합하여 뉴로모픽(neuromorphic) 장치의 지능형 감지를 달성할 수 있다. 시냅스 트랜지스터(synaptic

transistors)와 결합하면 TENG는 생물학적 시스템의 활동전위 전파와 유사한 스파이크와 같은 임펄스(impulses)를 트랜지스터 게이트에 제공할 수 있다. 또한, 자체 구동 마찰전기 전위 게이팅(self-powered triboelectric potential gating)은 시냅스 트랜지스터를 작동할 때 필요한 외부 게이트 공급을 대체하여 에너지 소비를 감소시킬 수 있다. 이러한 낮은 에너지 소비는 보다 많은 양의 에너지를 소모하는 폰 노이만(von Neumann) 컴퓨팅 아키텍처보다 우수한 뉴로모픽 시스템에 매우 중요하다. 단기 가소성(short-term plasticity; STP) 및 장기 가소성(long-term plasticity; LTP)과 같은 신경 기능을 모사(emulate) 하기 위해, 시냅스 트랜지스터는 채널 전도도를 시냅스 전(pre-synaptic) 뉴런과 시냅스 후(post-synaptic) 뉴런 사이의 연결 강도는 나타내는 시냅스 가중치(synaptic weight)와 상관시킨다. 수 밀리초(milliseconds)에서 수 초(seconds)에 걸쳐 발생하는 시냅스 가중치의 변화를 수반하는 STP는 지각 및 인지 기능을 담당한다. 반면, LTP는 몇 시간(hours) 이상 지속될 수 있는 시냅스 가중치의 변화를 나타내며, 학습과 기억을 위한 주요 메커니즘으로 간주된다. 따라서, LTP의 실행은 뉴로모픽 컴퓨팅 시스템의 개발에 필수적이다. STP에서 LTP로의 전환은 고주파에서 반복적인 자극과의 신경 연결을 강화시킴으로써 달성될 수 있다. 마찬가지로, 마찰전기 시냅스 트랜지스터에서 LTP 동작을 달성하기 위하여, TNEG가 트랜지스터에 고주파 및 고강도 게이트 전압을 공급하는 것이 바람직하다. 그러나, 기존에 보고된 마찰전기 기반 트랜지스터는 상대적으로 높은 게이트 전압을 요구하기 때문에, 불충분한 LTP로 인한 시냅스 가중치 형성에 어려움을 겪고 있다. 또한, 자가 동력 시냅스 장치의 게이트 소스로서 최대 전압 출력에는 빠른 외부 자극(10 Hz)이 필요하다. 이러한 상황에서는 단일 스파이크 신호만으로는 만족스러운 시냅스 성능을 얻을 수 없다.

[0003] 다양한 응용 분야에서 TENG를 활용하기 위하여, 마찰전기 출력 성능을 향상시키기 위해 상당한 노력을 기울였다. 이전에 보고된 연구는 주로 마찰전기 계열에서 큰 마찰전기 극성 차이를 기반으로 하는 재료 선택과 마이트로/나노구조를 갖는 마찰전기 층의 표면 개질 및 장치 구조의 디자인 변화에 초점을 두었다. 예를 들어, 메조포러스(mesoporous) PDMS/Au-Al/Al 필름, 웨이브 형태의 Cu-Kapton-Cu필름, 코로나 방전(corona charging) 처리된 PTFE(polytetrafluoroethylene) 일렉트릿(electret) 필름 및 다중 갭 구조의 폴리비닐리덴 플루오라이드와 나일론 필름을 기반으로 한 다층 TENG는 레이어(layer) 수에 비례하여 마찰전기 출력 성능이 증가하는 것을 보였다. 다층 구조에 대한 이전의 연구는 큰 표면적 다층을 활용하여 에너지 수확 성능을 향상시키는데 있어 상당한 진전을 이루었다. 그러나, 현재까지 시냅스 장치에서 LTP를 달성하기 위하여 고주파 게이트 전압에 대한 단일 터치에서 다층 구조에 의해 생성된 다중 마찰전기 스파이크를 반복적인 동작 전위의 소스로 사용하는 것에 대한 보고는 없었다.

## 선행기술문헌

### 특허문헌

[0005] (특허문헌 0001) 대한민국 등록특허공보 제10-2446126호

## 발명의 내용

### 해결하려는 과제

[0006] 본 발명은 1회의 터치로 다수의 마찰전기 스파이크를 생성할 수 있는 다층 마찰전기 나노발전기를 제공하고, 유기 전기화학 트랜지스터(OECT)와 통합하여 시냅스 가소성 및 뇌의 학습 행동을 모방할 수 있으며, 전력 소비가 낮은 인공 시냅스 장치를 제공하는 것을 목적으로 하는 것이다.

[0007] 본 발명의 목적들은 이상에서 언급한 목적들로 제한되지 않으며, 언급되지 않은 또 다른 목적들은 아래의 기재로부터 명확하게 이해될 수 있을 것이다.

### 과제의 해결 수단

[0009] 본 발명의 일 실시예에 따른 마찰전기 나노발전기는 적어도 일면에 마이크로돔 패턴이 형성된 PDMS 필름; 및 적어도 일면에 마이크로돔 패턴이 형성된 강유전체 복합필름을 포함한다.

[0010] 상기 PDMS 필름과 상기 강유전체 복합필름은 각각 마찰전기층으로 이용되는 것일 수 있다.

[0011] 상기 PDMS 필름의 마이크로돔 패턴과 상기 강유전체 복합필름의 마이크로돔 패턴이 서로 대향하도록 상기 PDMS 필름과 상기 강유전체 복합필름이 순차적으로 적층되는 것일 수 있다.

[0012] 상기 강유전체 복합필름은 $BaTiO_3$(BTO)을 포함하는 것일 수 있다.

[0013] 상기 강유전체 복합필름은 PDMS을 더 포함하는 것일 수 있다.

[0014] 상기 강유체 복합필름은 1H,1H,2H,2H-퍼플로오로옥틸트리클로로실란(FOTS)으로 표면처리된 것일 수 있다.

[0015] 상기 PDMS 필름과 상기 강유전체 복합필름은 소정의 간격으로 이격되어 배치되는 것일 수 있다.

[0016] 상기 강유전체 복합필름은 외부에서 인가되는 압력을 전달받는 것일 수 있다.

[0018] 또한, 본 발명의 일 실시예에 따른 마찰전기 나노발전기는 전극 기판 상에 배치되며 상기 PDMS 필름으로 구성되는 제1 마찰전기층; 및 상기 제1 마찰전기층 상에 적층되며 상기 강유전체 복합필름으로 구성되는 제2 마찰전기층을 포함한다.

[0019] 또한, 본 발명의 일 실시예에 따른 마찰전기 나노발전기는 전극 기판 상에 배치되며 상기 강유전체 복합필름으로 구성되는 제1 마찰전기층; 상기 제1 마찰전기층 상에 적층되며 상기 PDMS 필름으로 구성되는 제2 마찰전기층; 및 상기 제2 마찰전기층 상에 적층되며 상기 강유전체 복합필름으로 구성되는 제3 마찰전기층을 포함한다.

[0020] 또한, 본 발명의 일 실시예에 따른 마찰전기 나노발전기는 전극 기판 상에 배치되는 제1 마찰전기층; 상기 제1 마찰전기층 상에 적층되는 제2 마찰전기층; 상기 제2 마찰전기층 상에 적층되는 제3 마찰전기층; 및 상기 제3 마찰전기층 상에 적층되는 제4 마찰전기층을 포함하는 것이며, 상기 제1 마찰전기층과 상기 제3 마찰전기층은 상기 PDMS 필름이며, 상기 제2 마찰전기층과 상기 제4 마찰전기층은 상기 강유전체 복합필름인 것일 수 있다.

## *발명의 효과*

[0022] 본 발명은 1회의 터치(touch)로 다수의 마찰전기 스파이크를 생성시킴으로써, 전력 소비가 적은 인공 시냅스 장치를 제공할 수 있는 효과가 있다.

[0023] 본 발명의 기술적 효과들은 이상에서 언급한 것들로 제한되지 않으며, 언급되지 않은 또 다른 기술적 효과들은 아래의 기재로부터 당업자에게 명확하게 이해될 수 있을 것이다.

## *도면의 간단한 설명*

[0025] 도 1은 본 발명의 일 실시예에 따른 2 층의 마찰전기 나노발전기(2-TENG)의 모식도를 도시한 것이다.

도 2는 본 발명의 일 실시예에 따른 3 층의 마찰전기 나노발전기(3-TENG)의 모식도를 도시한 것이다.

도 3은 본 발명의 일 실시예에 따른 4 층의 마찰전기 나노발전기(4-TENG)의 모식도를 도시한 것이다.

도 4는 본 발명의 일 실시예에 따른 양면 마이크로돔 패턴화된 필름의 제조과정 모식도를 도시한 것이다.

도 5는 본 발명의 일 실시예에 따른 유기 전기화학 트랜지스터(OECT)의 제조과정 모식도를 도시한 것이다.

도 6은 본 발명의 일 실시예에 따른 마찰전기 나노발전기의 접촉-분리 거리(1 ㎜, 2 ㎜, 3 ㎜, 4 ㎜, 5 ㎜)에 따른 출력성능 분석 결과를 도시한 것이다.

도 7은 본 발명의 일 실시예에 따른 마찰전기 나노발전기의 스페이서 두께에 따른 출력성능 분석 결과를 도시한 것이다.

도 8은 본 발명의 일 실시예에 따른 양면 마이크로돔 패턴 FBP 필름에 대하여 X-선 광전자 분광법(XPS) 분석 결과를 도시한 것이다.

도 9는 본 발명의 일 실시예에 따른 전기마찰층에 대하여 XRD 분석 결과를 도시한 것이다.

도 10은 본 발명의 일 실시예에 따른 양면 마이크로돔 패턴 FBP 필름에 대한 전계 방출 주사 현미경(FE-SEM) 분석 이미지를 도시한 것이다.

도 11은 본 발명의 일 실시예에 따른 전기마찰층의 접착 시험(adhesion test)을 수행결과를 도시한 것이다.

도 12는 본 발명의 일 실시예에 따른 전기마찰층의 전류 밀도(Current density) 및 전압(Voltage) 분석 결과를 도시한 것이다.

도 13은 본 발명의 일 실시예에 따른 마찰전기 나노발전기의 개념, 구조 및 적용을 도시한 것이다

도 14는 본 발명의 일 실시예에 따른 마찰전기 나노발전기의 작동메커니즘을 도시한 것이다

도 15는 본 발명의 일 실시예에 따른 마찰전기 나노발전기의 스파이크 패턴을 비교 결과를 도시한 것이다.

도 16a 내지 도 16d는 본 발명의 일 실시예에 따른 마찰전기 나노발전기의 단락 전류 밀도($J_{sc}$)를 도시한 것이다.

도 17은 본 발명의 일 실시예에 따른 마찰전기 나노발전기에 대하여 푸싱 테스터(pushing tester)를 이용하여 적용된 압력에 따른 사진이미지를 도시한 것이다.

도 18은 본 발명의 일 실시예에 따른 마찰전기 나노발전기에 대하여 압력크기에 따른 단락 전류 밀도($J_{sc}$)를 도시한 것이다.

도 19은 본 발명의 일 실시예에 따른 마찰전기 나노발전기에 대하여 98 kPa의 적용 압력하에서 개방회로전압($V_{oc}$)를 도시한 것이다.

도 20a는 본 발명의 일 실시예에 따른 마찰전기 나노발전기의 성능지표 분석 결과를 도시한 것이다.

도 20b는 본 발명의 일 실시예에 따른 마찰전기 나노발전기로부터의 출력 전력을 5 개의 청색 LED에 적용한 사진 이미지를 도시한 것이다.

도 21은 본 발명의 일 실시예에 따른 마찰전기 나노발전기의 이론적 모델을 도시한 것이다.

도 22는 본 발명의 일 실시예에 따른 전기마찰층의 유전율을 도시한 것이다.

도 23은 본 발명의 일 실시예에 따른 마찰전기 나노발전기의 시간의 경과에 따른 정류기에 의해 정류된 M-TENG의 피크 전압(Rectified $V_{oc}$)을 도시한 것이다.

도 24는 본 발명의 일 실시예에 따른 유기 전기화학 트랜지스터(OECT)의 특성을 도시한 것이다.

도 25a 내지 도 25d는 본 발명의 일 실시예에 따른 마찰전기 나노발전기를 인공 시냅스 디바이스에 적용한 모식도 및 이의 시냅스 특성결과를 도시한 것이다.

도 26a 내지 도 26c은 본 발명의 일 실시예에 따른 로봇 손 작동을 위한 회로 구성 및 이의 분석 결과를 도시한 것이다.

## *발명을 실시하기 위한 구체적인 내용*

[0026] 본 발명이 속하는 기술 분야에서 통상의 지식을 가진 자가 용이하게 실시할 수 있도록 본 발명의 실시예에 대하여 상세히 설명하고자 한다. 그러나 본 발명은 여러 가지 상이한 형태로 구현될 수 있으며 여기에서 설명하는 실시예에 한정되지 않는다. 또한, 명세서 전체에 걸쳐서 동일한 참조번호들은 동일한 구성요소들을 나타낸다.

[0028] 도 1 내지 도 3은 본 발명의 일 실시예에 따른 마찰전기 나노발전기의 모식도를 도시한 것이다.

[0029] 도 1 내지 도 3을 참조하면, 본 발명의 일 실시예에 따른 마찰전기 나노발전기(10)는 다수의 마찰전기층이 순차적으로 적층되어 다층(multi-layered) 구조를 갖는 것이며, 적어도 2 이상의 마찰전기층(100)이 적층되는 것일 수 있다. 이때, 최상부층으로 적층되는 마찰전기층(100)은 외부에서 인가되는 압력을 전달받는 것일 수 있다.

[0030] 본 발명의 일 실시예에 따른 마찰전기 나노발전기(10)는 스페이서(200) 및 전극 기판(300)을 더 포함하는 것일

수 있다.

[0032] 마찰전기층(100)은 적어도 일면에 마이크로돔 패턴(110)이 형성된 것일 수 있으며, 일면 또는 양면에 마이크로돔 패턴(110)이 형성된 것일 수 있다. 2 이상의 마찰전기층(100)이 적층되는 경우, 각각 마찰전기층(100a, 100b, 100c, 100d)은 각각의 마이크로돔 패턴(110)이 서로 대향되도록 배치되는 것일 수 있다.

[0033] 마찰전기층(100)은 면상 부재로서 적층이 가능한 것일 수 있으며, 일례로서 필름(film) 형태의 부재일 수 있다.

[0035] 마찰전기층(100)은 적어도 일면에 대하여 마이크로돔 패턴(110)이 형성된 것일 수 있으며, 보다 바람직하게는 양면에 대하여 마이크로돔 패턴(110)이 형성된 것일 수 있다.

[0036] 2 이상의 마찰전기층(100)이 적층되는 경우, 인접하는 마찰전기층(100)은 서로 다른 소재로 구성되는 마찰전기층(100a, 100b, 100c, 100d)일 수 있다. 이때, 적층되는 구조에서 최하부층에 해당하는 마찰전기층(100)은 제1 마찰전기층(100a)일 수 있다.

[0038] 마찰전기층(100)은 PDMS(Polydimethylsiloxane) 필름 또는 강유전체 복합필름일 수 있으며, 상기 강유전체 복합필름은 PDMS를 포함하며, 보다 구체적으로 PDMS 및 $BaTiO_3$(BTO)를 포함하는 것일 수 있다. 또한 상기 강유전체 복합필름은 1H,1H,2H,2H-퍼플로오로옥틸트리클로로실란(FOTS)으로 표면처리된 것일 수 있다.

[0039] 상기 강유전체 복합필름은 BTO($BaTiO_3$) 나노입자를 1 내지 10 wt%의 농도로 포함하는 것일 수 있으며, 보다 구체적으로, PDMS와 BTO 나노입자 총 함량 100 wt%를 기준으로 PDMS는 10 내지 99 wt%, BTO 나노입자는 1 내지 10 wt%로 포함하는 것일 수 있다.

[0040] 마찰전기 나노발전기(10)가 2 이상의 마찰전기층(100a 내지 100d)으로 구성되는 경우, PDMS 필름과 강유전체 복합필름이 교대로 순차적으로 적층되는 것일 수 있으며, 최상부층으로 적층되는 마찰전기층(100b 내지 100d)는 강유전체 복합필름일 수 있다. 강유전체 복합필름은 외부에서 인가되는 압력을 전달받는 것일 수 있으며, 보다 구체적으로 강유전체 복합필름은 적층되는 다수의 마찰전기층(100) 중 최상부층으로 적층되는 마찰전기층(100b, 100c, 100d)일 수 있다.

[0042] 일례로서, 마찰전기 나노발전기(100)는 적어도 일면에 마이크로돔 패턴이 형성된 PDMS 필름; 및 적어도 일면에 마이크로돔 패턴이 형성된 강유전체 복합필름을 포함하는 것일 수 있으며, 상기 PDMS 필름과 상기 강유전체 복합필름은 각각 마찰전기층으로 이용되는 것이며, 상기 PDMS 필름의 마이크로돔 패턴과 상기 강유전체 복합필름의 마이크로돔 패턴이 서로 대향하도록 상기 PDMS 필름과 상기 강유전체 복합필름이 순차적으로 적층되는 것일 수 있다.

[0044] 일례로서, 도 1을 참조하면, 마찰전기 나노발전기(10)가 2 층(layered)의 마찰전기층(100)으로 구성되는 것으로, 보다 구체적으로 제1 마찰전기층(100a) 및 제1 마찰전기층(100a) 상에 적층되는 제2 마찰전기층(100b)으로 구성되는 경우, 제1 마찰전기층(100a)은 PDMS 필름일 수 있으며, 제2 마찰전기층(100b)은 강유전체 복합필름일 수 있다.

[0045] 일례로서, 도 2를 참조하면, 마찰전기 나노발전기(10)가 3 층(layered)의 마찰전기층(100)으로 구성되는 것으로, 보다 구체적으로 제1 마찰전기층(100a), 제1 마찰전기층(100a) 상에 적층되는 제2 마찰전기층(100b) 및 제2 마찰전기층(100b) 상에 적층되는 제3 마찰전기층(100c)으로 구성되는 경우, 제1 마찰전기층(100a)은 강유전체 복합필름일 수 있으며, 제2 마찰전기층(100b)은 PDMS 필름일 수 있으며, 제3 마찰전기층(100c)는 강유전체 복합필름일 수 있다.

[0047] 일례로서, 도 3을 참조하면, 마찰전기 나노발전기(10)가 4 층(layered)의 마찰전기층(100)으로 구성되는 것으로, 보다 구체적으로 제1 마찰전기층(100a), 제1 마찰전기층(100a) 상에 적층되는 제2 마찰전기층(100b);

제2 마찰전기층(100b) 상에 적층되는 제3 마찰전기층(100c); 및 제3 마찰전기층(100c) 상에 적층되는 제4 마찰전기층(100d)으로 구성되는 경우, 제1 마찰전기층(100a)은 PDMS 필름일 수 있으며, 제2 마찰전기층(100b)은 강유전체 복합필름일 수 있으며, 제3 마찰전기층(100c)은 PDMS 필름일 수 있으며, 제4 마찰전기층(100d)는 강유전체 복합필름일 수 있다.

[0049] 본 발명의 일 실시예에 따른 마찰전기 나노발전기(10)는 2 이상의 마찰전기층(100) 중 최하부층에 해당하는 제1 마찰전기층(100a)은 일면에 대하여 마이크로돔 패턴(110)이 형성된 것일 수 있으며, 제1 마찰전기층(100a)의 마이크로돔 패턴(110)이 형성된 면은 상부를 향하도록 배치되는 것이며, 제1 마찰전기층(100a)의 마이크로돔 패턴(110)이 형성되지 않는 면은 저면을 향하여 배치되며, 전극 기판(300)과 접하도록 배치되는 것일 수 있다.

[0051] 본 발명의 일 실시예에 따른 마찰전기 나노발전기(10)는 각 마찰전기층(100a, 100b, 100c, 100d) 사이에 위치하는 스페이서(200)를 더 포함하는 것일 수 있다. 스페이서(200)를 통하여 적층된 각각의 마찰전기층(100a, 100b, 100c, 100d)의 소정의 간격으로 이격되는 것일 수 있으며, 상기 소정의 간격은 스페이서(200)의 두께($t$)일 수 있다. 이에 따라, 마찰전기층(100)으로서 상기 PDMS 필름과 상기 강유전체 복합필름은 소정의 간격으로 이격되어 배치되는 것일 수 있다. 스페이서(200)의 두께(t)는 0.25 내지 1.45 ㎜일 수 있으며, 바람직하게는 0.55 ㎜일 수 있다.

[0053] 서로 대향하는 전기마찰층(100) 사이에 일정한 거리를 유지하는 스페이서(200)는 순간적인 접촉/분리 지연을 생성하여 다수의 출력 스파이크를 구별한다. 장치의 고유 작동 주파수를 증가시켜 다수의 출력 스파이크를 생성하는 기존의 원리에 비해, 본 발명의 일 실시예에 따른 마찰전기 나노발전기(10)는 단일의 터치(stimulus)로 다수의 출력 스파이크를 생성하는 것이므로 마찰전기 생성 측면에서 보다 효율적이다. 마찰전기 나노발전기(10)의 이러한 장점은 상대적으로 적은 외부 자극으로 시냅스 가중치를 용이하게 하는 효율적인 인공 시냅스 디바이스(artificial synaptic device)를 개발하는 활용될 수 있다.

[0055] 본 발명의 일 실시예에 따라 마찰전기 나노발전기(10)는 전극 기판(300)을 포함하는 것일 수 있으며, 전극 기판(300) 상에 최하층의 마찰전기층(100)인 제1 마찰전기층(100a)이 위치하는 것일 수 있다. 전극 기판(300)은 니켈-구리(Ni/Cu) 복합 전극일 수 있다.

[0057] 일례로서, 도 1을 참조하면, 마찰전기 나노발전기(10)는 전극 기판(300) 상에 배치되며 PDMS 필름으로 구성되는 제1 마찰전기층(100a); 및 제1 마찰전기층(100a) 상에 적층되며 강유전체 복합필름으로 구성되는 제2 마찰전기층(100b)을 포함하는 것이며, 제1 마찰전기층(100a)과 제2 마찰전기층(100b)는 양단에 위치하는 스페이서(200)에 소정의 거리로 이격되는 것일 수 있으며, 상기 소정의 거리는 스페이서(200)의 두께($t$)일 수 있다.

[0059] 일례로서, 도 2를 참조하면, 마찰전기 나노발전기(10)는 전극 기판(300) 상에 배치되며 상기 강유전체 복합필름으로 구성되는 제1 마찰전기층(100a); 제1 마찰전기층(100a) 상에 적층되며 상기 PDMS 필름으로 구성되는 제2 마찰전기층(100b); 및 제2 마찰전기층(100b) 상에 적층되며 상기 강유전체 복합필름으로 구성되는 제3 마찰전기층(100c)을 포함하는 것이며, 제1 마찰전기층(100a)과 제2 마찰전기층(100b)는 양단에 위치하는 스페이서(200)에 소정의 거리로 이격되며, 제2 마찰전기층(100b)과 제3 마찰전기층(100c)는 양단에 위치하는 스페이서(200)에 소정의 거리로 이격되는 것일 수 있으며, 상기 소정의 거리는 스페이서(200)의 두께($t$)일 수 있다.

[0061] 일례로서, 도 3을 참조하면, 마찰전기 나노발전기(10)는 전극 기판(300) 상에 배치되는 제1 마찰전기층(100a); 제1 마찰전기층(100a) 상에 적층되는 제2 마찰전기층(100b); 제2 마찰전기층(100b) 상에 적층되는 제3 마찰전기층(100c); 및 제3 마찰전기층(100c) 상에 적층되는 제4 마찰전기층(100d)을 포함하는 것이며, 제1 마찰전기층(100a)과 제3 마찰전기층(100c)은 상기 PDMS 필름이며, 제2 마찰전기층(100b)과 제4 마찰전기층(100d)은 상기 강유전체 복합필름일 수 있으며, 제1 마찰전기층(100a)과 제2 마찰전기층(100b)는 양단에 위치하는 스페이서

(200)에 소정의 거리로 이격되며, 제2 마찰전기층(100b)과 제3 마찰전기층(100c)는 양단에 위치하는 스페이서(200)에 소정의 거리로 이격되며, 제3 마찰전기층(100c)과 제4 마찰전기층(100d)는 양단에 위치하는 스페이서(200)에 소정의 거리로 이격되는 것일 수 있으며, 상기 소정의 거리는 스페이서(200)의 두께($t$)일 수 있다.

[0063] 본 발명의 일 실시예에 따른 마찰전기 나노발전기(10)는 유기 전기화학 트랜지스터(organic electrochemical transistor; OECT)와 전기적으로 연결되는 것일 수 있으며, 마찰전기 나노발전기(10)에서 발생되는 스파이크(spike) 신호를 상기 유기전기화학 트랜지스터에 전달하는 것일 수 있다.

[0065] 이하, 실시예를 통하여 본 발명을 상세히 설명한다.

[0067] **제조예 1. PDMS 용액의 제조**

[0068] PDMS(Polydimethylsiloxane) 전구체(Sylgard 184® SILICONE ELASTOMER BASE, Dow Corning, US, 액상 전구체)와 경화제(Sylgard 184® SILICONE ELASTOMER CURING AGENT, Dow Corning, US, 액상 경화제)를 10:1의 중량비(w:w)로 혼합하여 혼합액을 제조한 후, 불필요한 기포(air bubble)를 제거하기 위해 진공 건조기에서 혼합액의 가스를 제거하여 PDMS 용액을 제조하였다.

[0070] **제조예 2-1. BTO/PDMS 용액의 제조**

[0071] BTO($BaTiO_3$) 나노입자(평균 직경 ~200 nm, US Research Nanomaterials Inc., US Research Nanomaterials)를 에탄올(ethanol) 4 g에 BTO 나노입자 1 g(1 wt%)를 투입한 후 30분 동안 초음파처리하여 분산시켜 분산액을 제조한다. 분산액은 planetary centrifugal mixer(ARE-310, THINKY, US)를 이용하여 PDMS(Polydimethylsiloxane) 전구체(Sylgard 184® SILICONE ELASTOMER BASE, Dow Corning, US, 액상 전구체) 99 g(99 wt%)와 15분 동안 2000 rpm으로 혼합하고, 5분 동안 2200 rpm으로 탈기하여 BTO/PDMS base 용액을 제조하였다. BTO/PDMS base 용액을 100 ℃에서 밤새(12 시간) 동안 교반하여 에탄올 용매를 증발시킨 후 10:1의 중량비(w:w)로 BTO/PDMS base 용액과 경화제(Sylgard 184® SILICONE ELASTOMER CURING AGENT, Dow Corning, US, 액상 경화제)를 혼합하여 BTO/PDMS 용액을 제조하였다.

[0073] **제조예 2-2. BTO/PDMS 용액의 제조**

[0074] 상기 제조예 2-1과 동일하게 제조하되, BTO 나노입자 5 g(5 wt%)을 투입하여 분산액을 제조하고, 분산액을 PDMS 전구체 95 g(95 wt%)와 혼합하였다.

[0076] **제조예 2-3. BTO/PDMS 용액의 제조**

[0077] 상기 제조예 2-1과 동일하게 제조하되, BTO 나노입자 10 g(10 wt%)을 투입하여 분산액을 제조하고, 분산액을 PDMS 전구체 90 g(90 wt%)와 혼합하였다.

[0079] 도 4를 참조하여, 후술되는 실시예 1에서의 마이크로돔 패턴 PDMS 필름의 제조과정을 설명한다.

[0081] **실시예 1. 마이크로돔 패턴 PDMS 필름(층)의 제조**

[0082] *실시예 1-1. 단면 마이크로돔 패턴 PDMS 필름의 제조*

[0083] 상기 제조예 1에서 제조된 PDMS 용액을 마이크로돔(microdome) 패턴(높이 5 ㎛, 직경(diameter) 10 ㎛, 피치(pitch) 12 ㎛)을 갖는 몰드(mold) 상에 캐스팅 한 후("Casting PDMS onto the micropatterned mold"), 1000 rpm에서 30초 동안 스핀 코팅(spin coating)하고 80 ℃에서 3 시간 동안 경화공정을 진행하였다("Spin coating

& curing PDMS"). 이 후, 몰드에서 필름을 제거하여 한쪽 면(single side)에 대해서만 마이크로 돔(높이 5 ㎛, 직경(diameter) 10 ㎛, 피치(pitch) 12 ㎛) 패턴이 형성된 PDMS 필름(단면 마이크로돔 패턴 PDMS 필름)을 얻었다("Demolding PDMS from the mold").

[0085] *실시예 1-2. 양면 마이크로돔 패턴 PDMS 필름의 제조*

[0086] 상기 제조예 1에서 제조된 PDMS 용액을 마이크로돔(microdome) 패턴(높이 5 ㎛, 직경(diameter) 10 ㎛, 피치(pitch) 12 ㎛)을 갖는 몰드(mold) 상에 캐스팅하고 1000 rpm에서 30초 동안 스핀 코팅(spin coating)한 후, 코팅 면 상에 상기 실시예 1-1의 단면 마이크로돔 패턴 PDMS 필름을 마이크로돔 패턴이 형성되지 않은 면이 위치하도록 적층한 후, 80 ℃에서 3 시간 동안 경화공정을 진행하였다. 이 후, 몰드에서 필름을 제거하여 양면에 마이크로돔(높이 5 ㎛, 직경(diameter) 10 ㎛, 피치(pitch) 12 ㎛) 패턴이 형성된 PDMS 필름(양면 마이크로돔 패턴 PDMS 필름)을 얻었다.("Attaching as-prepared PDMS on the PDMS spin-coated on the micropatterned mold", "Curing & demolding bifacially micropatterned PDMS")

[0088] **실시예 2. 마이크로돔 패턴 BP 필름의 제조**

[0089] *실시예 2-1. 단면 마이크로돔 패턴 BP 필름의 제조*

[0090] 상기 제조예 2-2에서 제조된 BTO/PDMS base 용액(BTO 농도 5 wt%)을 100 É에서 밤새(12 시간) 동안 교반하여 에탄올 용매를 증발시킨 후 10:1의 중량비(w:w)로 BTO/PDMS base 용액과 경화제(Sylgard 184, Dow Corning, US)를 혼합하여 BTO/PDMS 용액을 제조하였다.

[0091] BTO/PDMS 용액을 마이크로돔(microdome) 패턴(높이 5 ㎛, 직경(diameter) 10 ㎛, 피치(pitch) 12 ㎛)을 갖는 몰드(mold) 상에 캐스팅 한 후, 1000 rpm에서 30초 동안 스핀 코팅(spin coating)하고 80 ℃에서 3 시간 동안 경화공정을 진행하였다. 이 후, 몰드에서 필름을 제거하여 한쪽 면(single side)에 대해서만 마이크로 돔(높이 5 ㎛, 직경(diameter) 10 ㎛, 피치(pitch) 12 ㎛) 패턴이 형성된 BP(BTO/PDMS) 필름(단면 마이크로돔 패턴 BP 필름)을 얻었다.

[0093] *실시예 2-2. 양면 마이크로돔 패턴 BP 필름의 제조*

[0094] 상기 제조예 2-2에서 제조된 BTO/PDMS base 용액(BTO 농도 5 wt%)을 100 É에서 밤새(12 시간) 동안 교반하여 에탄올 용매를 증발시킨 후 10:1의 중량비(w:w)로 BTO/PDMS base 용액과 경화제(Sylgard 184, Dow Corning, US)를 혼합하여 BTO/PDMS 용액을 제조하였다. BTO/PDMS 용액을 마이크로돔(microdome) 패턴(높이 5 ㎛, 직경(diameter) 10 ㎛, 피치(pitch) 12 ㎛)을 갖는 몰드(mold) 상에 캐스팅하고 1000 rpm에서 30초 동안 스핀 코팅(spin coating)한 후, 코팅 면 상에 상기 실시예 2-1의 단면 마이크로돔 패턴 BP 필름을 마이크로돔이 패턴이 형성되지 않은 면이 위치하도록 적층한 후, 80 ℃에서 3 시간 동안 경화공정을 진행하였다. 이 후, 몰드에서 필름을 제거하여 양면에 마이크로돔(높이 5 ㎛, 직경(diameter) 10 ㎛, 피치(pitch) 12 ㎛) 패턴이 형성된 BP 필름(양면 마이크로돔 패턴 BP 필름)을 얻었다.

[0096] **실시예 3. 마이크로돔 패턴 FBP 필름의 제조**

[0097] *실시예 3-1. 단면 마이크로돔 패턴 FBP 필름의 제조*

[0098] 상기 실시예 2-1에서 제조된 마이크로돔 BP 필름(BTO 농도 5 wt%)의 마이크로돔 패턴이 형성된 면에 대하여 플라즈마 클리너(plasma cleaner)(Tergeo, PIE Scientific LLC, US)를 사용하여 $O_2$ 플라즈마 처리하여 친수성 그룹을 형성시키고 이후, 양면의 마이크로돔 패턴은 자가조립 단층(SAM) 코팅기(AVC-150, SORONA, SOURNA, SOURNA)를 사용하여 FOTS(1H,1H,2H,2H-perfluorooctyltrichlorosilane)로 코팅하여, 단면에 마이크로돔이 형성된 단면 마이크로돔 패턴 FBP(FOTS/BTO/PDMS) 필름을 얻었다.

[0100] *실시예 3-2. 양면 마이크로돔 패턴 FBP 필름의 제조*

[0101] 상기 실시예 2-2에서 제조된 마이크로돔 BP 필름(BTO 농도 5 wt%)의 양면에 대하여 플라즈마 클리너(plasma cleaner)(Tergeo, PIE Scientific LLC, US)를 사용하여 $O_2$ 플라즈마 처리하여 친수성 그룹을 형성시키고 이후, 양면의 마이크로돔 패턴은 자가조립 단층(SAM) 코팅기(AVC-150, SORONA, SOURNA, SOURNA)를 사용하여 FOTS(1H,1H,2H,2H-perfluorooctyltrichlorosilane)로 코팅하여, 양면에 마이크로돔이 형성된 양면 마이크로돔 패턴 FBP(FOTS/BTO/PDMS) 필름을 얻었다.

[0103] **실시예 4. 다층 마찰전기 나노발전기(Multi-layered TENG) 제작**

[0104] *실시예 4-1. 1층 TENG(1-TENG) 제작*

[0105] 유기 기판 상에서의 Ni/Cu 전극을 준비한 후, Ni/Cu 전극 상에 상기 실시예 3-1에서 제작한 단면 마이크로돔 패턴 FBP 필름(제1 FBP 층)의 마이크로돔 패턴이 상부를 향하도록 배치시킨 1층 TENG(1-TENG)를 제작하였다.

[0107] *실시예 4-2. 2층 TENG(2-TENG) 제작*

[0108] 유기 기판 상에서의 Ni/Cu 전극을 준비한 후, Ni/Cu 전극 상에 상기 실시예 1-1에서 제작한 단면 마이크로돔 패턴 PDMS 필름(제1 PDMS 층)의 마이크로돔 패턴이 상부를 향하도록 배치시킨 후, 단면 마이크로돔 패턴 PDMS 필름(제1 PDMS 층) 상부에 상기 실시예 3-2에서 제작한 양면 마이크로돔 패턴 FBP 필름(제1 FBP 층)을 적층시킨다. 이때, 단면 마이크로돔 패턴 PDMS 필름(제1 PDMS 층)과 마이크로돔 패턴 FBP 필름(제1 FBP 층) 사이에 스페이서(0.55 mm-thick polyimide tape)를 양측에 위치시켜, 단면 마이크로돔 패턴 PDMS 필름(제1 PDMS 층)과 양면 마이크로돔 패턴 FBP 필름(제1 FBP 층) 사이의 거리를 이격시킨다. 이때, 상부층인 양면 마이크로돔 패턴 FBP 필름(제1 FBP 층)을 적층하는 경우 상부층의 양측에 접착테이프를 사용하여 15%의 변형율(strain)로 연장시켜 적층하며, 이를 통하여 연장된 상부층의 장력에 의해 보다 나은 가역적 접촉 및 분리가 가능한 2층 TENG(2-TENG)를 제작하였다(도 4의 "Assembling multi-layered TENG" 참조).

[0110] *실시예 4-3. 3층 TENG(3-TENG) 제작*

[0111] 유기 기판 상에서의 Ni/Cu 전극을 준비한 후, Ni/Cu 전극 상에 상기 실시예 3-1에서 제작한 단면 마이크로돔 패턴 FBP 필름(제1 FBP 층)의 마이크로돔 패턴이 상부를 향하도록 배치시킨 후, 단면 마이크로돔 패턴 FBP 필름(제1 FBP 층) 상부에 상기 실시예 1-2에서 제작한 양면 마이크로돔 패턴 PDMS 필름(제1 PDMS 층)을 적층시키고, 양면 마이크로돔 패턴 PDMS 필름(제1 PDMS 층) 상부에 상기 실시예 3-2에서 제작한 양면 마이크로돔 패턴 FBP 필름(제2 FBP 층)을 적층시킨다. 이때, 단면 마이크로돔 패턴 FBP 필름(제1 FBP 층)과 양면 마이크로돔 패턴 PDMS 필름(제1 PDMS 층) 사이, 양면 마이크로돔 패턴 PDMS 필름(제1 PDMS 층)과 양면 마이크로돔 패턴 FBP 필름(제2 FBP 층) 사이 각각에 스페이서(0.55 mm-thick polyimide tape)를 양측에 위치시켜, PDMS 필름(제1 PDMS 층) 사이, 양면 마이크로돔 패턴 PDMS 필름(제1 PDMS 층)과 양면 마이크로돔 패턴 FBP 필름(제2 FBP 층) 사이의 거리를 이격시킨다. 이때, 상부층에 해당하는 양면 마이크로돔 패턴 PDMS 필름(제1 PDMS 층)과 양면 마이크로돔 패턴 FBP 필름(제2 FBP 층)을 적층하는 경우 상부층의 양측에 접착테이프를 사용하여 15%의 변형율(strain)로 연장시켜 적층하며, 이를 통하여 연장된 상부층의 장력에 의해 보다 나은 가역적 접촉 및 분리가 가능한 3층 TENG(3-TENG)를 제작하였다(도 4의 "Assembling multi-layered TENG" 참조).

[0113] *실시예 4-4. 4층 TENG(4-TENG) 제작*

[0114] 상기 2-TENG(실시예 4-2)의 양면 마이크로돔 패턴 FBP 필름(제1 FBP 층) 상부에 상기 실시예 1-2에서 제작한 양면 마이크로돔 패턴 PDMS 필름(제2 PDMS 층)을 적층시키고, 양면 마이크로돔 패턴 PDMS 필름(제2 PDMS 층) 상부에 실시예 3-2에서 제작한 양면 마이크로돔 패턴 FBP 필름(제2 FBP 층)을 적층시킨다. 이때, 양면 마이크로돔 FBP 필름(제1 FBP 층)과 양면 마이크로돔 패턴 PDMS 필름(제2 PDMS 층) 사이, 양면 마이크로돔 패턴 PDMS 필름(제2 PDMS 층)과 양면 마이크로돔 패턴 FBP 필름(제2 FBP 층) 사이에 각각 스페이서(0.55 mm-thick polyimide tape)를 양측에 위치시켜양면 마이크로돔 FBP 필름(제1 FBP 층)과 양면 마이크로돔 패턴 PDMS 필름(제2 PDMS

층) 사이, 양면 마이크로돔 패턴 PDMS 필름(제2 PDMS 층)과 양면 마이크로돔 패턴 FBP 필름(제2 FBP 층) 사이의 거리를 이격시킨다. 이때, 상부층인 양면 마이크로돔 패턴 PDMS 필름(제2 PDMS 층)과 양면 마이크로돔 패턴 FBP 필름(제2 FBP 층)을 적층하는 경우 상부층의 양측에 접착테이크를 사용하여 15%의 변형율(strain)로 연장시켜 적층하며, 이를 통하여 연장된 상부층의 장력에 의해 보다 나은 가역적 접촉 및 분리가 가능한 4층 TENG(4-TENG)를 제작하였다(도 4의 "Assembling multi-layered TENG" 참조).

[0116] **비교예 1. 2층 TENG(2-TENG) 제작**

[0117] 상기 실시예 4-2와 동일하게 제작하되, 스페이서의 두께를 0.25 mm로 하였다.

[0119] **비교예 2. 2층 TENG(2-TENG) 제작**

[0120] 상기 실시예 4-2와 동일하게 제작하되, 스페이서의 두께를 1 mm로 하였다.

[0122] **비교예 3. 2층 TENG(2-TENG) 제작**

[0123] 상기 실시예 4-2와 동일하게 제작하되, 스페이서의 두께를 1.45 mm로 하였다.

[0125] **비교예 4. 3층 TENG(3-TENG) 제작**

[0126] 상기 2-TENG(실시예 4-2)의 마이크로돔 패턴 FBP 필름(제1 FBP 층) 상부에 상기 실시예 1-2에서 제작한 양면 마이크로돔 패턴 PDMS 필름(제2 PDMS 층) 적층시킨다. 이때, 양면 마이크로돔 패턴 FBP 필름(제1 FBP 층)과 양면 마이크로돔 패턴 PDMS 필름(제2 PDMS 층) 사이에 스페이서(0.55 mm-thick polyimide tape)를 양측에 위치시켜, 마이크로돔 패턴 FBP 필름(제1 FBP 층)과 양면 마이크로돔 패턴 PDMS 필름(제2 PDMS 층) 사이의 거리를 이격시킨다. 이때, 상부층인 양면 마이크로돔 패턴 PDMS 필름(제2 PDMS 층)을 적층하는 경우 상부층의 양측에 접착테이크를 사용하여 15%의 변형율(strain)로 연장시켜 적층하며, 이를 통하여 연장된 상부층의 장력에 의해 보다 나은 가역적 접촉 및 분리가 가능한 PDMS 필름-FBP 필름-PDMS 필름의 순서로 적층되는 3층 TENG(3-TENG)를 제작하였다.

[0128] 상기 실시예 4 및 비교예 4에 따른 마찰전기 나노발전기의 마찰전기층의 적층 순서를 하기 표 1에 정리하였다.

*표 1*

[0129]

| 구분 | 마찰전기 나노발전기 | 마찰전기층 적층 순서 |
|---|---|---|
| 실시예 4-1 | 1-TENG | FBP |
| 실시예 4-2 | 2-TENG | PDMS-FBP |
| 실시예 4-3 | 3-TENG | FBP-PDMS-FBP |
| 실시예 4-4 | 4-TENG | PDMS-FBP-PDMS-FBP |
| 비교예4 | 3-TENG | PDMS-FBP-PDMS |

[0131] **실시예 5. 유기 전기화학 트랜지스터(organic electrochemical transistor; OECT) 제작**

[0132] OECT의 상세한 제작과정은 도 5에 도시하고 설명하였다.

[0133] 도 5를 참조하면, 피라냐(Piranha) 용액($H_2SO_4$ : $H_2O_2$ = 3 : 1(v:v), 90~130 ℃)으로 세정된 Si 웨이퍼 상에 $SiO_2$(100 nm)를 열적으로 성장시킨 후, 50 ㎛간격으로 10 개의 핑거(finger)을 갖는 소스(Source) 및 드레인(Drain) 교차 전극(Interdigitated electrode)(S/D electrode)을 포토리소그래피로 패턴화하였다. Cr/Au(5/50 nm) 전극을 S/D electrode 극으로 e-빔 증착(e-beam evaporation)에 의해 증착된 후 아세톤에서 리프트 오프 공정을 거쳤다. 5 ㎛의 두께를 갖는 parylene C의 2개 층을 코팅하였으며, 전극을 전기적으로 분리시키기 위하

여, 1st Parylene C 층을 Cr/Au 전극의 상부에 코팅하였다. 이후, 1st Parylene C 층 상에 Micro-90(International Products Corporation) 항-접착층(anti-adhesive layer)을 이용하여 2nd parylene C 희생층을 코팅하였다.

[0134] 이후, 1st Parylene C 층 상에 탈이온수로 희석시킨 Micro-90(International Products Corporation) 용액(Micro-90의 농도 0.04 vol%)을 항-접착층(anti-adhesive layer)으로 이용하여 2nd parylene C 희생층을 코팅하였다. 최상단의 parylene C 층(2nd parylene C 희생층)에 $O_2$ 플라즈마 처리 후, parylene C 층을 식각하기 위한 식각 마스크로서 Ti 층(100 nm)을 e-빔에 의하여 증착시켰다. 1000 ㎛의 폭을 갖는 채널의 활성영역을 특정하기 위하여 포토리소그래피를 수행하였다. Ti 층을 식각하기 위하여 식각 마스크로서 감광액(photoresist; AZ nLOF 2035, MicroChemicals)으로 처리하였다. 채널영역과 Cr/Au 전극을 노출시키기 위해 Ti 및 parylene C 층의 반응성 이온 식각(reactive ion etching)을 수행하였으며, 이어서 활성 영역 상의 parylene C 또는 Micro-90 잔류물을 제거하기 위하여, 아세톤, 이소프로판올 및 탈이온수를 이용하여 용매 세척을 수행하였다.

[0135] 이후, poly(3-hexylthiophene-2,5-diyl)(P3HT; regioregular, average Mw=85,000-100,000, Sigma-Aldrich)를 1,2-dichlorobenzene(5 mg/ml) 상에 혼합한 후 2 시간(hr) 동안 60 ℃에서 교반하여, P3HT 용액을 제조하였다. P3HT 용액을 Cr/Au 전극에 200 rpm, 40 초 동안 스핀 코팅한 후, 70 ℃에서 5 분(min) 동안 어닐링하여 용매를 증발시켜 P3HT 채널을 형성하였다.

[0136] poly(vinylidenefluoride-trifluoroethylene)(P(VDF-TrFE), Piezotech) 분말을 N,N-dimethylformamide(DMF, Sigma-Aldrich)에 P(VDF-TrFE)의 농도가 10 wt%)가 되도록 분산시킨 후, 2 시간 동안 60 ℃에서 교반하여 P(VDF-TrFE)/DMF 용액을 제조하였다. 이후 P(VDF-TrFE)/DMF 용액에 5 wt%의 ionic liquid(IL) 1-ethyl-3-methylimidazolium bis(trifluoromethylsulfonyl)imide([EMIM][TFSI], Sigma-Aldrich)을 추가하여 2 시간 동안 60 ℃에서 교반하여 P(VDF-TrFE)/IL/DMF 용액을 제조하였다. 최상단의 parylene C(2nd parylene C 희생층)를 박리하고, P(VDF-TrFE)/IL/DMF 용액을 P3HT 채널의 상부에 2000 rpm, 30 초(s) 동안 게이트 절연층(gate dielectric layer)으로 스핀 코팅하였다. 이후, DMF 용매를 증발시키고 결정성을 향상시키기 위하여 60 ℃에서 30 분(min) 그리고 140 ℃에서 2 시간(hr) 동안 어닐링을 수행하였다. 마지막으로, Pt 게이트 전극을 증착하여 OECT를 완성하였다.

[0138] **측정예.**

[0139] 메모리 트레이닝 과정(memory training process)에서 로봇 손(Hiwonder, China)을 작동시키기 위해, 파이썬(Python) 언어를 사용하여 모든 과정을 제어하였다. 소스미터의 실시간(real-time) 데이터는 노트북(laptop)과 직렬로 연결된 마이크로컨트롤러 유닛(Arduino Uno)으로 전송되었다.

[0140] 샘플(sample)의 형태학적 연구(morphological studies)는 전계 방출 주사 전자 현미경(FE-SEM) (Quanta200, FEG, FEI, US)을 이용하여 특정하였다. 샘플의 화학적 조성 및 결정성(crystallinity)은 각각 X-선 광전자 분광법(XPS)(K-alpha, ThermoFisher, US)과 X-선 회절(XRD)(D8 ADVANCE, Bruker, US)을 이용하여 분석하였다. 접착 강도(adhesive strength)는 텍스터 분석기(TXATM-Precision, YEONJIN S-TECH, South Korea)를 이용하여 측정하였다.

[0142] **실험예. 접촉-분리 거리 및 스페이서 두께 분석**

[0143] 본 발명의 마찰전기 나노발전기(TENG)의 모든 전기 출력 측정은 접촉-분리 모드로 수행하였으며, 접촉면적 1x1 $cm^2$를 갖는 pushing tester (JIPT, JUNIL TECH, South Korea)를 이용하여 서로 다른 인가 압력 하에서 수행하였다. 상기 실시예 4-2에 따른 2-TENG의 접촉-분리 거리(도 6의 "d": 1 mm, 2 mm, 3 mm, 4 mm, 5 mm)에 따른 출력성능 분석을 98 kPa 압력 하에서 수행하여 도 6에 분석결과를 도시하였으며, 상기 실시예 4-2, 비교예 1 내지 3에 따른 2-TENG에 대하여 스페이서 두께(도 6의 (a) 및 도 7의 (b)에서 "$t$")에 따른 출력성능 분석을 98 kPa 압력 하에서 수행하여 도 7(실시예 4-2("0.55 mm"), 비교예 1("0.25 mm"), 비교예 2("1 mm"), 비교예 3("1.45 mm")에 도시하였다. 접촉-분리 거리 및 스페이서 두께를 제어하여 출력 성능을 최적화하였다. 도 6 및 도 7을 참조하면, 최적의 접촉-분리 거리("d") 및 스페이서 두께("$t$")는 2 mm(접촉-분리 거리) 및 0.55 mm(스페이서 두

께)인 것으로 확인되었다. 출력 전하는 하기 [식 (1)]을 사용하여 계산되었으며 도 7의 (a)에 도시하였다.

[0144] [식 (1)]

[0145] $$Q = \int I_{sc} dt$$

[0146] 상기 식 (1)에서, Q는 출력전하(output charge)이며, $I_{sc}$는 단락 전류(short-circuit current), t는 측정시간이다. 단락 전류 밀도(short-circuit current density; Jsc) 및 흥분성 시냅스 후 전류(excitatory post-synaptic current; EPSC)는 소스미터(Model 2450, Keithley, US)를 사용하여 측정하였다. 개방회로전압(open-circuit voltage; Voc)는 오실로스코프(DPO 2022B, Tektronix, US)를 이용하여 기록되하였다. OECT의 전송 및 출력 특성은 반도체 파라미터 분석기(4200-SCS, Keithley, US)를 이용하여 측정하였다. 도 7의 (b)는 스페이서 두께에 따른 유효 접촉 모식도를 도시한 것으로, 적정한 두께의 스페이서(Moderate spacer)에 의하여 유효 접촉 면적(Effective contact area)를 극대화할 수 있다.

[0148] **실험예. 구조 분석**

[0149] 상기 실시예 3-2에서의 BP필름에 대한 FOTS 코팅에 따른 FBP 필름에 대하여 X-선 광전자 분광법(XPS)를 이용하여 분석하였으며, 대표적인 C, F 스펙트럼은 도 8에 도시하였다. C 1s 영역에서, FBP의 C-C, C-O, $CF_2$ 및 $CF_3$ 결합이 각각 284.1, 285.6, 291.4 및 293.6 eV에서 관찰되었다(도 8의 (a)). 또한, F 1s 영역에서, FBP 표면에 $CF_3$, CF 및 $CF_2$를 포함하는 유기 F가 각각 687.9, 688.6 및 689.4 eV에서 검출되었다(도 8의 (b)).

[0150] 상기 실시예 1-2에서의 PDMS 필름("PDMS"), 상기 실시예 2-2에서의 BP 필름("BP"), 상기 실시예 3-2에서의 FBP 필름("FBP")에 대한 X-선 회절(XRD) 결과를 도 9에 도시하였다. 도 9를 참조하면, FOTS 코팅은 결정성 BTO NPs가 화학구조의 변형 없이 비정질(amorphous) PDMS 매트릭스에 균일하게 내포되어 있음을 보여준다. PDMS의 비정질성은 11.8 ° 의 넓은 피크의 출력으로 확인되었다.

[0152] **실험예. 접착 분석**

[0153] PDMS는 기계적, 화학적 특성이 뛰어나 상대층에 대한 대한 가역적 접촉-분리 과정을 용이하게 할 수 있기 때문에 적합한 마찰재료이다. 그러나, PDMS의 부드러운 특성은 접촉-분리 주기(contact-separation cycle) 동안 마찰 층 사이의 부분적인 접착을 초래하여, 결국 마찰층 사이의 완전한 분리를 방해하고, 마찰전기 나노발전기(TENG) 작동 중에 불분명한 접촉/분리 피크를 생성한다. 이러한 문제점을 극복하기 위해 마이크로돔 패턴화된 PDMS 구조를 이용하여 상대층과의 낮은 접착강도를 유도하였다. 상기 실시예 3-2의 양면 마이크로돔 패턴 FBP 필름에 대한 마이크로패턴의 형태는 전계 방출 주사 현미경(FE-SEM)을 이용하여 관찰하였으며, 관찰 결과를 도 10에 도시하였다. 도 10의 (a)는 단면 이미지이며, 도 10의 (b)는 도 10의 (a)의 부분확대 이미지이다. 도 10을 참조하면, 빨간 화살표(red arrows)를 표시되는 부분을 통하여 BTO 나노입자가 도입된 것을 확인할 수 있으며, BTO 나노입자는 응집(aggregation) 없이 균일하게 분포되어 있는 것을 확인할 수 있다.

[0154] 한편, 마이크로패턴이 없는 평면 PDMS 필름은 마찰층의 감쇠 현상(damping phenomenon)을 동반하는 상당한 접착 문제가 발생하기 쉽다. 따라서, 마이크로돔 패턴이 존재하지 않는 평편의 필름과 마이크로돔 패턴화된 필름에 대하여 푸싱 테스터기(pushing tester)와 물성 분석기(texture analyzer)를 이용하여 98 kPa의 압력으로 접착 시험(adhesion test)을 수행하여 도 11에 결과를 도시하였다.

[0155] 도 11의 (a)는 평면의 PDMS 필름(PDMS)과 평면의 BP 필름(BP)으로 구성된 2-TENG에 대하여 접촉 및 분리 과정에 대한 사진 이미지(scale bar: 1 cm)를 도시한 것이며, 도 11의 (a)에서 i 는 Al이 평면의 필름(BP)에 완전히 접촉되었을 때(t = 0 s)이며, 도 11의 (a)에서 ii는 Al이 상향으로 이동하는 때에, 최상부층의 평면 필름(BP)이 끈적임에 따라 Al에 순간적으로 접착되는 것(t = 0.3 s)이며, 도 11의 (a)에서 iii은 잠시후, Al과 평면 필름(BP) 댐핑으로 서로 완전히 분리되는 것(t = 0.6 s)이다. 즉, Al-평면 BP와 BP-PDMS 인터페이스 사이의 접착으로 인해 평면 층이 즉시(0.3초 이내) 분리되지 않은 것을 확인할 수 있으며, 대신에, 의도하지 않은 감쇠 현상과 함께 나중에 분리(0.6초 후)되었다(Fig. S9(a)iii).

[0156] 도 11의 (b)는 도 11의 (a)의 iii단계인 분리(Separation) 과정에서 평면 필름(BP)에서 댐핑 현상을 보이는 $J_{sc}$

를 도시한 것이다.

[0157] 도 11의 (c)는 Al(알루미늄)-평면 PDMS("Al/PDMS"), Al-마이크로돔 패턴화된 PDMS(실시예 1-2)("Al/M-PDMS"), 평면 PDMS-평면 PDMS("PDMS/PDMS") 및 마이크로돔 패턴화된 PDMS(M-PDMS, 실시예 1-2)-마이크로돔 패턴화된 PDMS(실시예 1-2)("M-PDMS/M-PDMS")를 포함한 다양한 마찰전기 쌍 재료를 사용하여 텍스터 분석기를 이용하여 98 kPa 압력 하에서 접착 강도(Adhesive strength)의 측정결과를 도시한 것이다. 도 11의 (c)를 참조하면, "Al/PDMS" 및 "PDMS/ PDMS" 사이의 접착 강도는 각각 6.9 및 3.3 kPa인 반면, "Al/M-PDMS" 및 "M-PDMS/M-PDMS" 사이의 접착 강도는 ~0 kPa임을 확인할 수 있다.

[0159] **비교예 5. BP 1 wt% 필름**

[0160] 상기 실시예 2-1과 동일하게 제조하되, 상기 제조예 2-1에서의 BTO/PDMS 용액을 이용하였다.

[0162] **비교예 6. BP 10 wt% 필름**

[0163] 상기 실시예 2-1과 동일하게 제조하되, 상기 제조예 2-3에서의 BTO/PDMS 용액을 이용하였다.

[0165] **실험예. 계면 분극 실험 분석**

[0166] 2층의 마찰전기 나노발전기(2-TENG)는 접촉 대전과 정전기 유도의 결합을 허용하는 서로 다른 마찰전기 특성을 갖는 두 개의 필름으로 구성된다.

[0167] 상대적인 마찰전기 출력 성능을 최적화하기 위하여, PDMS에 BTO 필러를 도입하여 BTO/PDMS(BP) 복합체 필름을 생성하고, 표면에 FOTS를 코팅하여 FBP 복합 필름(실시예 3)을 제조하였다. 강유전체(ferroelectric) BTO 필러는 Maxwell-Wagner-Sillars(MWS) 계면 분극 효과(interfacial polarization effect)와 누적 전하량을 향상시켜, 마찰전기 출력 성능을 향상시킨다. MWS의 계면 분극 효과에 따르면, BTO 강유전체 필러를 갖는 PDMS 매트릭스와 같은 이종 유전체 복합체는 강유전체 입자의 계면 또는 경계에서 상당한 양의 전하를 축적할 수 있다. 동시에, 유전체 물질의 분극 능력을 나타내는 유전율의 실제 부분과 전하밀도가 모두 향상되어, 높은 $J_{sc}$로 이어진다. 2-TENG에서 추가적은 PDMS 층은 BTO 필러가 추가되고 FOTS가 코팅되어 상대적인 마찰전기 극성 차이를 최대화함에 따라 마찰전기 시리즈에서 보다 많은 마찰전기 음성도를 갖는다.

[0168] 양성 마찰층으로 Al(알루미늄)을 이용하여 마찰대전을 유도하고, 실시예 1-1에 따른 단면 마이크로돔 패턴 PDMS 필름("PDMS" or "BP 0 wt%")), 실시예 2-1에 따른 단면 마이크로돔 패턴 BP 필름("BP 5 wt%" or "BP(5 wt%)"), 실시예 3-1에 따른 단면 마이크로돔 패턴 FBP 필름("FBP(5 wt%)"), 비교예 5에 따른 단면 마이크로돔 패턴 BP 필름("BP 1 wt%"), 비교예 6에 따른 단면 마이크로돔 패턴 BP 필름("BP 10 wt%") 각각의 마이크로돔 패턴이 형성된 면에 대하여 외부 압력 98 kPa로 전류 밀도(Current density) 및 전압(Voltage) 분석을 수행하여, 그 결과를 도 12에 도시하였다.

[0169] 도 12의 (a) 및 (b)는 BTO 나노입자의 농도(0, 1, 5 및 10 wt%)에 따른 단면 마이크로돔 패턴 필름에 대한 전류 밀도(도 12의 (a)) 및 전압(도 12의 (b)) 분석결과를 도시한 것이다.

[0170] 도 12의 (c) 및 (d)는 실시예 1-1에 따른 단면 마이크로돔 패턴 PDMS 필름, 실시예 2-1에 따른 단면 마이크로돔 패턴 BP 필름, 실시예 3-1에 따른 단면 마이크로돔 패턴 FBP 필름에 대한 전류 밀도(도 12의 (c)) 및 전압(도 12의 (d)) 분석결과를 도시한 것이다.

[0171] 단면 마이크로돔 패턴 BP 필름의 Jsc와 Voc는 5 wt% BTO(실시예 2-1)에 대하여 가장 높은 것으로 나타났으며, BTO 중량 농도(0, 1, 5, 10 wt%)는 차이가 있었다(도 12의 (a) 및 (b)). BTO 나노입자(BTO NPs)의 추가는 고분자 복합체에서 효과적인 계면 분극을 유도하여 보다 많은 계면 전하를 축적할 수 있으며, MWS 계면 분극 효과에 따라 마찰전기 성능을 증가시킨다. 그러나, 높은 BTO 농도(10 wt%)(비교예 6)에서 BTO NP의 응집으로 인하여 마찰전기 성능이 저하되어 계면 분극이 감소하였다. 많은 양의 불소(fluorine)를 포함하는 FOTS 분자는 강한 전자 친화성을 나타내며, 높은 마찰전기 출력 성능으로 이어진다. 그 결과, BP를 FOTS 코팅한 FBP 필름(실시예 3-1)의 $J_{sc}$ 및 $V_{oc}$는 FOTS 코팅되지 않는 것보다 높다(도 12의 (c) 및 (d)).

[0172] 도 12의 (e)는 본 발명에서의 마찰전기 재료의 전기적특성 비교를 도식화한 것이다.

[0174] **실험예. 작동 메커니즘 분석**

[0175] 도 13은 실시예 4에 따른 다층 마찰전기 나노발전기(M-TENG)의 개념, 구조 및 적용을 도시한 것이다. M-TENG를 제작하기 위하여, Al 테이프(도 13의 "Al"), 마이크로돔 패턴 PDMS 필름(이하, "PDMS") 및 마이크로돔 패턴 FBP 필름(이하, "FBP")을 전기마찰층으로 이용하였다. 마찰음성(tribonegative) 특성을 갖는 마이크로돔 패턴 PDMS 필름에 대하여 상대적으로 높은 마찰양성(tribopositive) 특성을 나타내는 Al 테이프를 마찰음성 물질 및 전극으로 이용하였다. 다중층 마찰전기 나노발전기(M-TENG)는 스페이서에 의해 분리된 마이크로돔 패턴 PDMS 필름 및 마이크로돔 패턴 FBP 필름으로 번갈아 적층되어 구성된다.

[0176] 1-TENG(실시예 4-1)는 접촉 과정 동안 하나의 스파이크 신호를 생성하고, Al 테이프와 단면 마이크로돔 패턴 FBP 필름(FBP) 사이의 분리 과정 동안 또 다른 반대의 스파이크 신호를 생성한다(도 13의 (a)). 이 두개의 양방향 스파이크(bidirectional spikes)는 접촉-분리 모드를 통한 접촉 대전(contact electrification) 및 정전기 유도(electrostatic induction)의 효과에 기인한다.

[0177] 반면에, 양면 마이크로돔 패턴 FBP 필름(FBP)을 마찰음성 층으로 구성하고 단면 마이크로돔 패턴 PDMS 필름(PDMS)은 마찰양성 층으로 구성한 2-TENG(실시예 4-2)는 접촉 과정 동안에 두-스파이크 신호(two-spike signals)를 생성하고, 해제(분리) 과정 동안에 2개의 반대 스파이크 신호를 생성한다(도 13의 (b)). 따라서, 2-TENG는 한번의 터치로 1-TENG 보다 두 개의 스파이크를 더 생성한다. 2-TNEN의 이러한 추가적인 스파이크 생성은 Al, FBP 및 PDMS 사이의 마찰전기 특성의 순차적인 차이뿐만 아니라, 접촉/분리 지연을 유발하는 층 사이의 스페이서에서 비롯된다.

[0178] 3-TENG(실시예 4-3)은 접촉 과정 동안 3개의 스파이크 신호를 생성하고 해제 과정 중에 3개의 신호를 생성하였다(도 13의 (c)). 따라서, 3-TENG는 총 6개의 스파이크 신호를 생성하며, 이는 1-TENG의 3배나 높은 수치이다. 3-TENG에 의해 생성된 스파이크 수의 증가는 압력과 주파수의 동일한 기계적 자극 하에서 1-TENG에 비해 마찰전기 출력 성능을 향상시킬 뿐만 아니라, 인공 시냅스 디바이스에서 효과적으로 장기 가소성을 유도할 수 있는 더 높은 주파수의 마찰전기 신호를 제공한다. 따라서, 3-TENG를 인공 시냅스 디바이스에 사용하는 경우, 3-TENG로부터 한번의 터치로 생성된 6개의 스파이크는 인간 피부가 외부의 기계적 자극을 감지할 때 발생하는 활동 전위(action potential)에 해당된다. 6개의 스파이크가 전파 브리지 정류기(full-wave bridge rectifier)로 흐르면, 모든 양방향의 스파이크가 시냅스 전 뉴런에서 생성되는 시냅스 전 전위와 유사한 단일 방향(unidirectional) 스파이크로 재배열된다. 이러한 전위는 높은 주파수로 밀집한 자극을 축적하여 OECT(실시예 5)의 게이트로 전달된다. 결과적으로 OECT에서 드레인 전류가 증가하며, 이는 시냅스 후 뉴런에서 흥분성 시냅스 후 전류(excitatory post-synaptic current (EPSC))에 해당된다. 자극이 반복되면, 생성된 EPSC가 촉진되어, 단기 가소성에서 높은 시냅스 가중치를 갖는 장기 가소성으로 효율적으로 전환된다. 따라서, M-TENG는 높은 주파수의 출력 신호가 EPSC를 쉽게 촉진하므로 뉴로모픽 어플리케이션(neuromorphic application)에 효과적으로 사용될 수 있다.

[0180] 실시예 4에 따른 다층 마찰전기 발전기(M-TENG)의 작동 메커니즘은 도 14에 도시하였다. 상기 2층 TENG(2-TENG)(실시예 4-2)에서 작동 메커니즘은 4 단계(stage)로 구분될 수 있다(도 14의 (a)). 마찰양성 알루미늄(Al)이 마찰음성인 최상부층의 양면 마이크로돔 패턴 FBP 필름(FBP)와 접촉하면, 두 표면은 반대의 전하가 되며 전자는 전위를 보상하기 위해 Al에서 외부 회로를 통해 Ni/Cu 전극(Ni/Cu)으로 흘러들어가 $1^{st}$ 스파이크($1^{st}$ spike)가 생성된다(stage ⅰ및 ii). 단계 iii(stage iii)에서, Al이 FBP 층을 더 아래로 밀어서 FBP 층과 단면 마이크로돔 패턴 PDMS 필름(PDMS) 층 사이의 접촉을 유도하면, 두 표면에 반대 전하를 띠게 되며, 전자는 반대 전하를 보상하기 위해 Ni/Cu에서 Al으로 역류하여 $2^{nd}$ 스파이크($2^{nd}$ spike)가 생성된다. 마찬가지로 단계 iv(stage iv) 및 단계 v(stage v)에서는 Al이 완전히 분리될 때 반대 전자 이동이 발생하여 $3^{rd}$ 스파이크($3^{rd}$ spike) 및 $4^{th}$ 스파이크($4^{th}$ spike)를 생성한다. 이러한 4가지 다른 전자 흐름 동작은 $J_{sc}$에서 4가지 다른 양방향의 스파이크를 발생시킨다.

[0181] 상기 3층 TENG(3-TENG)(실시예 4-3)의 작동 메커니즘은 2-TENG(실시예 4-2)의 작동 메커니즘과 유사하며, 6 단

계의 전자 흐름 거동으로 인해 $J_{sc}$에서 6개의 양방향의 스파이크가 발생한다(도 14의 (b)). $1^{st}$ 스파이크($1^{st}$ spike)는 Al이 최상부 FBP 층(first FBP layer)과 접촉하여 두 표면에 반대 전하를 유도하는 단계 i 및 단계 ii에서 생성된다. 단계 iii에서, FBP 층이 PDMS 층으로 밀려 내려감에 따라, FBP 층의 상면에서 음전하(negative charge)가 유지되는 동안, 추가적인 음전하와 양전하(positive charge)가 각각 FBP의 하면과 PDMS 상면에서 새로 생성되어, $2^{nd}$ 스파이크($2^{nd}$ spike)가 생성된다. 단계 iv에서는, 모든 전기마찰층이 완전히 가압되어 서로 접촉하게 되면, 최하부 FBP 층(second FBP layer)과 PDMS 층의 하면이 각각 음전하 및 양전하를 띠게 되고, Al로부터 Ni/Cu 전극으로 전자가 흘러들어가 $3^{rd}$ 스파이크($3^{rd}$ spike)가 생성된다. 해제 과정 동안, 모든 마찰층이 완전히 분리되어 반대 전하 흐름을 유발하고, 3개의 스파이크($4^{th}$ 스파이크($4^{th}$ spike) in stage v, $5^{th}$ 스파이크($5^{th}$ spike) in stage vi, $6^{th}$ 스파이크($6^{th}$ spike) in stage i)를 더 생성한다.

[0183] **실험예. 마찰전기 신호 분석**

[0184] 접촉 쌍 재료(contact pair material)가 마찰전기 신호에 미치는 영향을 조사하기 위해, 2 가지의 3-TENG(실시예 4-3(FBP-PDMS-FBP) 및 비교예 4(PDMS-FBP-PDMS))를 준비하고 9.8 kPa의 압력 하에서 Jsc를 이용하여 이들의 스파이크 패턴을 비교하였으며, 그 결과를 도 15에 도시하였다. 도 15의 파란 점(blue dots)은 다중 스파이크의 피크(peaks)를 나타낸 것이다. PDMS-FBP-PDMS 구조를 갖는 3-TENG(비교예 4)는 접촉 동안 뚜렷한 스파이크를 보이는 반면(도 15의 (a)), FBP-PDMS-FBP 구조를 갖는 3-TENG(실시예 4-3)는 접촉 및 분리 동안 모두에 뚜렷한 스파이크를 보였다(도 15의 (b)). FBP-PDMS-FBP 구조의 뚜렷한 스파이크는 PDMS에 비해 FBP의 우수한 전하 저장 용량(charge storage capacity)에 기인하다. FBP는 BTO 나노입자의 MWS 계면 분극 효과를 통해 보다 많은 전하를 축적할 수 있으며, 이는 개선된 마찰전기 성능으로 이어진다(도 12의 (c) 참조). 이는 FBP가 접촉-분리 과정의 전체 사이클 동안 높은 마찰음성 특성을 유지할 수 있음을 의미한다. 이러한 결과를 바탕으로, FBP를 본 발명에서의 첫번째 접촉 물질로 사용하여 뚜렷한 다수의 스파이크(다중 스파이크)를 생성하였다.

[0185] 다층 마찰전기 나노발전기(M-TENG)는 뚜렷한 다중 스파이크를 생성할 수 있으며, 스파이크의 수는 층의 수(레이어 수) 및 적용된 압력에 따라 달라진다. 마찰 층의 수가 증가되면 전체 마찰전기 출력 성능과 스파이크의 수가 증가할 뿐만 아니라 적용된 압력을 변화시켜 생성된 스파이크의 수를 제어할 수 있다. 도 16a 내지 도 16d는 다양한 인가 압력(0.098 내지 98 kPa)과 2 Hz의 주파수에서 서로 다른 층수(레이어 수)를 갖는 M-TENG(실시예 4-1 내지 4-4)의 $J_{sc}$를 도시한 것이다. 기존의 단일 층(single-layer) TENG와 유사하게, 1-TENG(실시예 4-1)는 FBP와 Al 사이의 마찰전기 상호 작용을 2개의 스파이크(파란점(blue dots)으로 표시)만 생성했다(도 16(a) i 내지 iv). 그러나, 1-TENG(실시예 4-1)와 달리, 2-TENG(실시예 4-2)는 인가되는 압력에 따라 다른 스파이크의 수를 보였다. 2-TENG의 최상부 FBP 층(top FBP layer)와 Al이 0.098 및 0.98 kPa 하에서 접촉하면 $1^{st}$ 접촉/분리 과정 동안 2개의 스파이크가 나타난다(도 16(b) i 및 ii). 9.8 kPa로 인가 압력이 증가함에 따라 $2^{nd}$ 접촉/분리 과정에서 FBP가 PDMS에 접근하면 4개의 스파이크가 나타나기 시작한다(도 16(b) iii). 결과적으로, 24.5 kPa에서 4개의 뚜렷한 스파이크가 생성된다(도 16(b) iv). 유사하게, 3-TENG(실시예 4-3)의 스파이크 수는 인가 압력의 증가에 따라 점진적으로 증가하였다(도 16(c)). 그러나, 다른 경우와 달리, 상이한 인가 압력에서 3-TENG의 $J_{sc}$는 상당한 변화를 보였다. 0.098 kPa에서 상부 PDMS 층과 Al 접촉하면 $1^{st}$ 접촉/분리 과정 동안 2개의 스파이크가 나타난다(도 16(c) i). 0.98 kPa에서 $2^{nd}$ 접촉/분리 과정 동안 FBP가 PDMS와 접촉할 때 4개의 스파이크가 발생한다(도 16(c) ii). 마지막으로, 9.8 및 24.5 kPa 하에서 $3^{rd}$ 접촉/분리 과정 동안 6개의 스파이크가 발생한다(도 16(c) iii 및 iv). 4-TENG(실시예 4-3)의 거동은 도 16(d)에 도시하였다. 초기에, 0.098 kPa에서 Al이 상부 FBP 층과 접촉하면, 2 개의 스파이크가 생성된다(도 16(d) i). 그런 다음, 0.98 kPa에서 최상부 FBP 층(first FBP layer)과 중간 PDMS 층(second PDMS layer) 사이의 접촉을 Al이 유도할 때 4개의 스파이크가 나타난다(도 16(d) ii). 9.8 kPa까지 압력이 더 증가하면 $3^{rd}$ 접촉/분리 과정 동안 6개의 스파이크가 출현한다(도 16(d) iii). 마지막으로, 49 kPa에서 $4^{th}$ 접촉에서 8개의 스파이크가 생성된다(도 16(d) iv). 다양한 인가 압력에서의 단계별 접촉 과정의 추가 디지털 이미지는 도 17(Scale bars: 1 cm)에 도시하였다. 다른 크기의 압력에서 M-TENG의 $J_{sc}$ 및 개방회로전압(Voc)은 도 18(1-TENG(실시예 4-1), 2-TENG(실시예 4-2), 3-TENG(실시예 4-3),

4-TENG(실시예 4-4)) 및 도 19(@ 98 kPa)에 각각 도시하였다.

[0187] **실험예. 성능 분석**

[0188] 도 20a는 심층적인 비교를 위하여 다층 마찰전기 나노발전기(M-TENG)(실시예 4-1 내지 4-4)의 여러 성능 지표를 요약한 것이다. 중요한 성능 지표 중 하나는 출력 전하이며, 이는 식 (1)을 이용하여 마찰전기 성능을 직관적으로 평가하고, 다중 스파이크의 불규칙한 수치를 보상할 수 있다. 도 20a의 (a)는 0.98 kPa 내지 98 kPa 압력 하에서의 출력 전하를 도시한 것이며, 도 20a의 (a)를 참조하면, 0.098 kPa에서의 2-TENG(실시예 4-2), 3-TENG(실시예 4-3) 및 4-TENG(실시예 4-4)의 출력 전하가 1-TENG(실시예 4-1)보다 훨씬 높았다. 이러한 결과는 단일 피크와 다중 피크 사이의 $J_{sc}$ 데이터의 적분 면적(integration area) 차이로 인한 것으로, 다중 피크가 확대되면 전체 적분 면적이 확대되어 출력 전하가 향상된다. 인가 압력과 출력 성능 사이의 상관관계와 관련하여, M-TENG 대부분의 전하는 인가 압력이 증가함에 따라 더 이상 증가하지 않는다. 또한, 4-TENG의 제작은 $J_{sc}$ 및 출력 전하가 현저하게 증가하지 않아 이점이 없었다. 24.5 kPa의 3-TENG에서 7.52 nC의 가장 높은 출력 전하가 관찰되었으며, 한편, 도 20a의 (a)를 참조하면, 3-TENG의 출력 전하 증가율(output charge enhancement magnification)(98 kPa에서 1-TENG의 출력 전하 비율)은 ~ 1.33이었다. 4-TENG의 감소된 출력 성능은 V-Q-x관계와 등가회로의 커패시터에 저장된 총 에너지로 설명될 수 있다.

[0189] 실시예 4에 따른 다중 마찰전기 나노발전기(M-TENG)의 이론적 모델을 보다 잘 이해하기 위해 도 21((a) 및 (b): 1-TENG, (c) 및 (d): 2-TENG, (e) 및 (f): 3-TENG, (g) 및 (h): 4-TENG, 삽도(inset)는 단면 마이크로돔 패턴 PDMS의 단면 SEM 이미지)에 도시하였다.

[0190] 도 21을 참조하면, 관련 식은 다음과 같다.

[0191] [식 S1]

$$I_{sc} = \frac{dQ}{dt} = S\frac{d\sigma}{dt}$$

[0192]

[0193] [식 S2]

$$V_{oc} = \frac{\sigma x(t)}{\varepsilon_0}$$

[0194]

[0195] [식 S3]

$$\sigma = \frac{\varepsilon_0 \varepsilon_r}{d} V_{oc}$$

[0196]

[0197] 식 S1 내지 식 S3에서, Q는 이동전하(transferred charge), S는 표면적(surface area), σ는 전하밀도(surface charge density), $x$는 전기마찰층 사이의 거리(distance), $\varepsilon_0$는 진공 유전상수(vacuum dielectric constant), $\varepsilon_r$은 비유전율(relative permittivity) 및 d는 전기마찰의 두께(thickness)이다.

[0198] 1-TENG(실시예 4-1)에서, 각 영역에서의 전계강도(electric field strength)는 다음과 같다.

[0199] [식 S4]

$$E_{air} = \frac{-\frac{Q}{S}+\sigma(t)}{\varepsilon_0} = -\frac{Q}{S\varepsilon_0} + \frac{\sigma(t)}{\varepsilon_0}$$

[0200]

[0201] [식 S5]

$$E_{FBP} = -\frac{Q}{S\varepsilon_0 \varepsilon_{FBP}}$$

[0202]

[0203] 가우스 이론에 따르면, *V-Q-x* 관계를 갖는 두 전극 사이의 전압은 다음과 같다.

[0204] [식 S6]

$$V_{1-TENG} = E_{FBP}d'_{FBP} + E_{air}x_{air}(t) = -\frac{Q}{S\varepsilon_0}\left(\frac{d'_{FBP}}{\varepsilon_{FBP}} + x_{air}(t)\right) + \frac{\sigma(t)x_{air}(t)}{\varepsilon_0}$$

[0205]

[0206] 식 S6에서 d'는 반구형의 마이크로돔 패턴 필름의 두께이다(도 21의 (a)).

[0207] 2-TENG(실시예 4-2)에서, 1-TENG(실시예 4-1)의 *V-Q-x* 관계에 다음과 같이 반영하였다.

[0208] [식 S7]

$$E_{spacer} = \frac{-\frac{Q}{S}+\sigma_{spacer}(t)}{\varepsilon_0} = -\frac{Q}{S\varepsilon_0} + \frac{\sigma_{spacer}(t)}{\varepsilon_0}$$

[0209]

[0210] [식 S8]

$$E_{PDMS} = -\frac{Q}{S\varepsilon_0\varepsilon_{PDMS}}$$

[0211]

[0212] *V-Q-x* 관계를 갖는 두 전극 사이의 전압은 다음과 같이 설명될 수 있다.

[0213] [식 S9]

$$V_{2-TENG} = E_{PDMS}d'_{PDMS} + E_{spacer}d_{spacer}(t) + E_{FBP}d_{FBP} + E_{air}x_{air}(t) = -\frac{Q}{S\varepsilon_0}\left(\frac{d'_{PDMS}}{\varepsilon_{PDMS}} + \right.$$

$$\left.\frac{d_{FBP}}{\varepsilon_{FBP}} + d_{spacer}(t) + x_{air}(t)\right) + \frac{\sigma_{spacer}(t)d_{spacer}(t)}{\varepsilon_0} + \frac{\sigma(t)x_{air}(t)}{\varepsilon_0}$$

[0214]

[0216] 비슷한 방식으로, 3-TENG(실시예 4-3) 및 4-TENG(실시예 4-4)의 전압은 다음과 같이 계산될 수 있다.

[0217] [식 S10]

$$V_{3-TENG} = E_{FBP}d'_{FBP} + 2E_{spacer}d_{spacer}(t) + E_{PDMS}d_{PDMS} + E_{FBP}d_{FBP} + E_{air}x_{air}(t) =$$

$$-\frac{Q}{S\varepsilon_0}\left(\frac{d'_{FBP}}{\varepsilon_{FBP}} + \frac{d_{PDMS}}{\varepsilon_{PDMS}} + \frac{d_{FBP}}{\varepsilon_{FBP}} + 2d_{spacer}(t) + x_{air}(t)\right) + 2\frac{\sigma_{spacer}(t)d_{spacer}(t)}{\varepsilon_0} + \frac{\sigma(t)x_{air}(t)}{\varepsilon_0}$$

[0218]

[0219] [식 S11]

$$V_{4-TENG} = E_{PDMS}d'_{PDMS} + 2E_{FBP}d_{FBP} + 3E_{spacer}d_{spacer}(t) + E_{PDMS}d_{PDMS} + E_{air}x_{air}(t) =$$

$$-\frac{Q}{S\varepsilon_0}\left(\frac{d'_{PDMS}}{\varepsilon_{PDMS}} + 2\frac{d_{FBP}}{\varepsilon_{FBP}} + \frac{d_{PDMS}}{\varepsilon_{PDMS}} + 3d_{spacer}(t) + x_{air}(t)\right) + 3\frac{\sigma_{spacer}(t)d_{spacer}(t)}{\varepsilon_0} + \frac{\sigma(t)x_{air}(t)}{\varepsilon_0}$$

[0220]

[0222] 1-TENG(실시예 4-1)과 관련하여,

[0223] [식 S12]

$$Q_{sc} = \frac{S\sigma(t)x(t)}{\frac{d'_{FBP}}{\varepsilon_{FBP}} + x(t)} \ (\because V = 0)$$

[0224]

[0225] 반면에 개방회로(open-circuit)의 경우,

[0226] [식 S13]

$$V_{oc} = \frac{\sigma(t)x_{air}(t)}{\varepsilon_0} \ (\because Q = 0)$$

[0227]

[0229] 도 21의 (b)에서와 같이 1-TENG의 등가회로의 커패시터(capacitor)에서, 각 커패시터의 전기용량(capacitance)은 다음과 같이 주어진다.

[0230] [식 S14]

$$C_{air} = C_1 = \frac{Q_{sc}}{V_{oc}} = \frac{\varepsilon_0 S}{\frac{d'_{FBP}}{\varepsilon_{FBP}} + x_{air}(t)}$$

[0231]

[0232] [식 S15]

$$C_{FBP} = C_2 = \frac{\varepsilon_0 \varepsilon_{FBP} S}{d'_{FBP}}$$

[0233]

[0234] 식을 단순화하기 위하여, 유효 두께 상수($d_0$)는 $\sum_i^n \frac{d_i}{\varepsilon_i}$ 와 같이 정의된다.

[0236] 식 S14 및 식 S15를 이용하여, 연속식 전체 전기용량은 다음과 같다.

[0237] [식 S16]

$$C_{total,1-TENG} = \frac{1}{\frac{1}{C_1} + \frac{1}{C_2}} = \frac{1}{\frac{d_0 + x_{air}(t)}{\varepsilon_0 S} + \frac{d_0}{\varepsilon_0 S}} = \frac{\varepsilon_0 S}{2d_0 + x_{air}(t)}$$

[0238]

[0239] 유사하게, PDME의 전기용량, 도 21의 (c) 내지 (h)에서의 2-TENG, 3-TENG 및 4-TENG의 전체 전기용량은 다음과 같다.

[0240] [식 S17]

$$C_{PDMS} = \frac{\varepsilon_0 \varepsilon_{PDMS} S}{d_{PDMS}} = \frac{\varepsilon_0 S}{d_0}$$

[0241]

[0242] [식 S18]

$$C_{spacer} = \frac{\varepsilon_0 \varepsilon_{spacer} S}{d_{spacer}} = \frac{\varepsilon_0 S}{d_{spacer}} \ (\because \varepsilon_{spacer} = 1)$$

[0243]

$$C_{total,2-TENG} = \frac{1}{\frac{1}{C_1} + \frac{1}{C_2} + \frac{1}{C_3} + \frac{1}{C_4}} = \frac{1}{\frac{d_0 + x_{air}(t) + d_{spacer} + 2d_0}{\varepsilon_0 S}} = \frac{\varepsilon_0 S}{3d_0 + d_{spacer} + x_{air}(t)}$$

[0244]

[0245] [식 S19]

$$C_{total,3-TENG} = \frac{1}{\frac{1}{C_1}+\frac{1}{C_2}+\frac{1}{C_3}+\frac{1}{C_4}+\frac{1}{C_5}+\frac{1}{C_6}} = \frac{1}{\frac{d_0+x_{air}(t)+2d_{spacer}+3d_0}{\varepsilon_0 S}} = \frac{\varepsilon_0 S}{4d_0+2d_{spacer}+x_{air}(t)}$$

[0246]

[0247] [식 S20]

$$C_{total,4-TENG} = \frac{1}{\frac{1}{C_1}+\frac{1}{C_2}+\frac{1}{C_3}+\frac{1}{C_4}+\frac{1}{C_5}+\frac{1}{C_6}+\frac{1}{C_7}+\frac{1}{C_8}} = \frac{1}{\frac{d_0+x_{air}(t)+3d_{spacer}+4d_0}{\varepsilon_0 S}} = \frac{\varepsilon_0 S}{5d_0+3d_{spacer}+x_{air}(t)}$$

[0248]

[0250] 다시 정리하면, 커패시터(W)에 저장된 총 에너지에 대한 방정식은 다음과 같다:

[0251] [식 (2)]

$$W = \frac{1}{2}CV_{oc}^2 = \frac{Q^2}{2C} \left(\because V = \frac{Q}{C} \; and \; V_{oc} = 0\right)$$

[0252]

[0253] [식 (3)]

$$W_{1-TENG} = \frac{Q^2}{2\frac{\varepsilon_0 S}{2d_0 + x_{air}(t)}} = \frac{Q^2(2d_0 + x_{air}(t))}{2\varepsilon_0 S}$$

[0254]

[0255] [식 (4)]

$$W_{2-TENG} = \frac{Q^2}{2\frac{\varepsilon_0 S}{3d_0 + d_{spacer} + x_{air}(t)}} = \frac{Q^2(3d_0 + d_{spacer} + x_{air}(t))}{2\varepsilon_0 S}$$

[0256]

[0257] [식 (5)]

$$W_{3-TENG} = \frac{Q^2}{2\frac{\varepsilon_0 S}{4d_0 + 2d_{spacer} + x_{air}(t)}} = \frac{Q^2(4d_0 + 2d_{spacer} + x_{air}(t))}{2\varepsilon_0 S}$$

[0258]

[0259] [식 (6)]

$$W_{4-TENG} = \frac{Q^2}{2\frac{\varepsilon_0 S}{5d_0 + 3d_{spacer} + x_{air}(t)}} = \frac{Q^2(5d_0 + 3d_{spacer} + x_{air}(t))}{2\varepsilon_0 S}$$

[0260]

[0262] 상기 식 (2) 내지 (6)에 따르면, M-TENG의 출력 성능은 층(레이어) 관련 용어(i.e., $d_0$ 및 $d_{spacer}$)의 수에 따라 비례하여 증가해야 한다. 그러나, 실험 결과는 유효 유전율(effective permittivity) 때문에 위의 방정식과 일치하지 않았다.

[0263] [식 (7)]

$$\varepsilon_{eff} = (1-x)\varepsilon_{dielectric} + x\varepsilon_{air}$$

[0264]

[0266] 상기 식 (7)에서 $^{x}$는 공기의 분율이며 $\varepsilon_{air}$는 1이다. 도 22에서와 같이, 1 kHz에서의 유전 상수(dielectric

constants)는 각각 3.77(PDMS) 및 4.26(FBP)이다. M-TENG의 다층 구조에서, 양면의 마이크로돔 전기마찰층의 증가는 두 마이크로돔 층 사이의 공기 갭으로 인한 공기 분율의 증가로 이어진다. 따라서, M-TENG가 일정 수의 층(layer)에 도달하면 공기의 분율이 유전체(dielectric layer)의 전체 분율을 초과하여 매우 낮은 유효 유전율로 이어진다. 더 중요한 것은, 각 층에 축적된 마찰전기 전하가 공기 지배적인 환경(air-dominant circumstance)에서 물 분자와 함께 공기 중으로 소멸될 수 있다. 본 발명에서, 3-TENG는 최고의 출력 성능을 보였다. 도 20a의 (b)는 98 kPa에서 정류기에 의해 정류된 M-TENG의 피크 전압(Rectified $V_{oc}$)을 도시한 것이며, 시간의 경과에 따른 정류기에 의해 정류된 M-TENG의 피크 전압(Rectified $V_{oc}$)을 도 23에 도시하였다. M-TENG 중에서, 3-TENG는 가장 높은 정류 피크 전압(rectified peak voltage)(6.2 V)을 생성하며, 전기 디바이스 어플리케이션의 전원(power source)으로 충분히 높다. 도 20a의 (c)는 0 내지 750 MΩ의 다양한 부하 저항(load resistances, $R_L$)과 98 kPa의 인가 압력 하에서 3-TENG의 출력 전류 밀도(current density, $J_{sc}$), 출력 밀도(power density, P)를 도시하였다. 출력 밀도는 하기 식 (8)에서와 같이 표현될 수 있다.

[0267] [식 (8)]

$$P = I^2 R_L / A$$

[0268]

[0269] 식 (8)에서, $I$는 전류, $R_L$은 부하 저항, $A$는 압력이 작용하는 면적(area)이다.

[0270] 도 20a의 (c)를 참조하면, 출력은 처음에는 점진적으로 증가하여, 100 MΩ의 7.56 μW/cm$^2$에 도달한 후, 부하 저항이 증가함에 따라 감소하였다. 이를 통하여, 도 20b를 참조하면, 5개의 청색 LED(light-emitting diode)에 적용한 결과 5 개의 LED에 불을 켤 수 있도록 충분한 출력 전력을 보였다.

[0271] 도 20a의 (d)는 98 kPa의 인가 압력 하에서 3-TENG의 사이클 안정성(cycle stability)를 도시한 것이다. 도 20a의 (d)를 참조하면, 10,000회 반복되는 전기마찰층 사이의 접촉-분리(contact-separation) 사이클 동안에 일정한 $J_{sc}$를 보이는 것을 확인할 수 있으며, 이는 기계적 변형에도 안정성을 보이는 것이다.

[0272] 도 20a의 (e) 내지 (h)는 0.098 내지 98 kPa 범위의 다양한 인가된 힘(forces)에서 출력전압으로부터 유래된 M-TENG의 민감도를 도시한 것이다. 1-TENG에 적용된 힘의 전체 범위에서 선형이지만, 0.02 V/kPa의 약한 민감도를 보인다(도 20a의 (e)). 반면, M-TENG의 민감도는 낮은 압력 범위(0.098 내지 9.8 kPa)와 높은 압력 범위(9.8 내지 98 kPa) 내의 2 개의 선형 영역으로 나뉜다. 2-TENG는 낮은 압력 범위와 높은 압력 범위에서 각각 0.23 V/kPa 및 0.02 V/kPa의 민감도를 나타내면서, 3-TENG 및 4-TENG는 각각 낮은 압력 범위 및 높은 압력에서, 각각 0.38 V/kPa 및 0.01 V/kPa(3-TENG), 0.19 V/kPa 및 0.02 V/kPa(4-TENG)의 민감도를 나타낸다. 이러한 민감도 영향은 도 20a의 (a)에 표시된 출력 전하와 유사하다.

[0274] **실험예. 인공 시냅스 디바이스**

[0275] 인간의 감각 시스템은 신경 흥분 전달 물질(neurotransmitters)이 시냅스를 따라 전달하는 생체전기화학적 신호(bioelectrochemical signals)를 이용하여 외부의 기계적 자극을 처리하고, 이를 뇌로 전달한다. 기계수용체(mechanoreceptors)는 외부 자극을 감지하고, 이 자극은 감각 정보로 변환되어 단기 기억에 저장된다. 외부 자극에 대한 반복적인 노출을 통해 시냅스 가중치로 알려진 시냅스 전 뉴런(pre-synaptic neuron)과 시냅스 후 뉴런(post-synaptic neuron) 사이의 연결 강도가 높아져, 기억력이 통합되고 단기 기억력이 장기 기억력으로 전환된다. 이러한 시냅스 과정(synaptic process)은 신체 감각 메커니즘(somatosensory mechanism)을 모방하여 계산 처리 및 저전력 소비 메모리 디바이스의 개발에 적용될 수 있다. 인공 시냅스 시스템에서 단일 터치로 다중 스파이크를 생성할 수 있는 M-TENG를 OECT와 통합시킴으로써 에너지 소비가 낮은 뉴로모픽 디바이스(neuromorphic device)를 제작할 수 있다. 구조 설계를 최적화하여 M-TENG의 다중 스파이크의 주파수를 향상시킴으로써 효율적인 자극 중첩(superposition)을 달성하여 생물학적 신경계(biological nervous system)에서 볼 수 있는 기억 훈련을 시뮬레이션 할 수 있다.

[0276] OECT는 EDL(electric double-layer) 형성에 의해서 생성된 큰 커패시턴스(capacitance)로 인한 낮은 작동 전압과 이온의 채널로의 전기화학적 도핑에서 기인하는 비휘발성 메모리(non-volatile memory) 특성 때문에 인공 시냅스 디바이스로 널리 사용되어 왔다. 특히, OECT의 이온 이동은 생물학적 시스템(biological system)의 신경흥분전달물질(neurotransmitter)의 전달과 유사하여 OECT는 인공 신경 시스템을 제작함에 있어 유망한 기술이다.

[0277] 본 발명에서는, 게이트 절연층(dielectric layer)로서 유기 고분자 P(VDF-TrFE)와 이온성 액체 [EMIM][TFSI]의 복합체, 채널로서 P3HT 및 게이트 전극으로 Pt로 구성된 OECT를 제작하였다. P(VDF-TrFE)를 고체 고분자 전해질 기반 게이트 유전체층(dielectric layer)으로 선택한 것은, 이온성 액체와의 호환성 및 오랜 체류 시간을 달성하는 유리한 잔류 분극(remnant polarization) 특성 때문이다. P3HT는 티오펜(thiophene) 백본(backbone)과 알칼 사이드 체인(alkyl side chain)을 갖는 컨쥬게이션 고분자(conjugated polymer)로서, 바이아스 전압(bias voltage)이 인가될 때 이온의 투과성을 허용하고, 전기과학적 도핑 작동을 가능하게 한다. 게이트 전극(즉, Pt)에 음전압이 인가되면, 고체 고분자 전해질(즉, P(VDF-TrFE)/[EMIM][TFSI]) 내 양이온(즉, [EMIM]+)은 게이트 전극/고체 고분자 전해질 계면(interface) 쪽으로 끌어당기는 반면, 음이온(즉, [TFSI]-)은 고체 고분자 전해질/채널 계면으로 이동하고, 각 계면에서 EDL을 형성한다. 보다 높은 음(negative)의 게이트 전압에서, 고체 고분자 전해질/채널 계면에 축적된 음의 이온은 채널(즉, P3HT)에 전기화학적으로 도핑된다. 도핑된 음이온은 전하 중성(neutrality)을 유지하기 위해 소스(source)에서 채널로 보다 많은 홀(hole) 유도하여 드레인 전류(즉, 흥분성 시냅스 후 전류(excitatory postsynaptic current (EPSC))를 향상시킨다. 음의 게이트 바이어스가 제거되면, 확산된 이온이 늦기 고체 고분자 전해질로 다시 이동할 수 없어, EPSC가 점진적으로 붕괴되고 STP 특성을 나타낸다. 그러나, 시냅스 전 스파이크(presynaptic spike)가 반복되면 보다 많은 수의 이온이 P3HT의 결정 영역에 깊이 갇히게 되고, 게이트 바이어스가 제거되어도 이온이 쉽게 확산될 수 없어 LTP 거동을 보인다.

[0278] OECT의 구조는 도 24의 (a)에 도시하였다. OECT 성능은 M-TENG의 통합 없이 처음 특성화하여, 도 24의 (b) 및 (c)에 도시하였으며, $V_d$(드레인 전압)는 -0.05 V로 고정하였다. 다양한 변화율(sweep rate)에서의 -2 V 및 2 V 사이(도 24의 (b)) 및 1680 mV/s의 변화율에서의 다양한 Vg(± 2V to ±6 V) 사이에서 전송 곡선(transfer curve)($I_d$-$V_g$)으로부터 큰 히스테리시스(hysteresis)(i.e., memory effect)가 관찰되었다(도 24의 (c)). 이러한 히스테리시스는 생물학적 시냅스(biological synapse) 기능을 에뮬레이트(emulating) 함에 있어 필수적인 OECT의 비휘활성 특성을 나타낸다.

[0279] 마찰전기 전위 게이팅(potential gating)으로 작동하는 인공 시냅스를 실현하기 위하여, 실시예 4에 따른 M-TENG를 실시예 5에 따른 OECT와 통합하였다(도 25a). 시냅스 전 뉴런으로 작용하는 M-TENG에 의해 제공된 시냅스 전 전위(pre-synaptic potential)(즉, $V_g$)는 OECT(시냅스 후 뉴런)의 게이트를 제어하는데 사용되어, 흥분성 시냅스 후 전류(EPSC)를 나타내는 드레인 전류($I_{ds}$)를 생성했다. 도 25b는 EPSC의 증가세기를 도시한 것이며, 쌍펄스 촉진(Paired-pulse facilitation (PPF))은 신경전달(neurotransmission) 과정에서 시냅스 연결을 촉진하며, 여기서 두번째 EPSC 스파이크(second EPSC spike)($A_2$)는 첫번째 EPSC 스파이크(first EPSC spike)($A_1$)의 영향을 받는다. 시냅스 가중치의 트리거가 될 수 있는 PPF 지수(PPF index)는 3-TENG(실시예 4-3)를 이용하여 조사되었으며, 도 25c에 도시하였다. 도 25c에서, DPSC 스파이크의 짝(couple)에 기초하여, 시간-간격-의존(time-interval-dependent) PPF 지수($A_2/A_1\times100\%$)를 도시하였으며, PPF 지수는 자극 사이의 시간 간격이 짧아짐에 따라 점진적으로 122%까지 증가하였으며, 이는 이러한 plots에 해당하는 핏팅 곡선(fitting curve, y)은 하기 식 (9)와 같이 정리될 수 있다.

[0280] [식 (9)]

[0281] $$y = y_0 + B_1\exp(-\triangle t/\tau_1) + B_2\exp(-\triangle t/\tau_2)$$

[0282] 식 (9)에서, $y_0$는 휴지촉진도(resting facilitation magnitude)이며, $B_1$ 및 $B_2$는 촉진 상수(facilitation constants)이며, $\tau_1$ 및 $\tau_2$는 이완 시간(relaxation times)이며, $\triangle t$는 스파이크 간격 시간(spike interval time)이다. 도 25c에서, $y_0$는 99.39, $\tau_1$는 1.34 s, $\tau_2$는 8.3 s이다.

[0283] 한편, 98 kPa, 2 Hz 및 50 자극 하($V_d$ = -0.05 V)에서 1-TENG(실시예 4-1), 2-TENG(실시예 4-2), 3-TENG(실시예 4-3) 및 4-TENG(실시예 4-4)에 의하여 구동되는 EPSC 변화율($\triangle I/I_0$)을 도 25d에 도시하였으며, 드레인-소스 전압($V_{ds}$)는 -0.05 V로 유지되었다. 도 25d를 참조하면, TENG 층의 추가 증가함에 따라 EPSC가 크게 증가하였으며, 큰 게이트 전압 입력으로 인하여 3-TENG로 EPSC 변화율($\triangle I/I_0$)이 0.9%로 가장 높았다. 일단 자극이 중단되면, EPSC는 일정한 수준으로 유지되고 시냅스 가중치 때문에 LTP를 구축하는 경향이 있었다.

[0284] OECT의 시냅스 거동을 이용하여 로봇 손(Robotic hand)을 작동하고 연상학습(associative learning)이라고 하는 기억 훈련을 시뮬레이션 하였다. 로봇 손은 EPSC가 Arduino 회로에 의해 설정된 특정 임계 값(threshold set)을 초과할 때 활성화되었다. 자세한 회로 구성은 도 26a에 도시하였다. 로봇 손은 움켜지기(grabbing), 부분 펼치기(partial spreading) 및 펼치기(spreading)의 세가지 상태로 각각 표현될 수 있다(도 26b). 도 26의 회로에 3-TENG(실시예 4-3)를 적용하여 약한(5 kPa) 자극과 강한(10 kPa) 자극을 전달하고 엄지(thumb), 검지(index finger), 중지(middle finger), 약지(ring finger), 새끼 손가락(little finger)에 해당하는 EPSC 임계값을 할당하였으며, 이는 각각 5.05, 5.07, 5.09, 5.11 및 5.13 μA였다(도 26c). 첫번째로, 50의 약한 자극을 적용하였을 때, 로봇 손가락의 일부가 접혔다가 실시간으로 뾰족해진 EPSC에 의해 앞뒤로 펴졌으며, 결국 EPSC 낮은 시냅스 가중치(grabbing state)를 갖는 임계값 아래에 있었기 때문에 모든 손가락이 접혔다. 이러한 연상학습 실험은 인간 감각 시스템의 기억 훈련을 모방하는 것을 제한할 수 있다. 훈련 과정 전에, EPSC는 잘못된 자극(poor stimulation)에 잘 반응하지 않아 감각 정보를 쉽게 잊어버릴 수 있다. 훈련 과정에서 외부 자극을 시냅스 반응으로 전환 수 있다. 훈련과정 이후, LTP 형성은 단지 약한 자극과 지속적인 외부의 자극에 의한 사전 흥분 시냅스 반응(previously excited synaptic responses)에 의해 달성될 수 있다. 이러한 프로세스는 시냅스 연결 강도를 강화한다.

[0286] 이상에서 본 발명의 바람직한 실시예에 대하여 상세하게 설명하였지 만 본 발명의 권리범위는 이에 한정되는 것은 아니고 다음의 청구범위에서 정의하고 있는 본 발명의 기본 개념을 이용한 당업자의 여러 변형 및 개량 형태 또한 본 발명의 권리범위에 속하는 것이다.

## *부호의 설명*

[0288] 10 : 마찰전기 나노발전기

100 : 마찰전기층

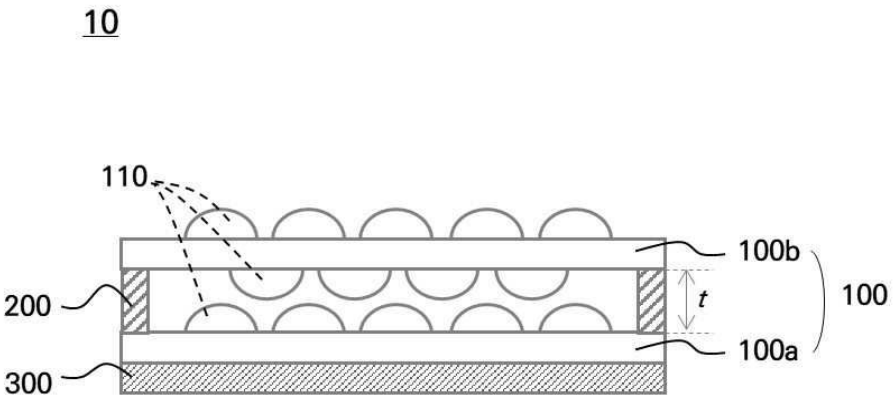
110 : 마이크로돔 패턴

200 : 스페이서

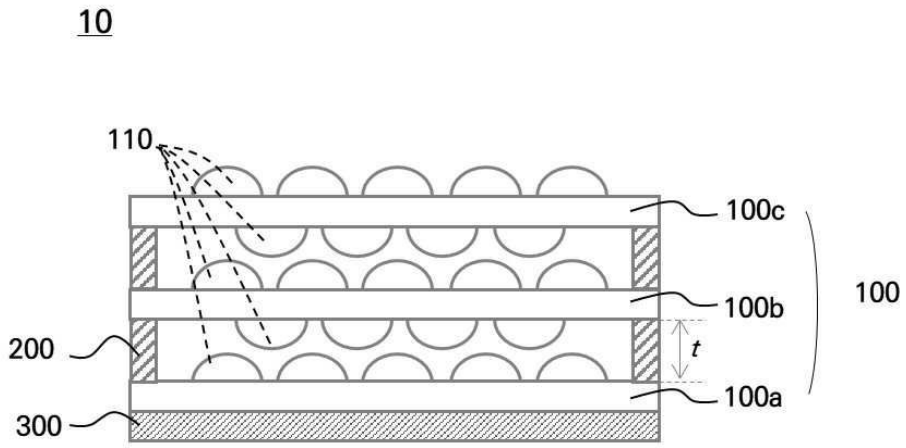
300 : 전극 기판

## *도면*

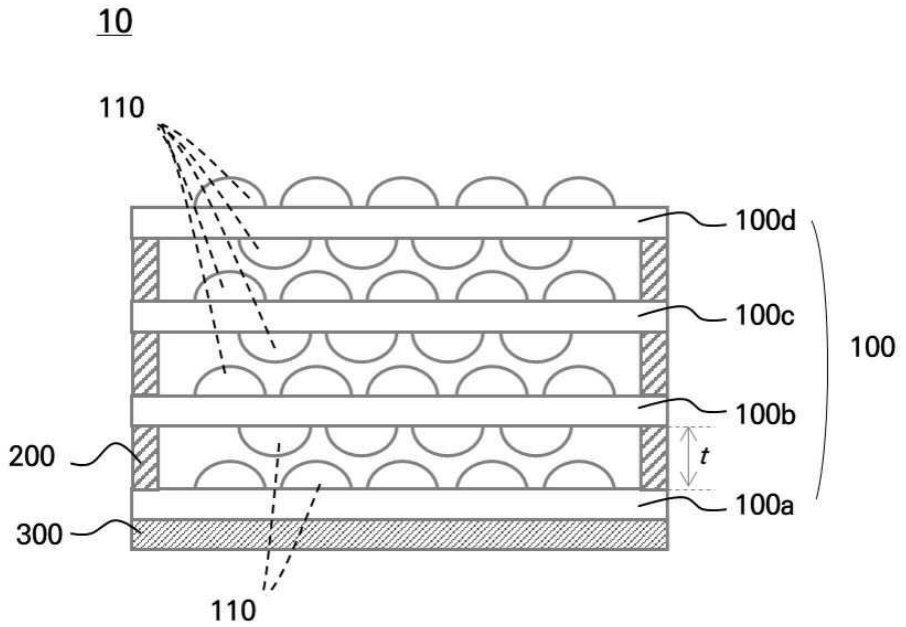
### *도면1*



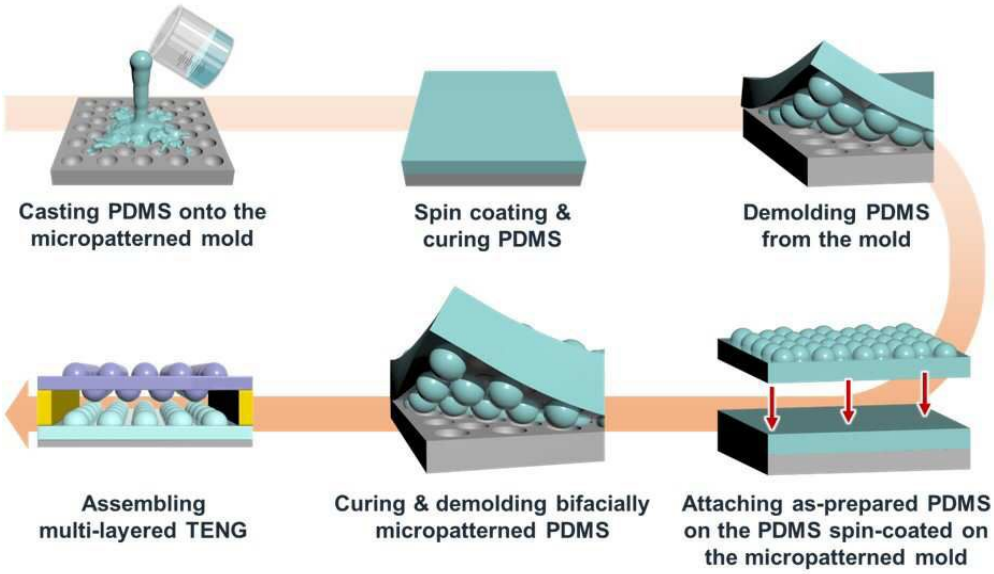
도면2


10
110
100c
100b
100a
100
200
300
t

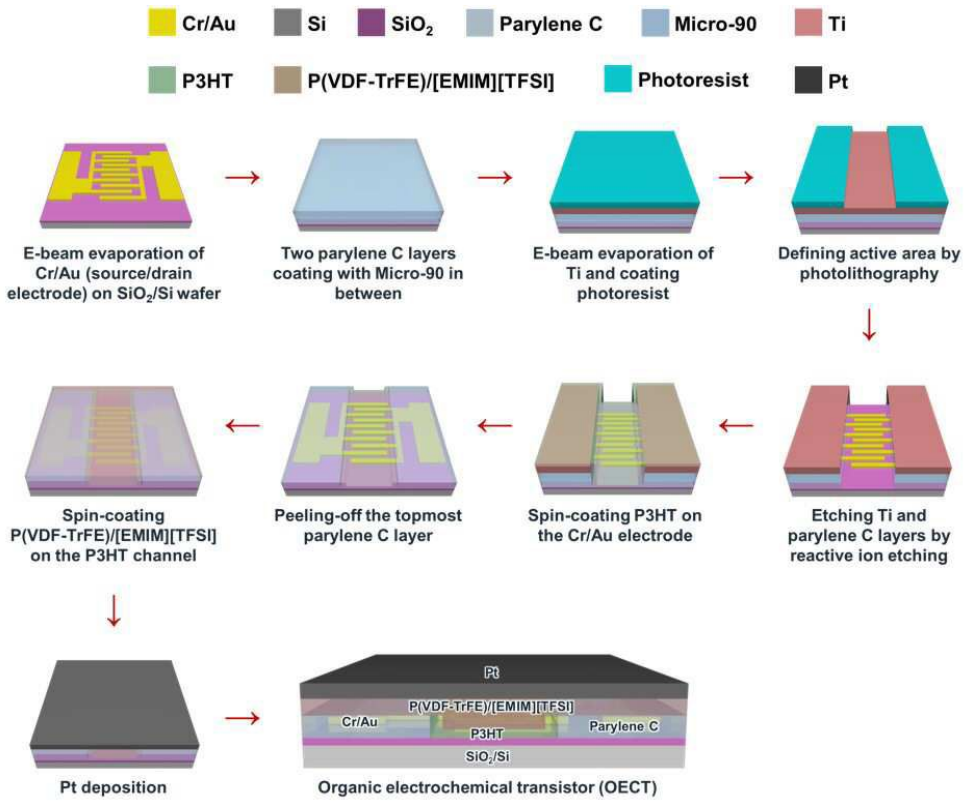
도면3


10
110
100d
100c
100b
100a
100
200
300
t
110

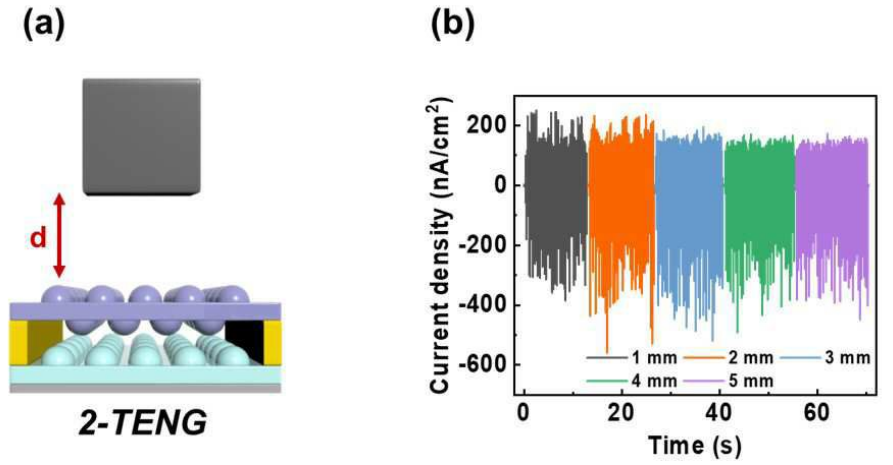
도면4


Casting PDMS onto the micropatterned mold
Spin coating & curing PDMS
Demolding PDMS from the mold
Assembling multi-layered TENG
Curing & demolding bifacially micropatterned PDMS
Attaching as-prepared PDMS on the PDMS spin-coated on the micropatterned mold

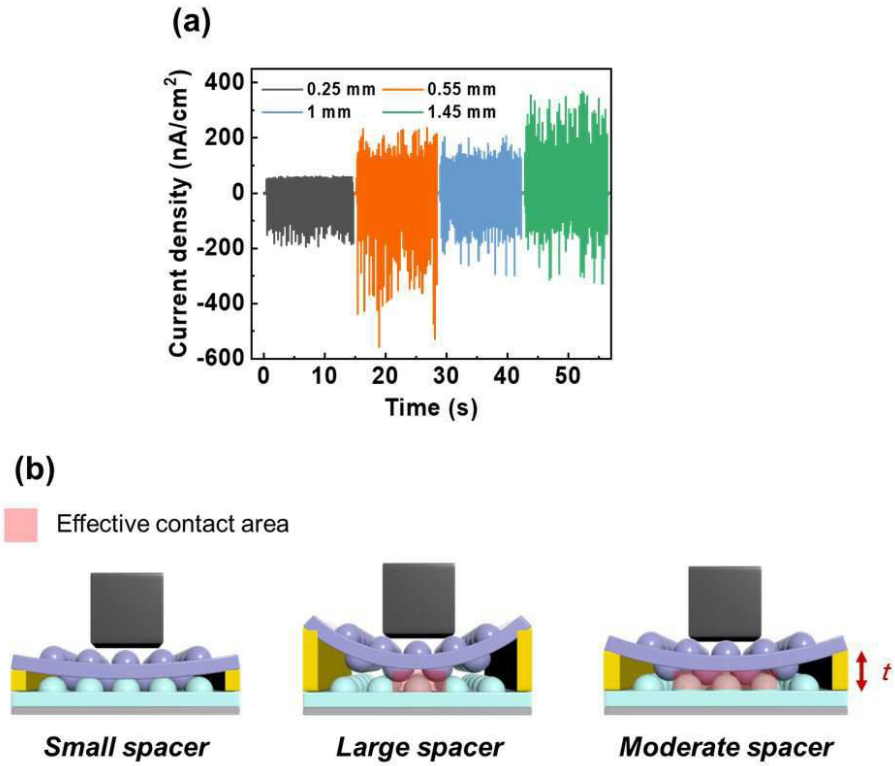
도면5


Cr/Au
Si
SiO2
Parylene C
Micro-90
Ti
P3HT
P(VDF-TrFE)/[EMIM][TFSI]
Photoresist
Pt
E-beam evaporation of Cr/Au (source/drain electrode) on SiO2/Si wafer
Two parylene C layers coating with Micro-90 in between
E-beam evaporation of Ti and coating photoresist
Defining active area by photolithography
Etching Ti and parylene C layers by reactive ion etching
Spin-coating P3HT on the Cr/Au electrode
Peeling-off the topmost parylene C layer
Spin-coating P(VDF-TrFE)/[EMIM][TFSI] on the P3HT channel
Pt deposition
Pt
P(VDF-TrFE)/[EMIM][TFSI]
Cr/Au
P3HT
Parylene C
SiO2/Si
Organic electrochemical transistor (OECT)

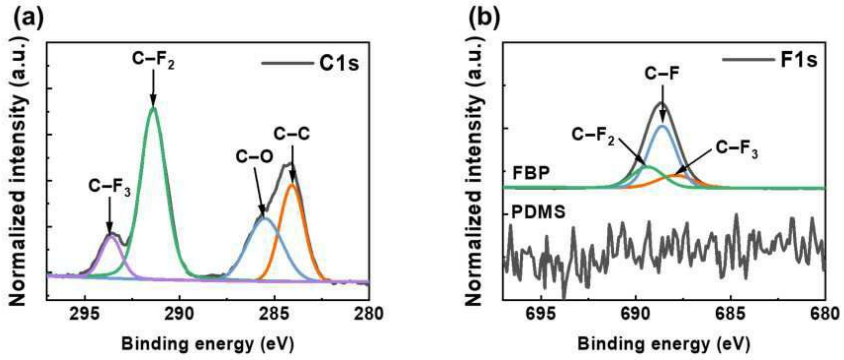
도면6


(a)
d
2-TENG
(b)
Current density (nA/cm²)
200
0
-200
-400
-600
1 mm
2 mm
3 mm
4 mm
5 mm
0
20
40
60
Time (s)

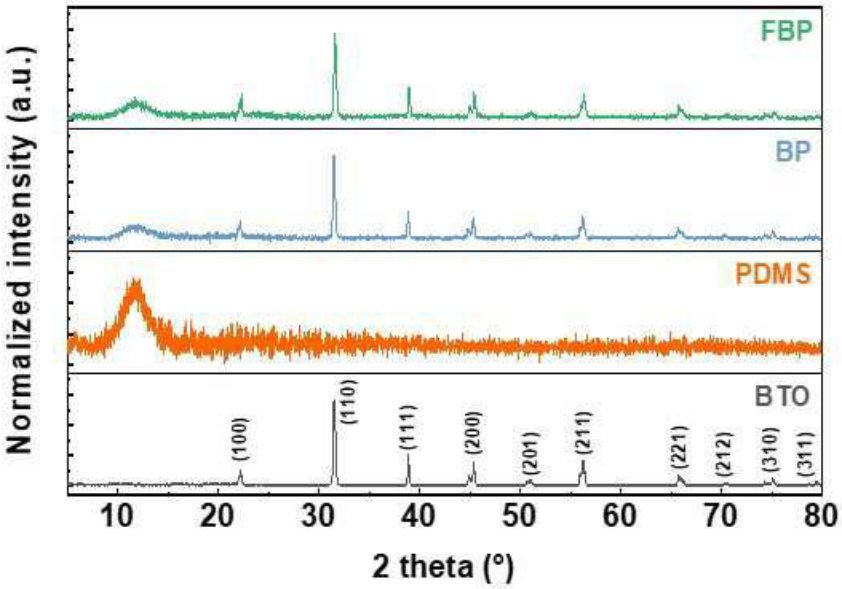
도면7


(a)
Current density (nA/cm²)
400
200
0
-200
-400
-600
0.25 mm
0.55 mm
1 mm
1.45 mm
0
10
20
30
40
50
Time (s)
(b)
Effective contact area
t
Small spacer
Large spacer
Moderate spacer

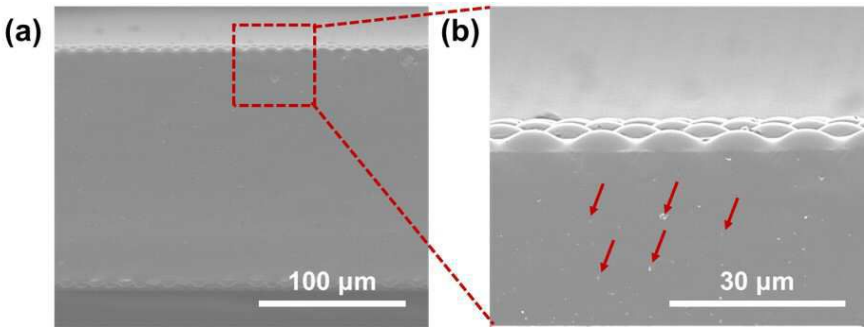
도면8


(a)
C1s
C–F2
C–F3
C–O
C–C
Normalized intensity (a.u.)
295
290
285
280
Binding energy (eV)
(b)
F1s
C–F
C–F2
C–F3
FBP
PDMS
Normalized intensity (a.u.)
695
690
685
680
Binding energy (eV)

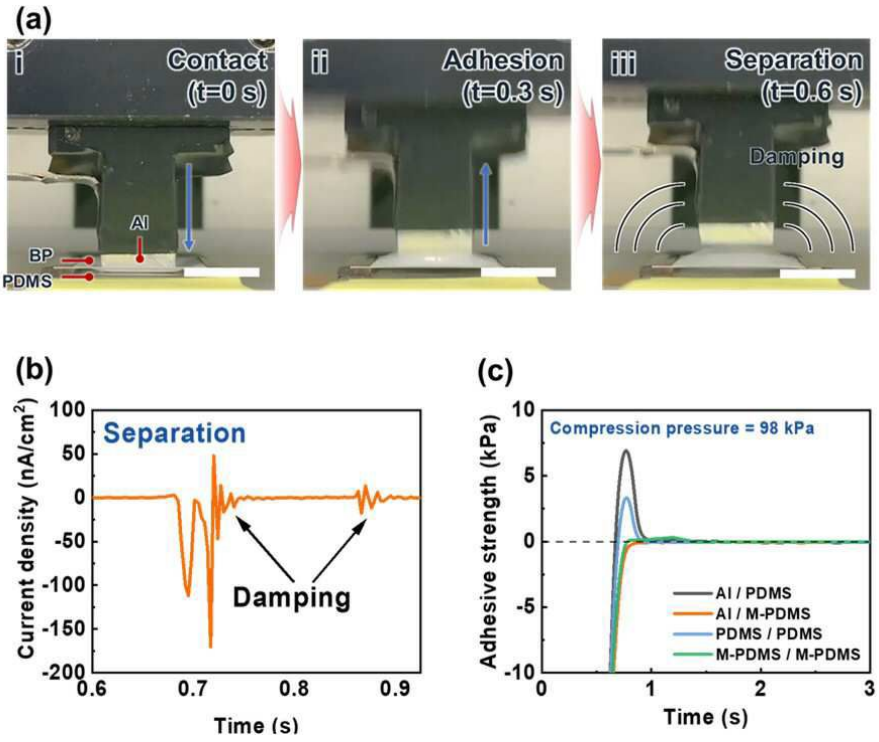
도면9


FBP
BP
PDMS
BTO
(100)
(110)
(111)
(200)
(201)
(211)
(221)
(212)
(310)
(311)
Normalized intensity (a.u.)
10
20
30
40
50
60
70
80
2 theta (°)

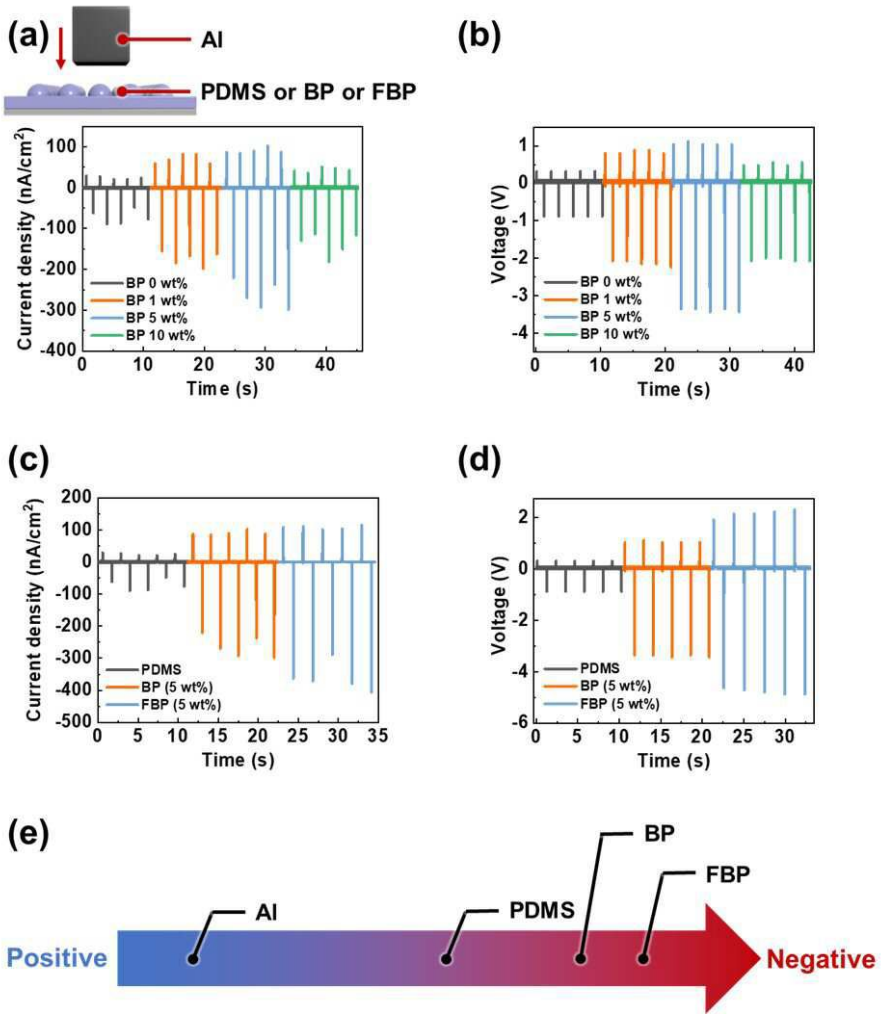
도면10


(a)
(b)
100 μm
30 μm

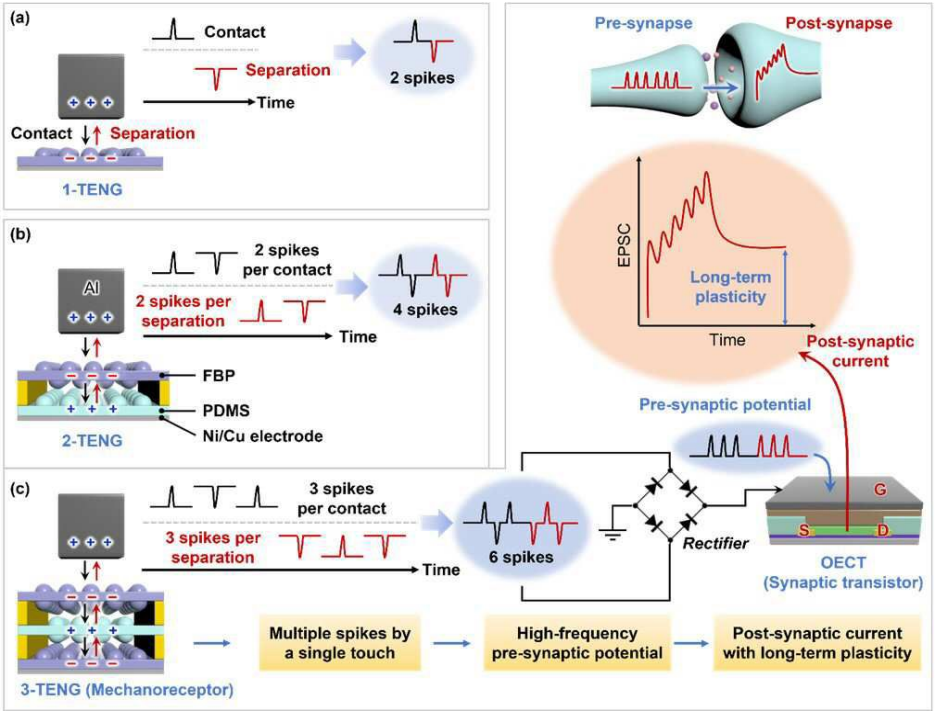
도면11


(a)
i
Contact
(t=0 s)
ii
Adhesion
(t=0.3 s)
iii
Separation
(t=0.6 s)
Damping
Al
BP
PDMS
(b)
Separation
Damping
Current density (nA/cm²)
100
50
0
-50
-100
-150
-200
0.6
0.7
0.8
0.9
Time (s)
(c)
Compression pressure = 98 kPa
Adhesive strength (kPa)
10
5
0
-5
-10
0
1
2
3
Time (s)
Al / PDMS
Al / M-PDMS
PDMS / PDMS
M-PDMS / M-PDMS

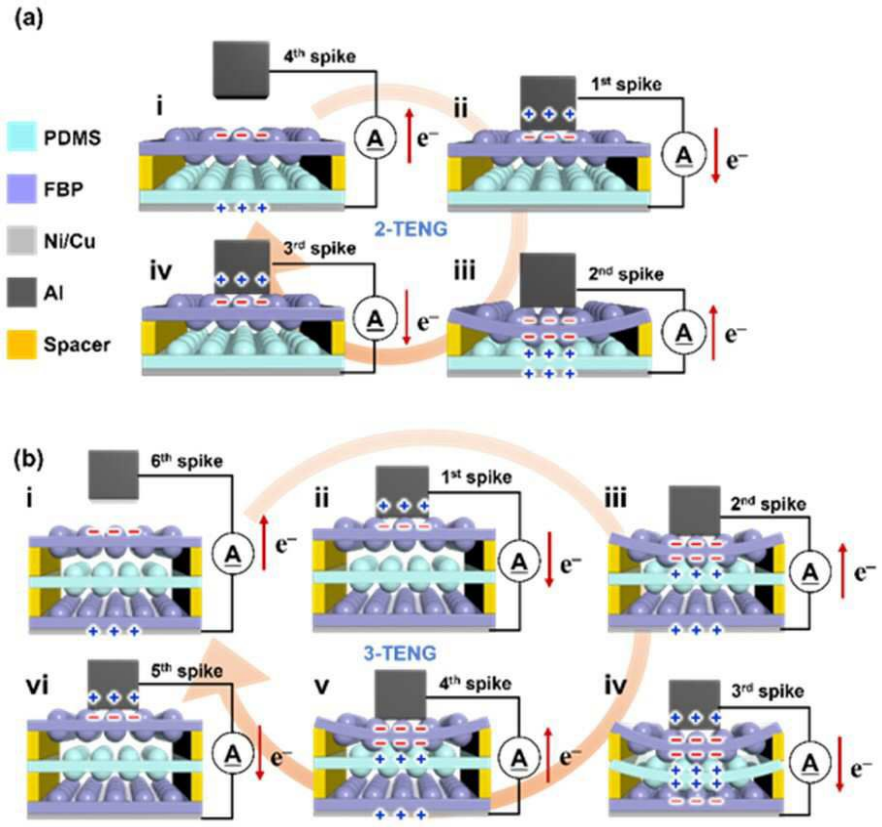
도면12


(a)
Al
PDMS or BP or FBP
Current density (nA/cm²)
Time (s)
BP 0 wt%
BP 1 wt%
BP 5 wt%
BP 10 wt%
(b)
Voltage (V)
Time (s)
BP 0 wt%
BP 1 wt%
BP 5 wt%
BP 10 wt%
(c)
Current density (nA/cm²)
Time (s)
PDMS
BP (5 wt%)
FBP (5 wt%)
(d)
Voltage (V)
Time (s)
PDMS
BP (5 wt%)
FBP (5 wt%)
(e)
Positive
Al
PDMS
BP
FBP
Negative

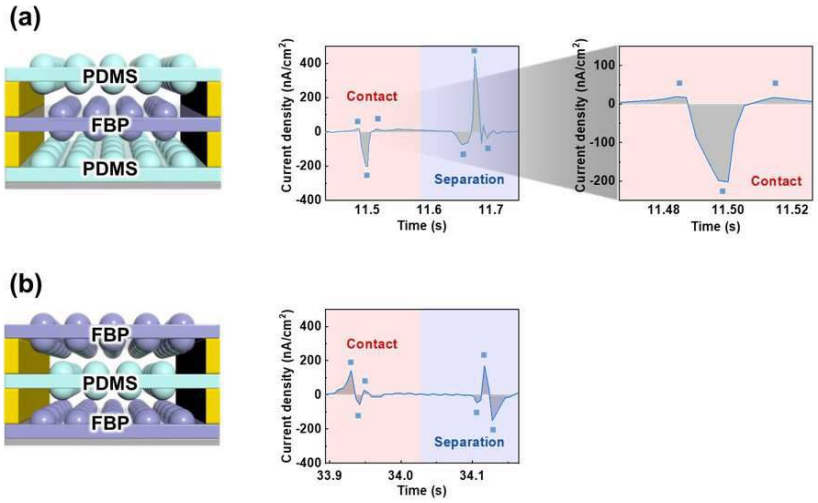
도면13


(a)
Contact
Separation
Time
2 spikes
Contact
Separation
1-TENG
(b)
2 spikes per contact
2 spikes per separation
Time
4 spikes
Al
FBP
PDMS
Ni/Cu electrode
2-TENG
(c)
3 spikes per contact
3 spikes per separation
Time
6 spikes
3-TENG (Mechanoreceptor)
Multiple spikes by a single touch
High-frequency pre-synaptic potential
Post-synaptic current with long-term plasticity
Pre-synapse
Post-synapse
EPSC
Long-term plasticity
Time
Post-synaptic current
Pre-synaptic potential
Rectifier
G
S
D
OECT
(Synaptic transistor)

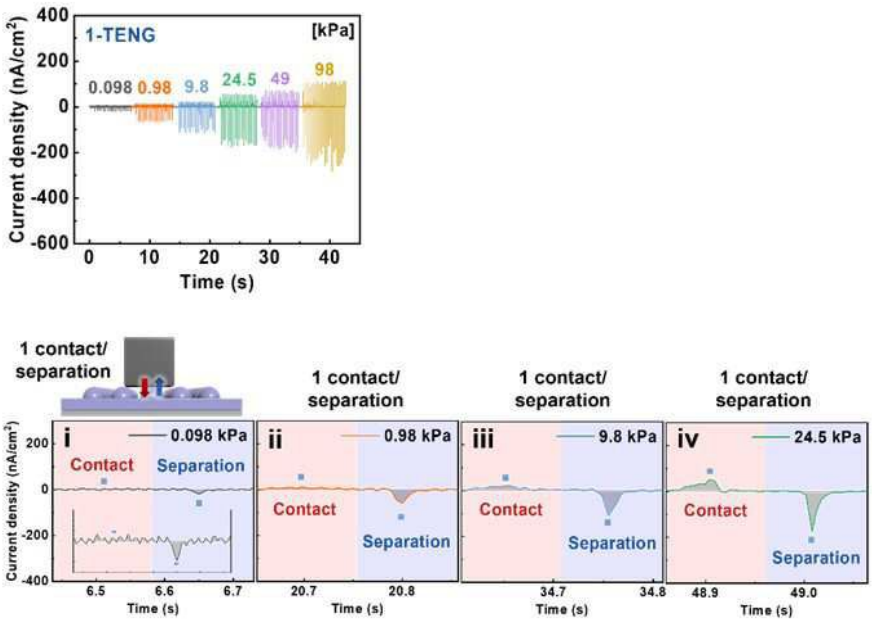
도면14


(a)
PDMS
FBP
Ni/Cu
Al
Spacer
4th spike
1st spike
3rd spike
2nd spike
2-TENG
(b)
6th spike
1st spike
2nd spike
5th spike
4th spike
3rd spike
3-TENG

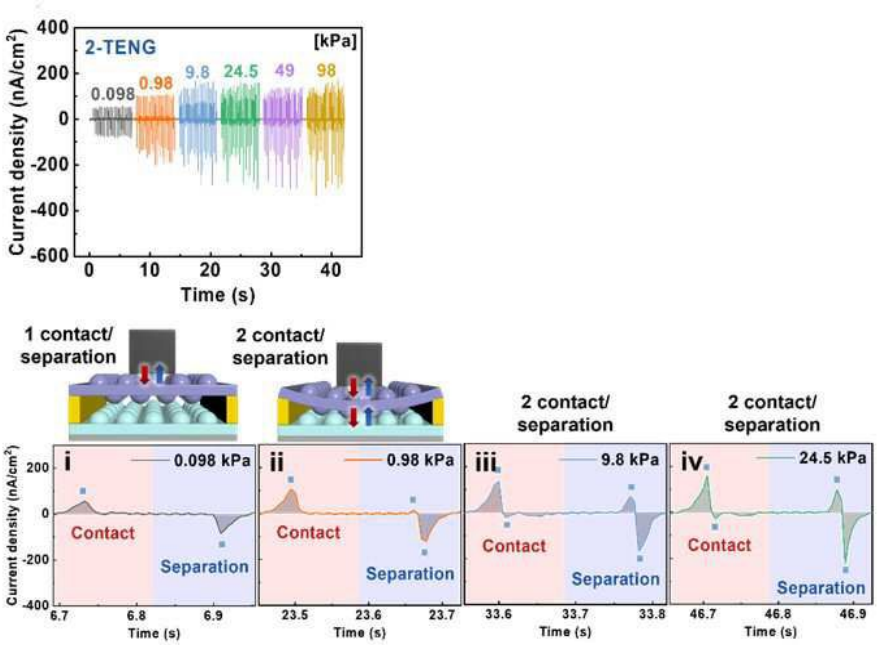
도면15


(a)
PDMS
FBP
PDMS
Current density (nA/cm²)
Contact
Separation
Time (s)
(b)
FBP
PDMS
FBP

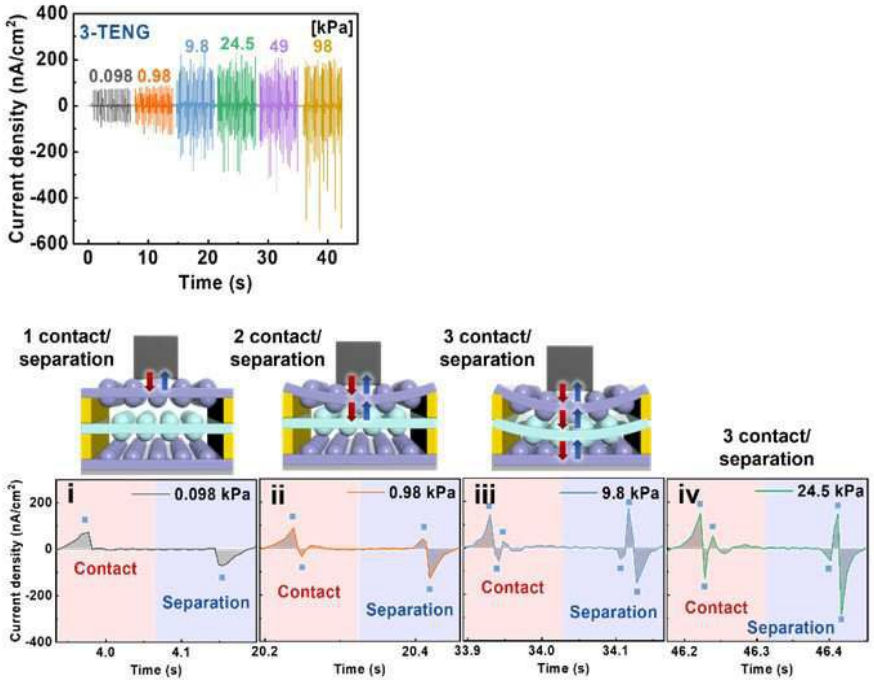
도면16a


1-TENG
[kPa]
0.098
0.98
9.8
24.5
49
98
Current density (nA/cm²)
Time (s)
1 contact/ separation
i
0.098 kPa
ii
0.98 kPa
iii
9.8 kPa
iv
24.5 kPa
Contact
Separation

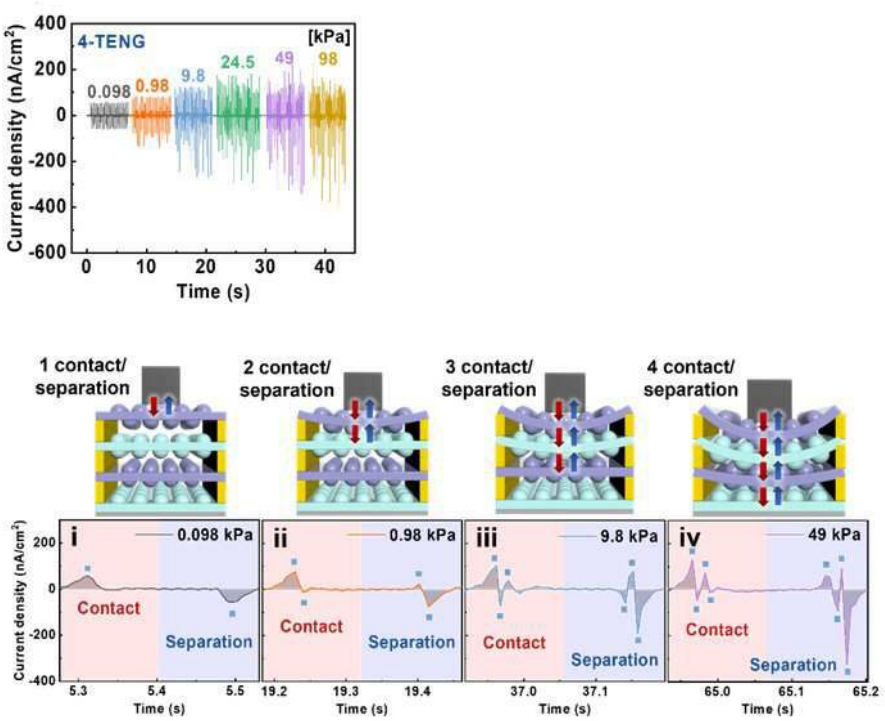
도면16b


2-TENG
[kPa]
0.098
0.98
9.8
24.5
49
98
Current density (nA/cm²)
Time (s)
1 contact/ separation
2 contact/ separation
2 contact/ separation
2 contact/ separation
i
0.098 kPa
ii
0.98 kPa
iii
9.8 kPa
iv
24.5 kPa
Contact
Separation
Time (s)

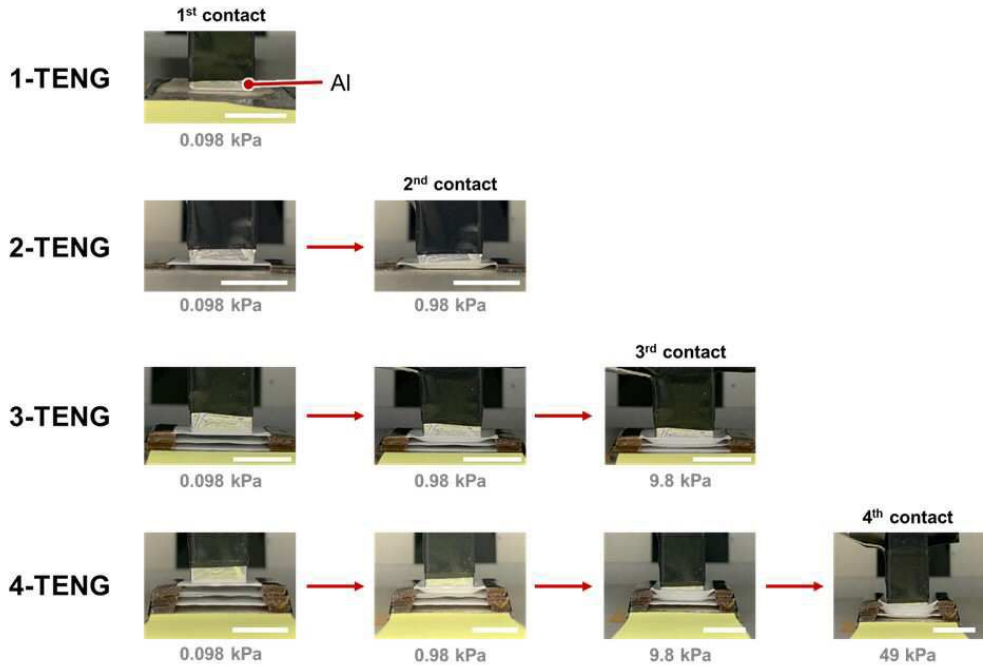
도면16c


3-TENG
[kPa]
0.098
0.98
9.8
24.5
49
98
Current density (nA/cm²)
Time (s)
1 contact/ separation
2 contact/ separation
3 contact/ separation
3 contact/ separation
i
0.098 kPa
ii
0.98 kPa
iii
9.8 kPa
iv
24.5 kPa
Contact
Separation
Time (s)

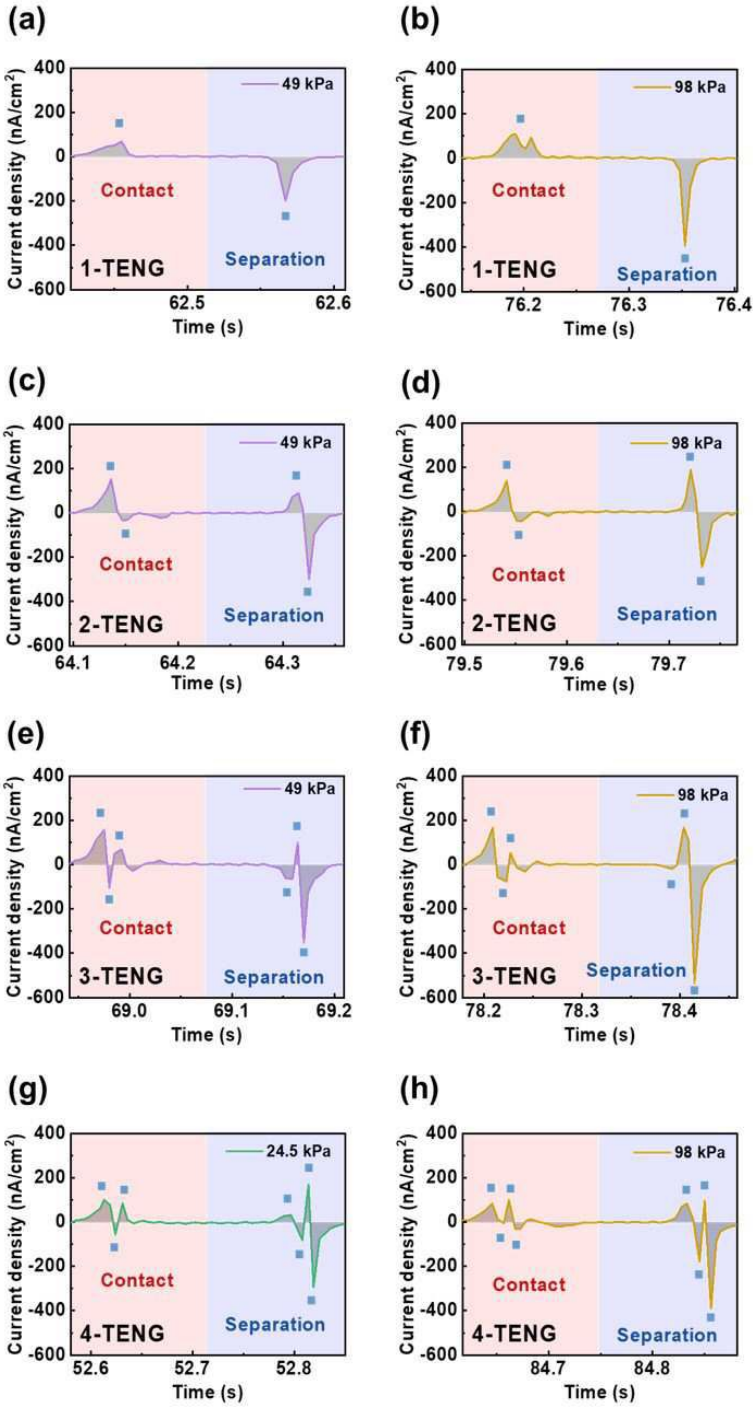
도면16d


4-TENG
[kPa]
0.098
0.98
9.8
24.5
49
98
Current density (nA/cm²)
Time (s)
1 contact/ separation
2 contact/ separation
3 contact/ separation
4 contact/ separation
i
0.098 kPa
ii
0.98 kPa
iii
9.8 kPa
iv
49 kPa
Contact
Separation
Time (s)

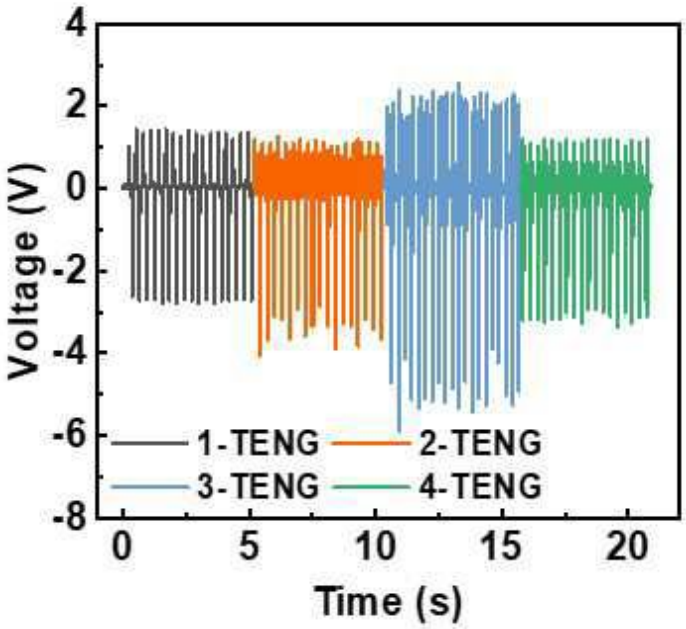
도면17


1st contact
1-TENG
Al
0.098 kPa
2nd contact
2-TENG
0.098 kPa
0.98 kPa
3rd contact
3-TENG
0.098 kPa
0.98 kPa
9.8 kPa
4th contact
4-TENG
0.098 kPa
0.98 kPa
9.8 kPa
49 kPa

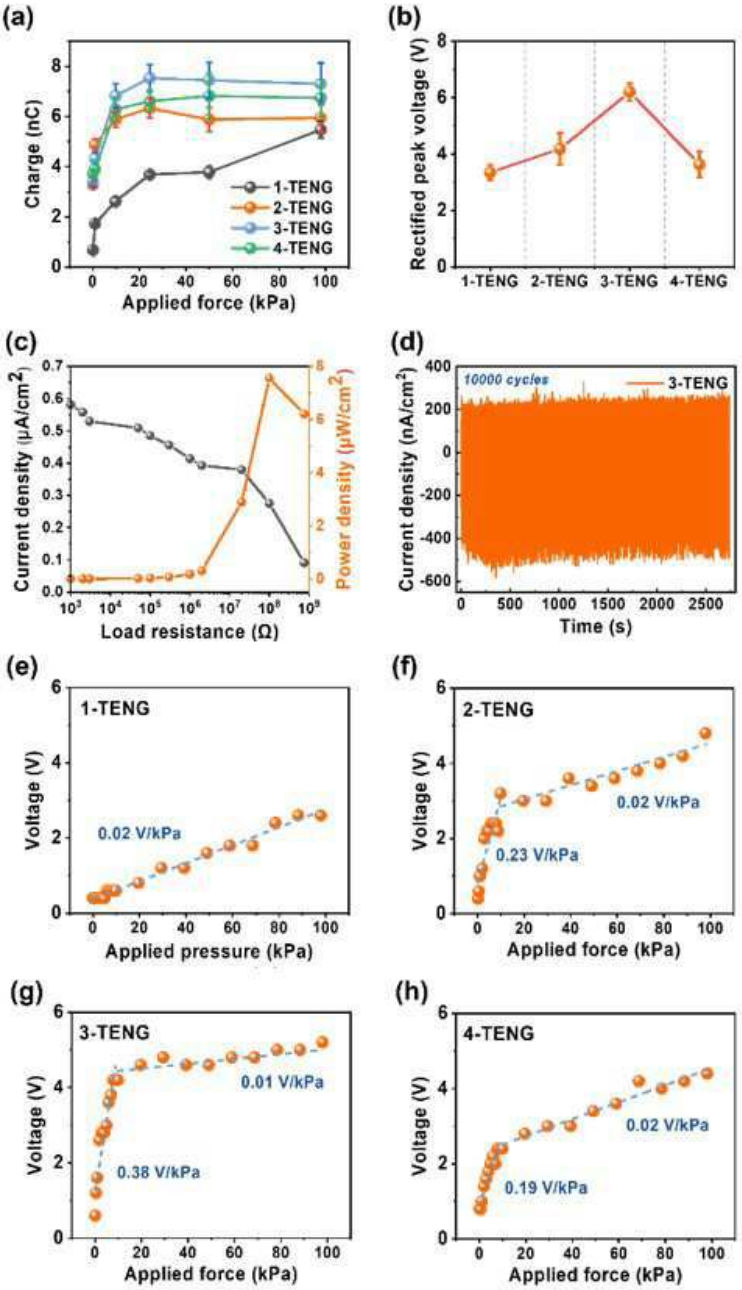
도면18


(a)
49 kPa
Contact
Separation
1-TENG
Current density (nA/cm²)
Time (s)
(b)
98 kPa
Contact
Separation
1-TENG
Current density (nA/cm²)
Time (s)
(c)
49 kPa
Contact
Separation
2-TENG
Current density (nA/cm²)
Time (s)
(d)
98 kPa
Contact
Separation
2-TENG
Current density (nA/cm²)
Time (s)
(e)
49 kPa
Contact
Separation
3-TENG
Current density (nA/cm²)
Time (s)
(f)
98 kPa
Contact
Separation
3-TENG
Current density (nA/cm²)
Time (s)
(g)
24.5 kPa
Contact
Separation
4-TENG
Current density (nA/cm²)
Time (s)
(h)
98 kPa
Contact
Separation
4-TENG
Current density (nA/cm²)
Time (s)

도면19



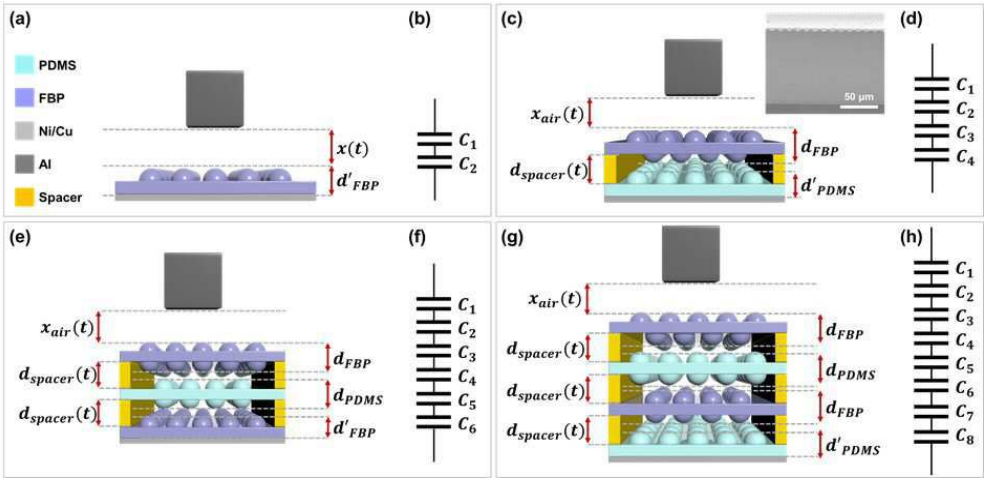
도면20a


(a)
Charge (nC)
Applied force (kPa)
1-TENG
2-TENG
3-TENG
4-TENG
(b)
Rectified peak voltage (V)
1-TENG 2-TENG 3-TENG 4-TENG
(c)
Current density (μA/cm²)
Power density (μW/cm²)
Load resistance (Ω)
(d)
10000 cycles
3-TENG
Current density (nA/cm²)
Time (s)
(e)
1-TENG
0.02 V/kPa
Voltage (V)
Applied pressure (kPa)
(f)
2-TENG
0.02 V/kPa
0.23 V/kPa
Voltage (V)
Applied force (kPa)
(g)
3-TENG
0.01 V/kPa
0.38 V/kPa
Voltage (V)
Applied force (kPa)
(h)
4-TENG
0.02 V/kPa
0.19 V/kPa
Voltage (V)
Applied force (kPa)

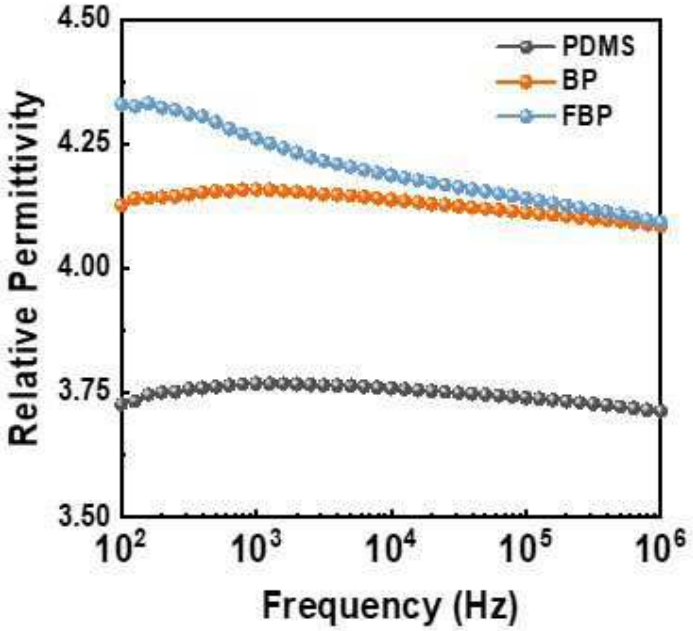
도면20b



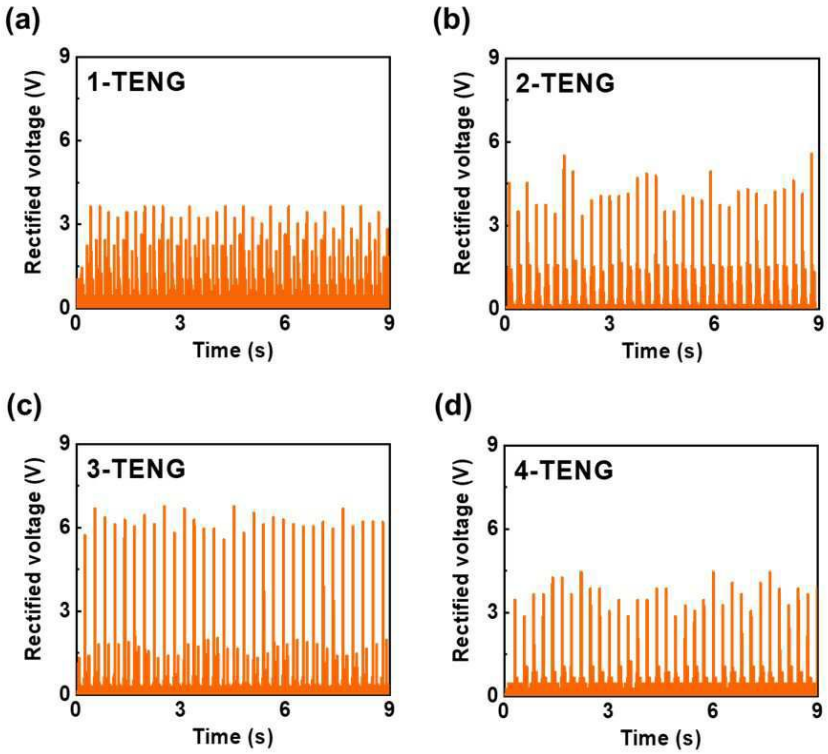
도면21


(a)
(b)
(c)
(d)
PDMS
FBP
Ni/Cu
Al
Spacer
$x(t)$
$d'_{FBP}$
$C_1$
$C_2$
$x_{air}(t)$
$d_{spacer}(t)$
$d_{FBP}$
$d'_{PDMS}$
50 μm
$C_3$
$C_4$
(e)
(f)
(g)
(h)
$d_{PDMS}$
$C_5$
$C_6$
$C_7$
$C_8$

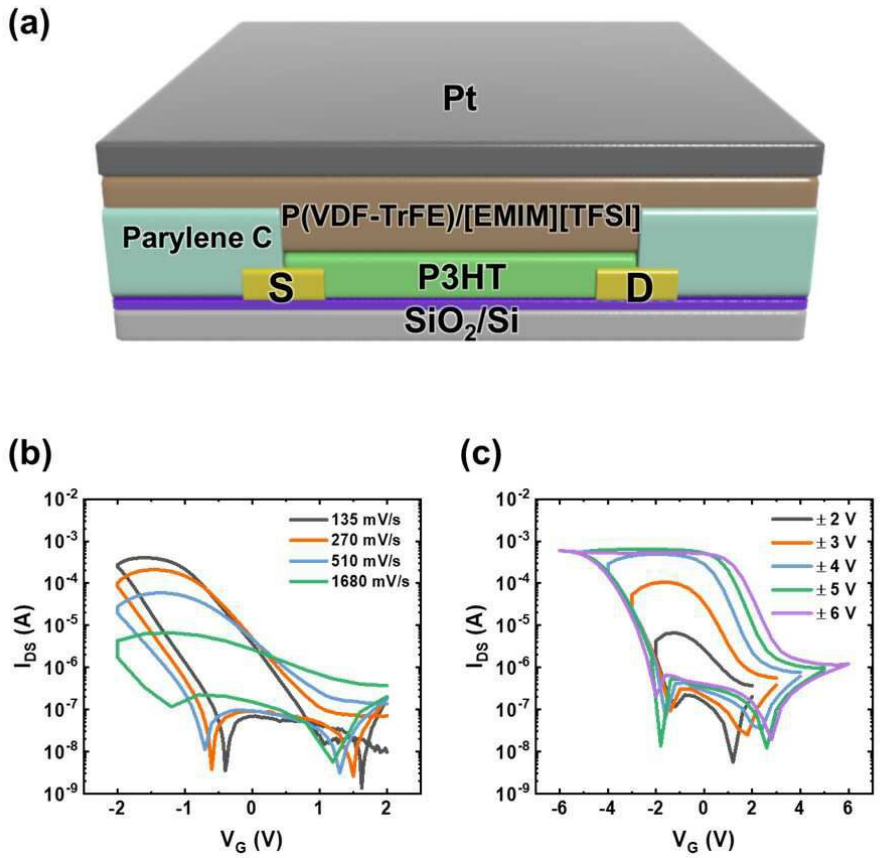
도면22


PDMS
BP
FBP
Relative Permittivity
4.50
4.25
4.00
3.75
3.50
$10^2$
$10^3$
$10^4$
$10^5$
$10^6$
Frequency (Hz)

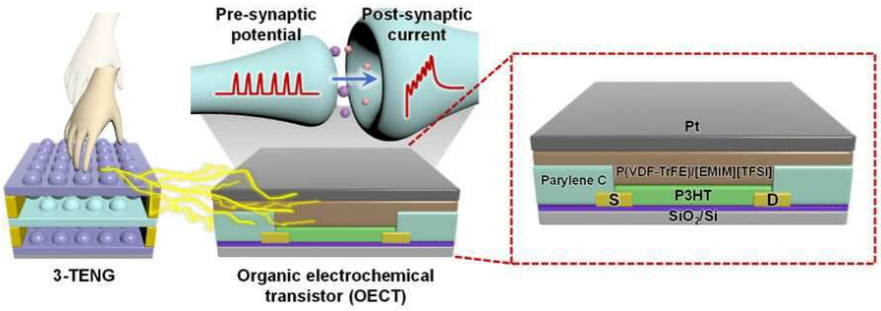
도면23


(a)
1-TENG
(b)
2-TENG
(c)
3-TENG
(d)
4-TENG
Rectified voltage (V)
Time (s)
0
3
6
9

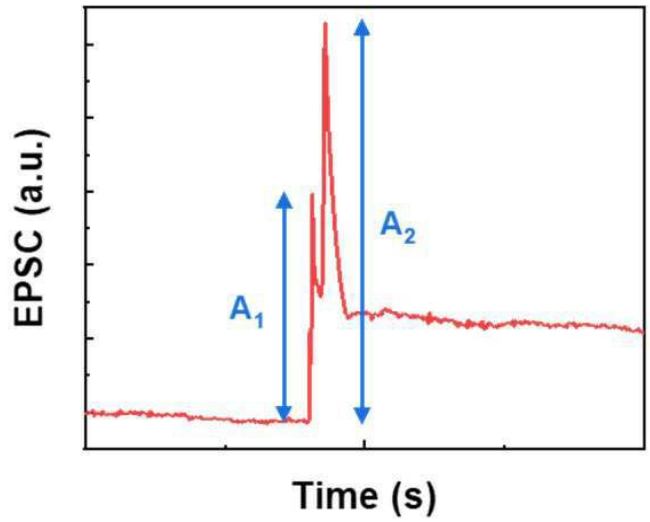
도면24


(a)
Pt
P(VDF-TrFE)/[EMIM][TFSI]
Parylene C
S
P3HT
D
SiO2/Si
(b)
135 mV/s
270 mV/s
510 mV/s
1680 mV/s
IDS (A)
VG (V)
(c)
±2 V
±3 V
±4 V
±5 V
±6 V
IDS (A)
VG (V)

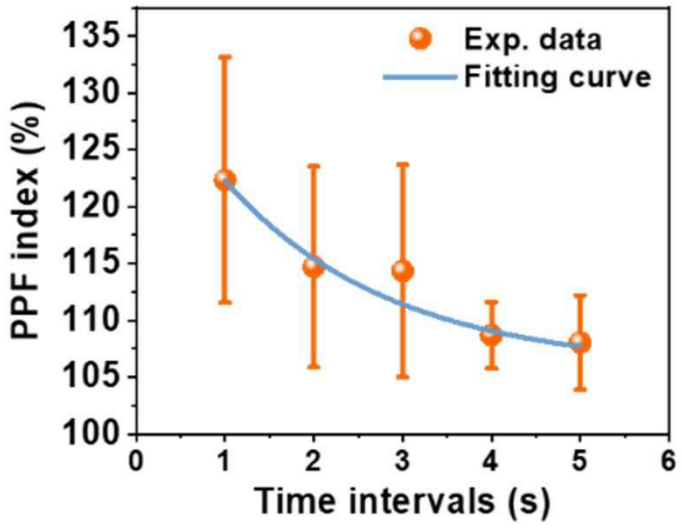
도면25a


Pre-synaptic potential
Post-synaptic current
3-TENG
Organic electrochemical transistor (OECT)
Pt
Parylene C
P(VDF-TrFE)/[EMIM][TFSI]
S
P3HT
D
SiO2/Si

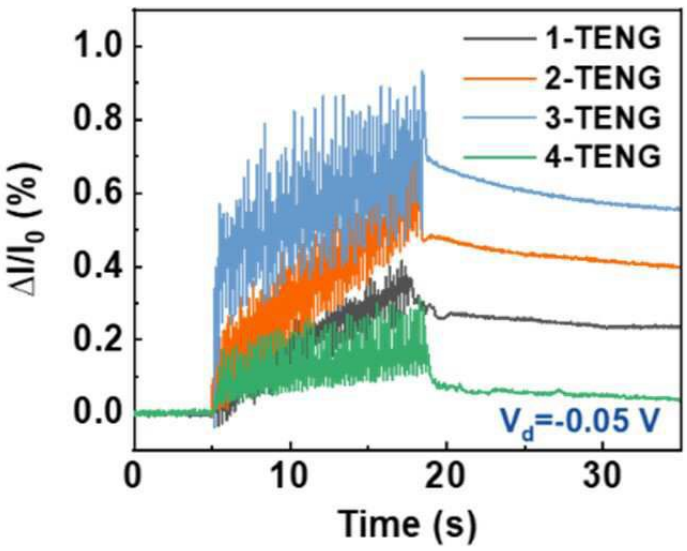
도면25b


EPSC (a.u.)
A1
A2
Time (s)

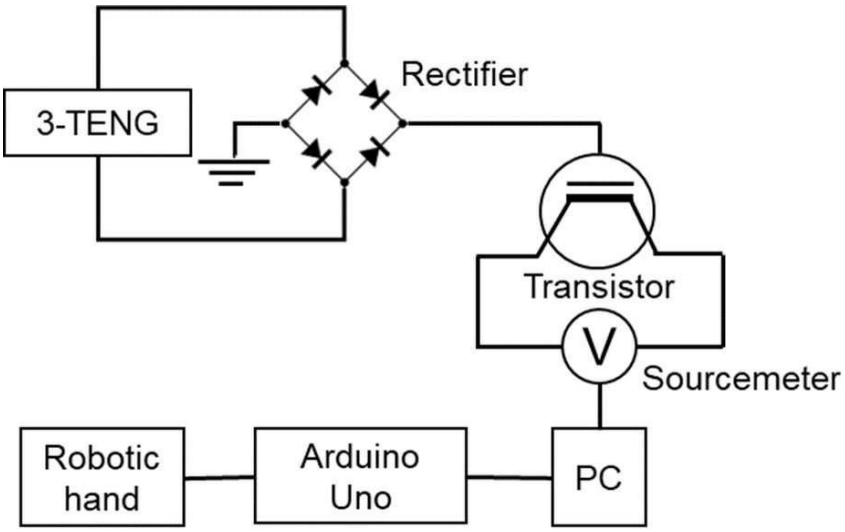
도면25c


Exp. data
Fitting curve
PPF index (%)
135
130
125
120
115
110
105
100
0
1
2
3
4
5
6
Time intervals (s)

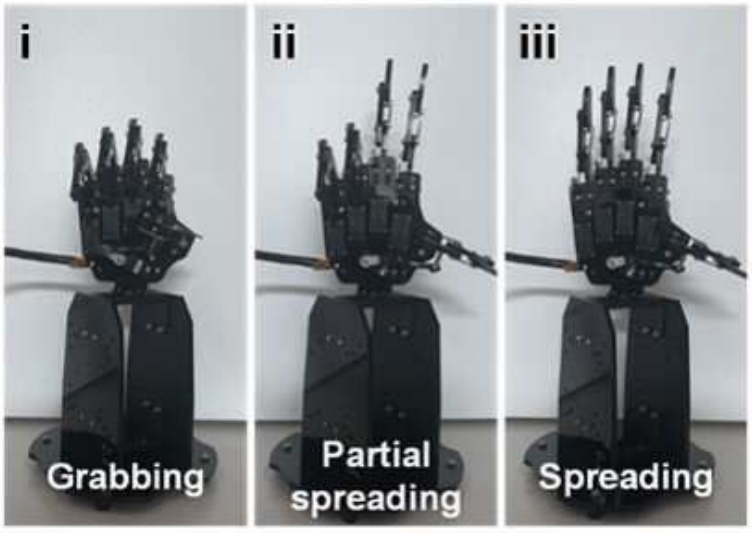
도면25d


1-TENG
2-TENG
3-TENG
4-TENG
$\Delta I/I_0$ (%)
1.0
0.8
0.6
0.4
0.2
0.0
$V_d$=-0.05 V
0
10
20
30
Time (s)

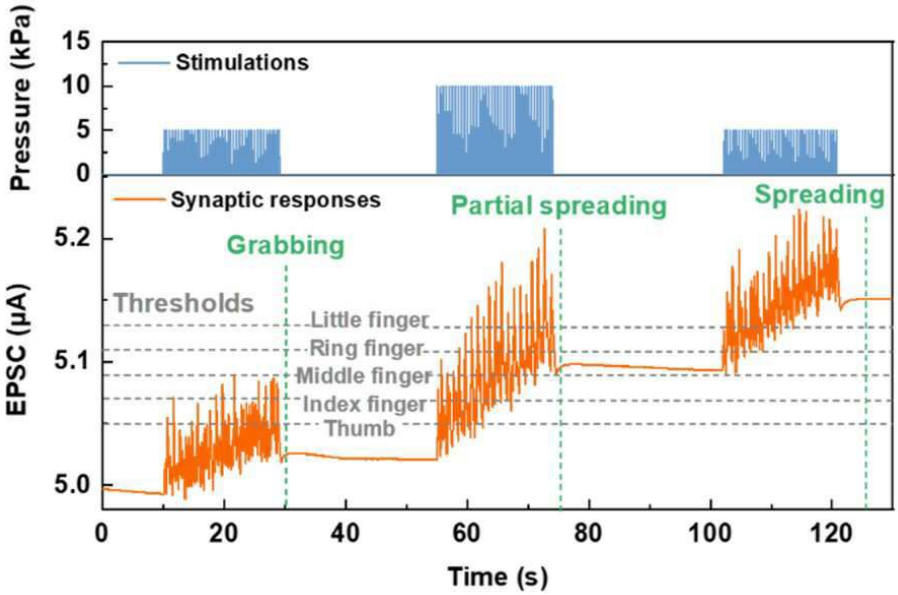
도면26a


3-TENG
Rectifier
Transistor
V
Sourcemeter
Robotic hand
Arduino Uno
PC

도면26b


i
ii
iii
Grabbing
Partial spreading
Spreading

도면26c


Pressure (kPa)
15
10
5
0
Stimulations
Synaptic responses
Partial spreading
Spreading
Grabbing
EPSC (μA)
5.2
5.1
5.0
Thresholds
Little finger
Ring finger
Middle finger
Index finger
Thumb
0
20
40
60
80
100
120
Time (s)