

REVIEW

유기 전기화학 트랜지스터 기반 신축성 인공 시냅스의 최근 동향

정상우¹, 이영준^{1,2,*}

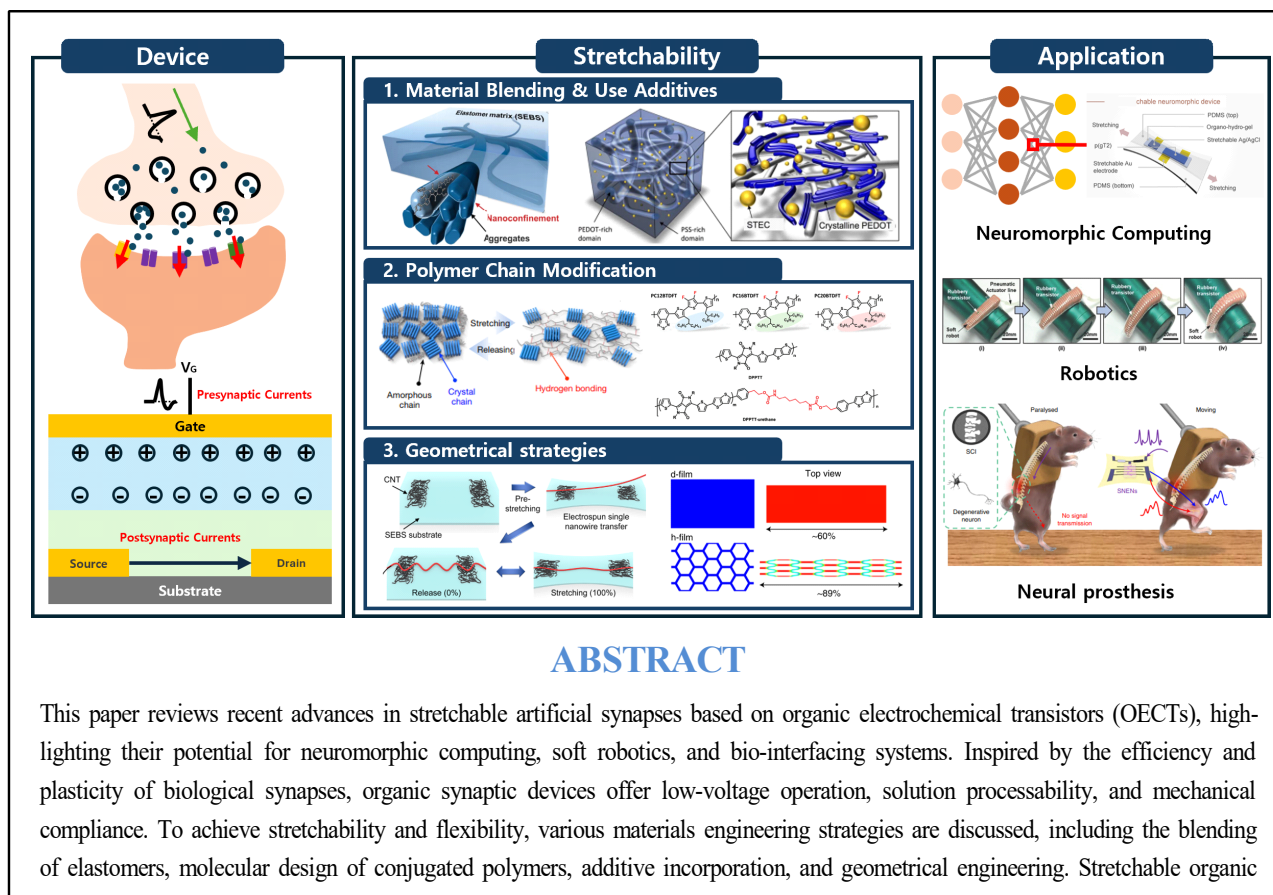
¹한국과학기술원 뇌인지과학과, ²한국과학기술원 신소재공학과

Recent Progress in Stretchable Artificial Synapses based on Organic Electrochemical Transistors

Sangwoo Jung¹, Yeongjun Lee^{1,2,*}

¹Department of Brain and Cognitive Sciences, Korea Advanced Institute of Science and Technology, Daejeon, Korea

²Department of Materials Science and Engineering, Korea Advanced Institute of Science and Technology, Daejeon, Korea





electrochemical synaptic transistors can emulate both short- and long-term plasticity, as well as excitatory and inhibitory behaviors, enabling high conductance tunability, robustness under mechanical deformation, and functionality in wearable and implantable systems. Notably, stretchable neuromorphic devices have demonstrated wearable neuromorphic computing and low-power neuroprosthetics applications. This review highlights the interdisciplinary efforts required for next-generation bioelectronic and neuromorphic technologies.

Key Words: Stretchable artificial synapses, Organic electrochemical transistors (OECTs), Neuromorphic electronics, Artificial nerves, Nervetronics

*Correspondence: yeongjun@kaist.ac.kr

1. 서론

뇌 신경망의 구조 및 정보처리 방식을 모방하는 뉴로모픽 반도체는 컴퓨팅과 의공학 및 웨어러블 분야에서 각광받고 있다. 뇌는 10^{12} 개의 뉴런과 10^{15} 개의 시냅스를 기반으로 여러 정보를 병렬적으로 처리한다[1-4]. 이때 뉴런은 활동 전위를 생성하며 에너지 측면에서 효율적인 정보 전달 방식을 사용한다[5]. 또한 시냅스는 정보 전달을 더욱 다채롭게 하며 신경계의 고차원적인 기능을 구현하는데 주된 역할을 한다[1,2]. 현재 사물 인터넷이나 인공지능이 발전함에 따라 처리해야 할 데이터의 양이 무수하게 늘어나는 상황에서 [3], 이러한 에너지 효율성, 정보의 병렬적 처리, 그리고 기억과 학습 같은 고차원적인 뇌기능을 구현하는 시냅스 가소성 특성을 가지는 뇌를 모방하는 하드웨어는 방대한 양의 데이터를 저전력으로 처리할 수 있다. 기존 폰 노이만 컴퓨팅에서는 주어진 정보에 대한 연산을 담당하는 부분(CPU)과 입력 신호에 대한 저장을 담당하는 부분(메모리)이 분리되어 있다[1-3,6]. 이때, 두 부분 사이에 신호를 전송하고 처리하는 구성에서 에너지적 손해가 발생한다. 또한 두 부분 간의 처리 속도 차이에 따라, 방대한 양의 데이터를 다룰 때 병목현상이 일어나는 한계가 있다[1,3]. 이러한 한계를 극복하기 위해 뇌를 모사하며 정보를 처리하고 그에 대한

출력값을 만드는 뉴로모픽 시스템에 대한 연구는 필수적이다.

최근 시냅스의 정보처리 방식을 모사하는 인공 시냅스 소자에 관한 연구가 주목받고 있으며, 시냅스 특성 구현을 위해 사용되는 소자 또한 날이 갈수록 다양해지고 있다. 대표적으로 CMOS 인공 시냅스를 기반으로 하는 뉴로모픽 반도체뿐만 아니라[7-9], 재료과학 및 다양한 공정 기술의 발전에 따라 다양한 차세대 메모리 기술을 이용한 인공 시냅스 연구가 진행되고 있다. 특히 웨어러블 소자나 생체 신경과 인터페이싱하는 신경전자소자(nervetronics) 구현을 위해, 딱딱한 실리콘 기반 시냅스 소자에서 벗어나 유연하고 신축성을 확보하는 연구 또한 활발하게 진행되고 있다.

위와 같은 상황에 맞춰 많은 국내외 연구진은 다음과 같은 장점을 바탕으로 유기물 전자 재료를 이용하여 인공 시냅스 소자를 연구하고 있다. 첫번째로 기계적 유연성 향상에 제한이 많은 무기 물질과 다르게, 고분자와 같은 유기 물질은 유연하고, 또한 주사슬의 구조와 결사슬, 작용기 등을 조절할 수 있는 특징이 있어 사용하려는 시스템에 최적화된 재료 특성을 구현할 수 있는 장점이 있다[4,10]. 두번째로 저비용의 용액 공정이 가능하다는 장점을 바탕으로 시간과 비용 효율성을 높일 수 있다[2,7]. 마지막으로 유기 재료는 생분해성 및 생체 적합성을 확보할 수 있다는 장점이 있다



[2,3,7,11]. 따라서 앞으로 유기물 기반 인공 시냅스 연구에 대한 관심은 나날이 증가할 전망이다.

이와 같이 유기물 기반 인공 시냅스가 신경전자기와 웨어러블 소자로 사용되려면, 유연성과 신축성을 목표하는 조직에 맞게 조정해야 한다[3,4,11,12]. 이를 위해 현재 다양한 전략으로 소자를 구성하는 요소에 유연성과 신축성을 확보하며, 응용 사례를 넓혀가는 연구들이 활발히 보고되고 있다[10]. 본 논문에서는 유기물 기반 인공 시냅스에서 구현해야 하는 신경계 시냅스 가소성 특징과 이를 위한 유기 전기화학 트랜지스터(organic electrochemical transistor, OECT) 기반의 인공 시냅스의 구동 원리를 설명하고, 유연성과 신축성을 확보하기 위한 재료공학적 전략을 적용한 연구 사례를 소개한다. 마지막으로 유기물 기반 인공 시냅스를 이용한 최신 응용 사례를 소개한다.

2. 인공 시냅스 구동 특성

신경계의 정보처리 과정을 모방하는 인공 시냅스는 생체 시냅스에서 일어나는 신호 전달 메커니즘과 가소성을 모사한다. 인공 시냅스에서 주로 모사하는 생체

시냅스는 신경전달물질(neurotransmitter) 전달을 통해 뉴런간 신호를 전파하는 화학적 시냅스(chemical synapse)이다(Fig. 1(a))[2]. 시냅스를 구성하는 시냅스 전 뉴런 말단에서는 축삭으로부터 전달되는 활동 전위로 인해 전압 의존성 개폐 채널의 작용으로 칼슘 이온이 막 내부로 유입된다[9]. 이후 신경전달물질이 담긴 소포(vesicle)가 시냅스 말단 막에 융합되는 세포 내 과정이 일어나고[13], 소포 안에 있던 신경전달물질이 시냅스 틈으로 방출된다. 방출된 신경전달물질은 시냅스 후 뉴런 막에 존재하는 이온성 혹은 대사성 채널에 작용하여 시냅스 후 뉴런 막전위의 분극 또는 과분극을 유도하며 신경 신호를 전달한다[14]. 이처럼 시냅스는 뉴런 간 정보 전달을 매개하는 역할을 하며, 기억, 지능, 의사결정과 같은 고차원적 기능 발현을 위해 필요한 시냅스 가소성 형성에 기여한다. 이와 같은 고차원적 기능 수행을 위한 막전위의 정밀한 조절은 화학적 시냅스에서 주로 이루어진다. 시냅스 가소성은 자극에 따라 세포간 시냅스의 연결 강도가 강화 또는 약화되는 특성이며, 학습과 기억 작용의 중요한 메커니즘이라는 측면에서 뉴로모픽 디바이스의 핵심 특성이다

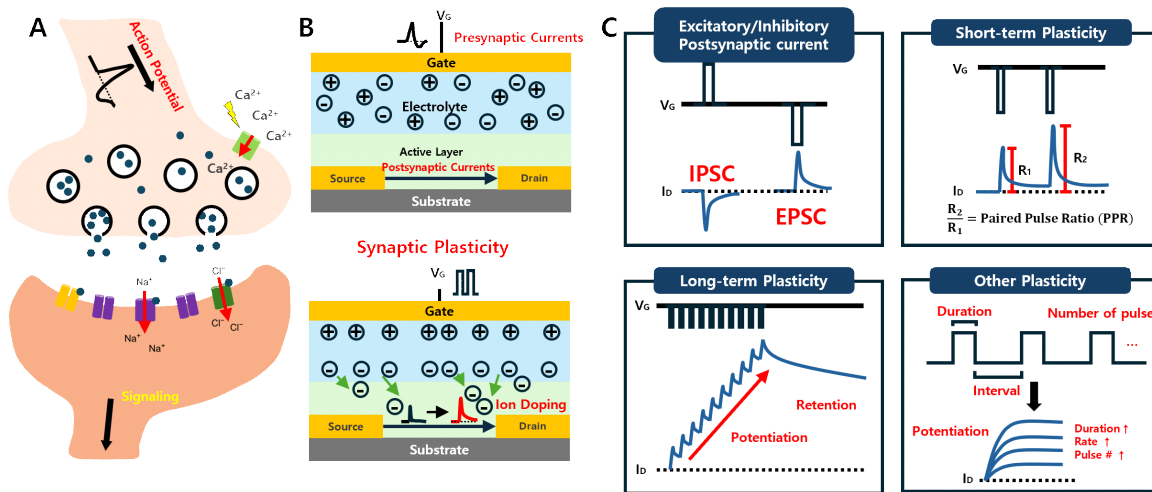


Fig. 1. Features required in artificial synapses. (a) Functions that occur in chemical synapses. (b) Operating principle of OECTs and their similarities to chemical synapses. (c) Synaptic plasticity features implemented in OECTs.



[2,7,15].

다양한 기전으로 메모리 및 가변출력 기능을 구현한 인공 시냅스 중, OECT를 이용한 시냅스 소자는 화학적 시냅스 거동과 매우 유사하다는 특징을 가진다[9]. OECT는 게이트, 소스, 드레인으로 구성된 3단자 구조를 가지며, 게이트 전극에 가해지는 전압에 의해 소스와 드레인 전극 사이에서 전하 전달경로를 형성하는 활성층의 전도도가 변화한다(Fig. 1(b))[16]. 이는 시냅스 전 뉴런(게이트 전극)과 시냅스 후 뉴런(활성층) 사이의 정보 전달 구조와 유사하다. 특히 OECT는 전해질을 이용하여 작동하며 게이트 전극에 전압(활동 전위)이 인가되면 전해질 내 이온들이 전계에 따라 이동하며 활성층의 전위를 변화시킨다[11,15,17]. 이는 생체 시냅스에서 신경전달물질이 작용하는 방식과 유사하고, 인공 시냅스의 기능을 보다 정밀하게 구현할 수 있는 기반이 된다. 전해질은 이온 이동과 활성층 계면에서 전기이중층(electric double layer, EDL)을 형성하여 높은 정전용량을 나타내고, 이로 인해 낮은 전압에서도 효과적인 소자 구동이 가능하다[18]. 아울러 활성층 내 이온 도핑과 전기화학적 산화·환원 반응을 통해 채널의 전도도를 변화시킬 수 있으며, 이로 인해 메모리 효과와 가변 출력을 동시에 구현할 수 있다.

일반적인 고분자 전해질은 높은 정전용량을 가질 수는 있지만, 이온 이동도가 낮아 고속 구동에는 한계가 있다. 반대로, 이온성 액체는 이온 이동도가 높아 빠른 응답이 가능하지만 액체 상태이기 때문에 소자의 안정성이나 기계적 통합성 측면에서 제약이 존재한다. 이온성 액체를 고분자 매트릭스에 분산시켜 만든 반고체 상태의 전해질인 이온젤(ion gel)은 두 전해질 시스템의 장점을 통합하여 빠른 이온 이동성과 함께 고분자의 기계적 유연성을 동시에 확보할 수 있고, 유연 기반 전자 소자에 쉽게 통합될 수 있다[15,17,19]. 이온젤의 이온들은 연속적으로 축적되어 전기이중층을 형성하거나, 활성층 내부로 도핑되어 트랜지스터의 출력

전류를 점진적으로 조절할 수 있다[1,10]. 이러한 조절은 시냅스의 강화 및 약화(synaptic potentiation/depression) 반응을 모사할 수 있으며, 이온의 빠른 역 확산에 기반한 일시적인 전도도 변화는 단기 시냅스 가소성(short-term synaptic plasticity)를, 도핑된 이온이 장시간 잔류하여 안정적으로 채널 특성을 변화시키는 경우에는 장기 시냅스 가소성(long-term synaptic plasticity)를 구현할 수 있는 기반이 된다. 이러한 특성 덕분에, 최근 이온젤 기반의 유기 시냅스 소자를 활용한 뉴로모픽 디바이스 개발이 활발히 진행되고 있다.

이온젤 기반 유기 시냅스 소자에서 보일 수 있는 특징은 다음과 같다(Fig. 1(c)). 우선 게이트 전극에 전압을 인가할 때, 전압의 극성에 따라 이온 역동성에 변화가 생기며 흥분성 혹은 억제성 시냅스 특징을 구현할 수 있다[20]. 예를 들어 활성층으로 p-type 물질을 사용한 경우, 게이트에 음전압 스파이크를 인가하면 음이온이 활성층 쪽으로 이동하여 일시적으로 활성층의 전도도가 증가한 특징을 보인다. 이는 신경계에서 흥분성 자극에 의해 전류가 발생했다가 감소하는 흥분성 시냅스 전류(excitatory postsynaptic current, EPSC) 특징 구현을 보여준다. 반대로 게이트에 양전압 스파이크를 인가하면 억제성 시냅스 전류(inhibitory postsynaptic current, IPSC) 특징도 구현할 수 있다. 이외에도 연속된 두 개의 같은 자극이 있을 때, 두번째 자극에 대한 반응이 일시적으로 증가 혹은 감소되는 단기 가소성(short-term plasticity, STP) 특징도 구현할 수 있다[7]. 각 자극에 의한 반응 크기를 비교하는 지표인 paired pulse facilitation (PPF)를 통해 이를 나타낼 수 있다. 이는 첫번째 자극으로 인해 이온 젤에서 활성층으로 도핑된 이온이 원상복귀하기 전에 두번째 자극이 주어지면, 이온 축적과 도핑 효과가 누적됨에 따라 채널 전도도가 더욱 증가되어 일어나는 현상이다. 더하여 게이트에 인가되는 스파이크의 수가 많아질수록 이온 도핑에 따른 채널 전도도 변화가 크게 일어나는데,



그 수가 매우 많은 경우 자극 이후에도 채널 전도도가 장기간(수 분~수 시간) 유지되는 장기 가소성 특징(long-term plasticity, LTP)를 구현할 수 있다[20]. 또한 스파이크 수에 따라 채널 전도도 변화 및 지속시간이 달라지는 spike number-dependent plasticity(SNDP), 시간 간격에 따라 채널 전도도 변화 정도가 달라지는 spike rate-dependent plasticity(SRDP) 등과 같이 입력되는 스파이크 특징에 따라서도 다양한 시냅스 특징을 구현할 수 있다. 이처럼 이온젤 기반 유기 시냅스 트랜지스터는 앞서 언급한 다양한 시냅스 특성을 한 단위 소자에서 구현할 수 있다는 장점 덕분에 뉴로모픽 컴퓨팅 및 응용 사례에서 활발히 연구가 이루어진다[21].

유기물 기반 시냅스 소자 개발뿐만 아니라, 이를 이용한 웨어러블 디바이스 및 생체-인터페이싱 시스템 구축을 위한 노력도 활발히 이루어지고 있다. 앞서 설명한 OECT의 경우, 이온 이동에 따른 시냅스 특성이 실제로 생체 내 시냅스가 작동하는 것과 유사하기에 보다 자연스러운 생체-기기 인터페이싱이 가능하다[15,20]. 이런 강점을 보이는 소자를 웨어러블 및 이식형 디바이스 분야로 확장시키기 위해 해결해야 할 과제는, 인체의 기계적 특성과 비슷한 유연성 및 신축성을 구현하는 것이다[4,11,22]. 이때 유기 재료를 사용하면 다양한 전략을 이용하여 재료를 가공하며 신축성과 유연성을 확보할 수 있다. 이러한 재료적 이점에 따라 연구진들은 유기물 기반 인공 시냅스 상에서 신축성 및 유연성을 확보하기 위한 연구를 이어가고 있다.

3. 유기 인공 시냅스 신축성 확보 전략

안정적인 웨어러블 및 생체-인터페이싱 소자로의 적용을 위해서는 OECT의 모든 구성 요소에서 신축성과 유연성을 확보해야 한다. 이온젤은 본질적인 유연성을 가진 덕분에 유연한 OECT 제작에 적절한 재료로 알려져 있다[15]. 그리고 전극의 경우 박막 형태로 형성하며 두께를 줄여 굽힘 강성(bending stiffness)을 낮추

며 유연성을 확보할 수 있다[12]. 두께 측면에 더하여 금속성 박막을 구불구불한 형태로 패터닝하여 기계적 변형을 가능하게 할 수 있다[23,24]. 더하여 1차원 혹은 2차원 나노 물질의 퍼컬레이션 전도(percolation conduction)를 이용하여 전도성과 함께 유연성을 확보할 수도 있다[25]. 예를 들면, 2차원 물질인 그래핀 옥사이드(graphene oxide, GO)가 1차원 물질인 은 나노 와이어(Ag nanowire, AgNW)를 감싸는 방식으로 기계적 유연성을 확보할 수 있다[26]. 이 네트워크로 구성된 필름은 4 mm 반경으로 반복 굽힘이 있어도 저항 변화가 2~3% 이내인 우수한 저항 안정성을 보였다. 비슷하게 AgNW 위에 그래핀 및 그래핀 스크롤이 형성된 그래핀 기반의 신축성 전극도 우수한 변형성을 나타내었다[27]. 이처럼 인공 시냅스를 구성하는 요소 중 전극은 공정 기술의 발전과 함께 다양한 신축성 확보가 이루어진 상황이다[28].

유기 인공 시냅스에서 전하전달이 직접 이루어지는 부분은 유기 반도체층이다. 변형이 있는 상황에서 유기 반도체층에 균열(crack)이 생기면 전하이동경로에 영구적인 손상이 일어날 수 있다[29]. 그러므로 변형에 대해 유기 반도체층 내 전하이동경로를 온전하게 유지시키는 것이 신축성 유기 인공 시냅스 소자 제작에서 핵심이다. 이 부분에서는 다양한 전략을 이용해 유기 반도체 층에 신축성을 확보하는 전략을 소개한다.

3.1. 물질 혼합 및 첨가제 사용

OECT의 반도체층으로 사용되는 물질은 주로 고분자 반도체 물질이다. 고분자 반도체가 기존 무기물 반도체 대비 낮은 영률과 유연한 특성을 가지지만, 여전히 높은 영률로 인하여 제한적인 신축성을 갖는다. 고분자 반도체의 신축성을 향상시키기 위해서 신축성이 있는 고분자 물질(예, 탄성 고분자(elastomer))를 반도체층을 구성하는 물질의 matrix로 함께 사용할 수 있다[25,30,31]. 또한 고분자 사슬 간 얽힘을 방지하거나



사슬 사이의 상호작용을 완화시키는 첨가제를 통해 신축성 및 유연성을 확보할 수도 있다[32]. 탄성고분자와 고분자 반도체를 혼합하여 상분리(phase separation)를 일으키는 방식은 이동도를 위한 고분자의 결정성과 신축성을 위한 비결정성 간의 상충관계를 해소하는 해결책으로 사용된다. Jie Xu et al.은 고이동도 고분자 반도체(poly(2,5-bis(2-octyldodecyl)-3,6-di(thiophen-2-yl)diketopyrrolo[3,4-c]pyrrole-1,4-dione-alt-thieno[3,2-b]thiophen), DPPT-TT)와 신축성 탄성체인 styrene ethylene butylene styrene(SEBS)를 혼합하여, 상분리를 일으켜 나노 크기의 섬유 구조 네트워크를 형성했다(Fig. 2(a))[31]. 나노구속(nanoconfinement) 효과는 반도체

박막의 신축성을 크게 향상시키면서 전하 이동도는 유지하게 한다(Fig. 2(b)). 이때 고분자 사슬은 나노구속 환경에서 역설적으로 움직임이 자유로워지는데(동역학 증가), 이는 고분자 결정의 성장을 억제한다. 이로 인해 비정질 영역이 증가하며 유리전이 온도(Tg)와 탄성률(elastic modulus)이 낮아지고, 그에 따라 유연성 및 신축성을 확보하며 변형에 따른 균열 형성이 지연된다. 같은 방식으로 Donor-Acceptor(D-A)형 고분자 반도체를 절연성 고분자가 둘러싸며 나노 네트워크 구조를 형성해 신축 하에서 전하 이동도를 유지 혹은 향상시킬 수 있다[25]. 이는 나노 네트워크 안에서 반도체 고분자끼리 이전보다 더욱 정렬된 edge-on 적층 구

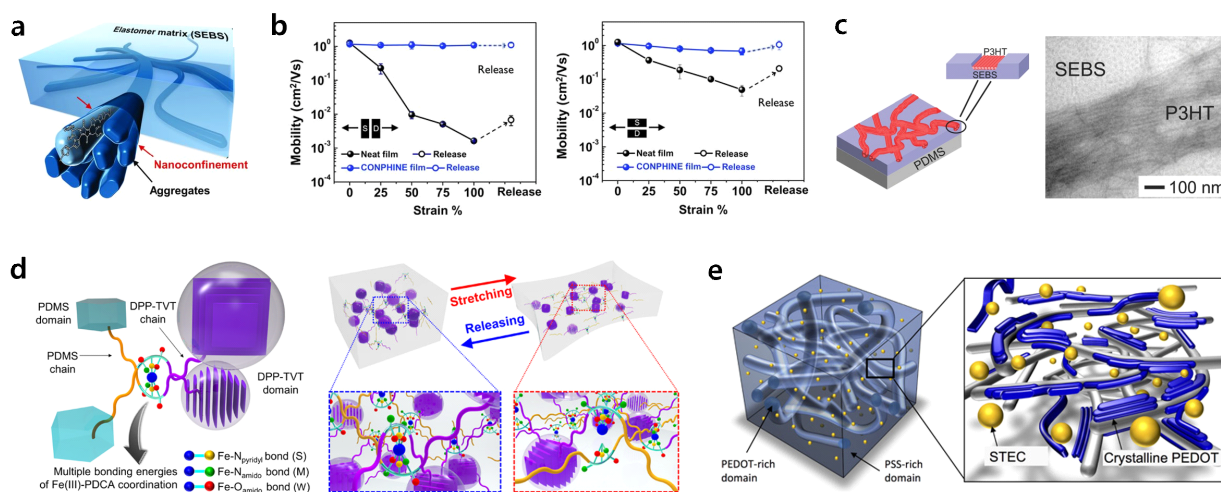


Fig. 2. Strategies for achieving stretchability in organic semiconductors: Material blending and using additives. (a) Schematic showing nanoconfinement occurring when a polymer semiconductor (DPPT-TT) is blended with an elastomeric polymer (SEBS) to induce phase separation. (b) Mobilities under strain. (c) Schematic of a stretchable semiconductor layer created by utilizing phase separation between P3HT nanofibers and SEBS. (d) Schematic showing phase separation where DPP-TVT and PDMS domains are distinguished, and dynamic metal-ligand bonding acts as a reversible bond under strain to achieve stretchability. (e) Illustration showing that stretchability is achieved in PEDOT:PSS by modifying inter-polymer chain interactions through the use of additives. (a,b) Reproduced with permission from Science [31]. Copyright 2017, American Association for the Advancement of Science. (c) Reproduced with permission from Advanced Materials [30]. Copyright 2015, Wiley-VCH. (d) Reproduced with permission from Science Advances [33]. Copyright 2018, American Association for the Advancement of Science. (e) Reproduced with permission from Science Advances [36]. Copyright 2017, American Association for the Advancement of Science.



조가 유도되기 때문이다. 또한 poly(3-hexylthiophene) (P3HT) 나노섬유를 polydimethylsiloxane (PDMS)에 분산시켜(Fig. 2(c)), 변형이 일어날 때 나노섬유가 회전 및 정렬되어 응력을 해소하며 신축성과 전기적 특성을 동시에 확보할 수 있다[30].

상분리와 함께 가역적인 결합 거동으로 신축성을 확보할 수도 있다[33]. Poly(3,6-di(thiophen2-yl)diketopyrrolo[3,4-c]pyrrole-1,4-dione-alt-1,2-dithienylethene) with 10 mol% 2,6-pyridinedicarboxamine(DPP-TVT-PDCA)와 PDMS-PDCA를 혼합하면, 상분리로 인한 신축성 확보와 함께 금속-리간드 결합을 통한 자가치유성이 확보된다(Fig. 2(d)). 두 물질을 혼합하여 만든 필름에서 각 물질은 서로 다른 도메인을 형성하며 상분리 되고, 이를 통해 앞선 사례들처럼 신축성을 확보했다. 그리고 두 물질에 공통적으로 있는 PDCA의 아민기가 Fe 이온과 금속-리간드 결합을 형성하는데, 이 결합은 외부 변형에 따라 결합이 끊어졌다가 자발적으로 재구성되는 동적 특성을 보인다. 이러한 결합의 자가치유 특성은 소자의 장기적인 안정성과 반복적인 변형 환경에서 내구성을 크게 향상시킨다[34,35]. 이처럼 물질을 혼합해 가역적인 결합을 형성하는 방식으로 신축성을 확보할 수도 있다.

이외에도 첨가제를 도입하여 전도성 고분자(poly(3,4-ethylenedioxythiophene):poly(styrenesulfonate) (PEDOT:PSS))의 분자 수준에서 신축성과 전도성을 모두 확보할 수 있다(Fig. 2(e))[36]. 신축성과 전도도를 함께 향상시키는 첨가제로 주로 sulfonate와 sulfonimide를 포함하는 음이온성 이온성 화합물이 사용된다. 이는 PSS 사슬과 정전기적 상호작용을 통해 PSS 도메인의 유리전이온도를 낮춰 부드러운 특성을 만들고, 신장이 일어날 때 PEDOT 네트워크가 균열 없이 재배열되도록 돕는다. 또한 이온성 첨가물의 강산성 음이온(예, bis(trifluoromethane)sulfonimide(TFSI))는 PEDOT 사슬에 추가적인 산화적 도핑을 유발한다

[37]. 이는 PEDOT의 thiophene 고리 구조를 코일 형태로 꼬여있는 형태(benzoid)에서 선형(quinoid)으로 변화시킨다. 이로 인해 PEDOT 도메인이 응집하며 결정성이 증가하고, 나노섬유 네트워크 구조가 발달하므로 전하이동경로가 개선된다. 결과적으로 연화된 PSS matrix와 함께 신장으로 인한 PEDOT 사슬의 정렬(chain alignment) 덕분에 100% 변형에서 4,100 S/cm의 높은 전도도를 나타냈다.

3.2. 고분자 사슬 변형

고분자 반도체의 주사슬 및 결사슬을 가공하여 신축성 및 유연성을 향상시킬 수 있다. 대표적인 예시로 diketopyrrolopyrrole(DPP) 계열의 고분자 반도체의 주사슬에 비공액 스페이서(conjugation-break spacer, CBS)를 도입하면 반도체 박막의 유연성이 향상된다[38]. 여기서 CBS는 고분자의 주사슬에 존재하는 공액(conjugation) 구조를 대체하는 역할을 한다. 이때 주사슬에 도입되는 CBS 비율에 따라 신축성이 결정된다. CBS의 도입 비율이 0%나 100%인 완전 공액 및 비공액 고분자인 경우, 분자 내 무작위성이 감소하고 고분자 사슬간 패킹이 효율적으로 일어난다. 이로 인해 높은 결정도를 보이며 변형에 약한 특성을 보인다. 하지만 CBS가 30, 50, 70% 도입된 경우, 사슬간 무작위성이 증가하여 낮은 패킹 정도와 낮은 결정도를 나타내며 신축성이 증가한다[38]. 첨가되는 비공액 스페이서의 분자구조에 따라서도 신축성이 다양하게 조절될 수 있다[39]. DPP 기반 고분자 반도체에 1,3-dibutylbenzene(DBB), hexane(C6), dodecane(C12)를 주사슬의 10 mol% 비율로 도입했을 때, 페닐 고리가 포함되어 상대적으로 강직한 DBB 스페이서를 사용한 경우 25% 변형에서 균열이 발생했다. 그에 비해 긴 단일결합으로 인해 분자 구조상 유연성을 확보한 비공액 스페이서를 사용한 경우 100% 변형에서 균열이 발생했다(Fig. 3(a)). 이처럼 비공액 스페이서의 길이가 길고

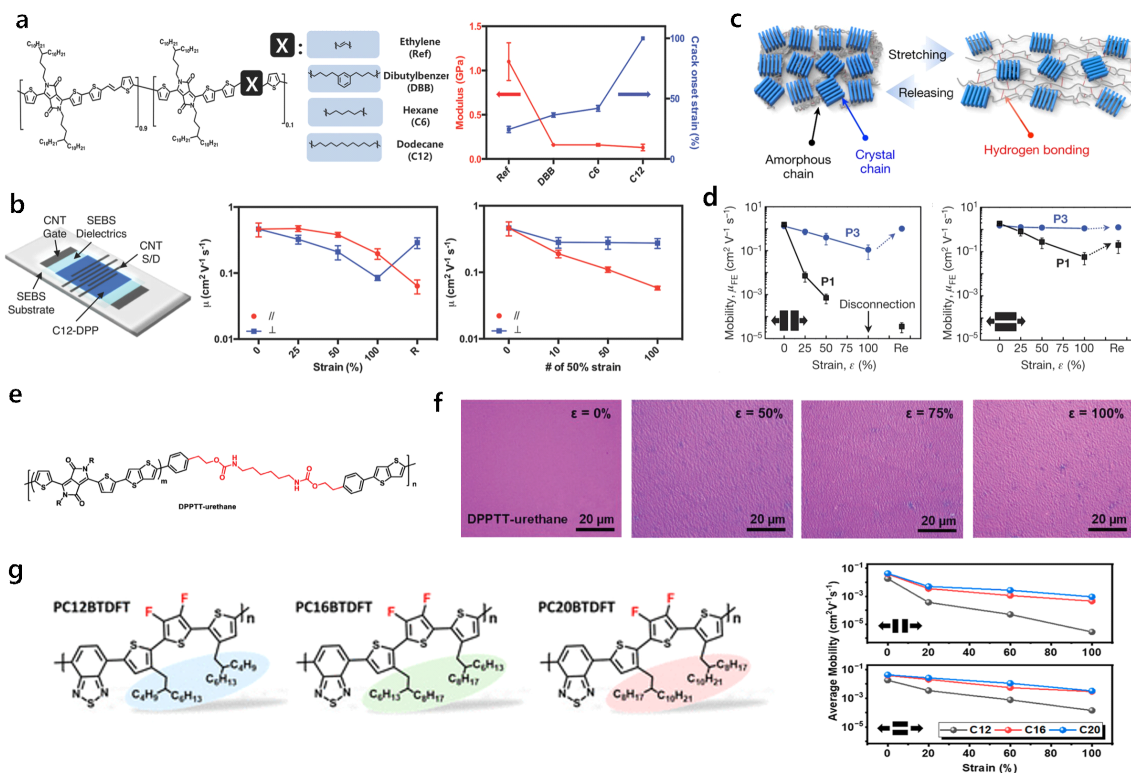


Fig. 3. Strategies for achieving stretchability in organic semiconductors: Chain modification. (a) Position of non-conjugated spacer introduction in DPP-based polymer semiconductors, types of non-conjugated spacers, and resulting changes in elastic modulus and crack onset strain. (b) Schematic of a stretchable transistor using a semiconductor layer with C12 non-conjugated spacers, and mobility/normalized mobility behavior under strains. (c) Schematic of dynamic bonding (hydrogen bonding) behavior under strains. (d) Mobilities under strains comparison: P3 (with 10 mol% PDCA non-conjugated spacer) vs. P1 (fully conjugated) polymers. (e) Molecular structure showing alkyl urethane non-conjugated spacers incorporated into the DPPTT backbone. (f) Surface morphology of DPPTT semiconductor with alkyl urethane spacer films under various strains. (g) Molecular structures of benzothiadiazole-based polymers with various alkyl side-chain lengths, and average mobilities under various strains. (a,b) Reproduced with permission from Advanced Functional Materials [39]. Copyright 2018, Wiley-VCH. (c,d) Reproduced with permission from Nature [40]. Copyright 2016, Springer Nature. (e,f) Reproduced with permission from Advanced Electronic Materials [41]. Copyright 2023, Wiley-VCH. (g) Reproduced with permission from ACS Applied Electronic Materials [42]. Copyright 2024, American Chemical Society.

단일결합이 많아 유연할수록, 고분자 사슬의 결정성이 낮아지고 사슬의 움직임이 자유로워지며 신축성이 향상된다. 이를 소자 수준에서 확인했을 때, C12를 10 mol% 도입한 반도체층을 사용한 신축성 OECT는 100% 변형에서도 $0.36 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ 이상의 이동도를

유지했고, 반복 변형에서도 초기 대비 27%(채널 평행 방향), 43%(채널 수직방향)의 이동도를 유지하는 성능을 보였다(Fig. 3(b)).

또한, DPP 기반 고분자 주사슬에 CBS로 PDCA를 일정 비율(5, 10, 20 mol%)로 도입하며, 비공액으로 인



한 신축성 향상에 더해 자가치유 특성도 확보할 수 있다[40]. PDCA를 주사슬에 도입하면, PDCA의 두 아미드(amide) 작용기로 인해 인접한 고분자 사슬과 수소결합이 형성된다. 수소결합은 동적 비공유 결합이므로 신장 시 결합이 끊어지며 에너지를 소산시킨다. 이후 신장이 해소되고 열처리 또는 용매 증기 처리를 진행하면, 다시 수소결합이 형성되어 고분자는 원래 구조와 전기적 특성을 회복한다(Fig. 3(c,d)). 같은 방식으로 diketopyrrolopyrrole-thieno[3,2-b]thiophene (DPPTT) 고분자 주사슬에 알킬 우레탄(alkyl urethane) 비공액 부분을 도입한 DPPTT-urethane 고분자는 공액 부분에서 효과적인 π - π 스택킹(분자 간 정렬)을 통해 높은 이동도(최대 $1.7 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$)를 형성하고, 비공액 부분은 필름의 결정성을 낮추고 수소결합과 같은 응력을 분산시키는 동적 결합 시스템을 형성하며 신축성을 향상시켰다(Fig. 3(e))[41]. 이러한 지역적 공액(regional conjugation) 전략은 신축성과 고성능을 동시에 확보하게 하여, DPPTT-urethane 필름은 크랙 형성 없이 100%의 신축성을 나타냈다(Fig. 3(f)).

주사슬 변형 이외에, 결사슬을 변형하는 방식으로 고분자 반도체의 신축성을 확보할 수 있다. 결사슬 길이는 고분자의 응집(aggregation), 결정성, 그리고 이동도와 신축성에 영향을 준다[42]. 고분자의 결사슬 길이가 증가하면 고분자 사슬 간의 강한 응집이 완화되며 무정형 영역이 증가함에 따라 비교적 작은 크기의 응집체(aggregate)가 형성된다. 그리고 결사슬이 길수록 결정화 온도(T_c), 녹는점(T_m), 결정화 엔탈피(ΔH)가 감소하며, 이는 고분자 사슬 간의 상호작용이 약해지고 결정성이 저하됨을 나타낸다. 따라서 긴 결사슬을 가질수록 결정성이 낮아지며 인장 시 기계적 에너지를 효과적으로 분산시킬 수 있으므로 신축성이 확보된다. 더하여 작은 응집체 덕분에 전하 이동경로가 충분히 형성됨에 따라 신장 하에서도 이동도가 유지된다. 이에 따라 알킬(alkyl) 계열 결사슬의 길이를 다르게 구

성한 benzothiadiazole 기반 고분자로 만든 유기 박막 트랜지스터에서 변형에 따른 이동도를 비교했을 때, 긴 결사슬을 가진 고분자(C20)는 60% 변형에서 짧은 결사슬을 가진 소자의 이동도 유지율보다 높은 값을 보이며, 신축성이 크게 향상되었다(Fig. 3(g)).

3.3. 구조적 전략

유기 반도체층의 구조나 이를 구성하는 물질의 구조, 그리고 소자 자체의 구조를 이용한 전략으로 변형에 대한 안정성을 확보할 수 있다. 신축성 기판에 사전 응력(pre-strain)을 가하고 반도체 물질을 형성한 뒤에 변형을 해소하며 물결 구조를 만들어 사전 응력과 동일한 응력 범위에서 구조적인 신축성을 확보할 수 있다[43]. 전기방사를 통해 만들어진 고분자 반도체(fused thiophene diketopyrrolopyrrole(FT4-DPP)/polyethylene oxide(PEO) 혼합체) 기반의 유기 나노 와이어(organic nanowire, ONW)를 사전 변형된 SEBS 기판에 전사한 후, 사전 변형을 해소하면 ONW가 손상 없이 구불구불한 형태로 변형된다(Fig. 4(a))[22,44]. 이후 100% 신장 시에도 ONW가 끊어지지 않고 형태가 보존되며 50회 반복 신장에서도 OECT 성능이 안정적으로 유지되었다(Fig. 4(b,c)).

또한 다공성 벌집구조를 이용해 신축성을 확보할 수 있다(Fig. 4(d))[45]. 다공성 벌집 구조는 고습도 환경에서 고분자 반도체를 스핀 코팅을 통해서 형성되었다. 구체적으로 용매가 급속도로 증발하여 표면 온도가 하강하면, 공기 중 수증기가 응결되며 규칙적인 배열을 형성한다. 이때 형성되는 규칙적인 배열이 고분자 용액 내에서 구조체 역할을 하며, 물방울이 제거되면 벌집 형태의 다공 구조가 만들어진다. 특히 poly(2,5-bis(2-octyldodecyl)-3,6-di(thiophen-2-yl)-2,5-diketopyrrolopyrrole-alt-2,5-bis(3-triethyleneglycoloxythiophen-2-yl))(DPP-g2T) 고분자의 양친매성(amphiphilic) 특성 덕분에 균일한 구조가 형성된다. 이렇게

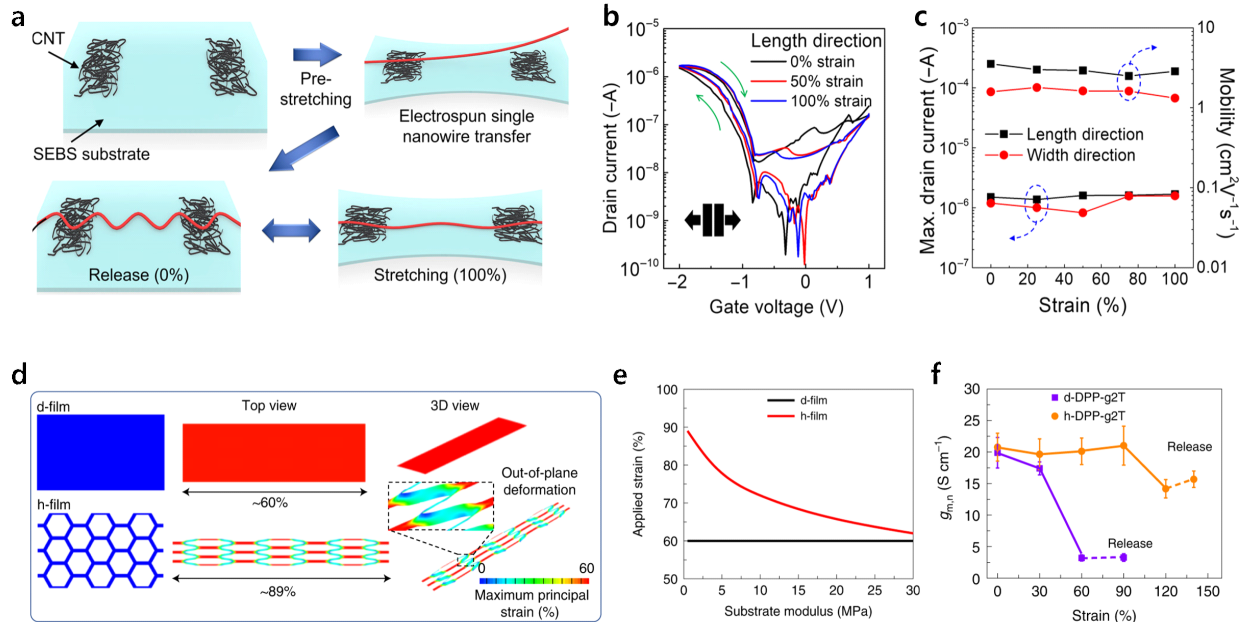


Fig. 4. Strategies for achieving stretchability in organic semiconductors: Geometrical strategies. (a) Transfer process of ONWs onto pre-stretched stretchable substrate (SEBS), followed by strain release to form wavy patterns enabling deformation without damage under strain. (b,c) Electrical properties of OECTs using wavy-patterned ONWs under various strains. (d) Schematic of porous honeycomb structure applied to semiconductor layer. (e) Simulation of applied strain for films on the elastomer substrates with different moduli. (f) Transconductance trends under strain: dense DPP-g2T film vs. DPP-g2T film with porous honeycomb structure. (a–c) Reproduced with permission from Science Advances [22]. Copyright 2018, American Association for the Advancement of Science. (d–f) Reproduced with permission from Nature Materials [45]. Copyright 2022, Springer Nature.

만들어진 다공성 필름은 신장 시 공극이 변형되며 박막에 작용하는 응력이 분산된다(Fig. 4(e)). 다공성 필름(h-DPP-g2T)은 90% 변형 하에서도 트랜스컨덕턴스(transconductance)를 안정적으로 유지하였다(Fig. 4(f)).

유기 반도체층의 구조를 바꾸는 전략 외에도 소자 전체 구조를 통해 신축성 및 유연성을 확보할 수 있다[46]. 서로 다른 가교도를 갖도록 탄성체를 형성한 뒤, 가교가 많이 이루어져 변형에 큰 저항성을 보이는 국소 부위에만 소자를 형성하여 신축 안정성을 향상시킬 수 있고[47], 간단한 드라이 필-오프(dry peel-off) 공정을 통해 기판 없는(freestanding) 소자구조를 형성하여 유연성을 향상시킬 수 있다[4]. 또한 고분자 반도체 박

막을 탄성체 박막 사이에 위치시키는 적층 구조를 이용하여 크랙의 발생과 확산을 억제하며 신축성을 향상시킬 수 있다[29].

4. 신축성 유기 인공 시냅스 응용

유기 인공 시냅스 소자는 저전압으로 구동한다는 점과 실시간으로 전도도가 업데이트되며 빠른 정보 처리가 가능하다는 장점이 있다. 여기에 신축성까지 결합되면, 생체 정보를 실시간으로 처리하며 웨어러블 및 임플란터를 시스템의 연산 유닛으로 활용될 수 있다. 또한 소프트 로보틱스 및 신경보철 분야로도 응용 범위가 확장되고 있다. 마지막으로 이러한 신축성 유기 인공 시냅스 소자 응용 사례를 소개한다.



인공 시냅스는 뇌의 정보처리 과정을 모방하여, 뉴로모픽 컴퓨팅 분야에서 활발히 사용된다. 이는 실시간으로 활성층의 전도도를 조절하며 다양한 가중치를 업데이트 할 수 있고, 저전력 구동이 가능하다는 장점을 가진다. 신축성 및 기계적 안정성은 웨어러블 뉴로모픽 컴퓨팅 분야에도 효과적으로 사용될 수 있다. 예를 들어, PET 기판, PEDOT:PSS 전극, Nafion 전해질로 구성된 유연 시냅스 소자는 활성층의 가역적인 산화 환원 반응을 유도하며 0.5 mV의 낮은 전압으로 125개의 전도도 상태를 구현하였다(Fig. 5(a~c))[21]. 구체적으로 상부 PEDOT:PSS 전극에 양전압이 가해지면 수소이온이 PEDOT:PSS/polyethylenimine(PEI) 활성층으로 이동하여 PEI의 아민기에 결합하고, 이 과정에서 PEDOT:PSS이 환원되며 폴라론(polaron)이 제거되어 전도도가 낮아진다(Fig. 5(a)). 반대로 음전압을 가하면 과정이 반대로 일어나 전도도가 증가한다. 소자는 읽기와 쓰기가 명확히 구분되어 구동되며, 매우 낮은 전압으로 전도도를 조절하였고, 선형적인 전도도 변화를 기반으로, 신경망 시뮬레이션에서 손글씨 숫자 이미지 데이터셋에 대해 93~97%의 높은 분류 정확도를 나타냈다[21].

또한 p(gT2) 반도체 기반으로 만들어진 신축성 시냅스 소자는 800개 이상의 전도도 상태를 나타내며 다양한 신경망 가중치를 표현하고, 선형적이고 대칭적으로 전도도가 조절되며 인공지능 학습에 적합한 특징을 보였다(Fig. 5(d,e))[48]. 안정적인 기계적 특성을 바탕으로 3×3 신축성 인공 시냅스 어레이는 0%와 100% 변형에서 벡터-행렬 곱셈(vector-matrix multiplication, VMM) 연산의 측정값과 계산값이 모두 이상적으로 일치했다(Fig. 5(f)).

신축성 유기 인공 시냅스 소자는 부드러운 물성과 기계적 유연성을 바탕으로 소프트 로보틱스에서도 활용될 수 있다[49]. 이온젤 및 금나노입자(AuNP)/

AgNW 전극, P3HT 나노섬유/PDMS 복합 구조로 구성된 신축성 트랜지스터는(Fig. 5(g)), 신장에 따라 전기적 특성이 점진적으로 감소했지만, 50%의 이축 변형에서도 동작을 유지하였다. 이 소자는 소프트 로봇 피부에 적용되며(Fig. 5(h)), 로봇의 팽창과 수축 시에도 안정적인 ON 전류를 유지하였다(Fig. 5(i)). 이처럼 이축 신장 조건이 많은 소프트 로봇 및 스마트 스킨 환경에서, 신축성 OECT는 핵심 구성요소로 사용될 수 있다.

유기 인공 시냅스는 생체 내 화학적 시냅스의 기능을 모사한 구동 원리를 가진다는 점에서, 보다 자연스럽게 생체와 인터페이싱할 수 있는 가능성을 보인다. 예를 들어, 생물의 촉각 신경에서는 기계적 자극(압력)이 촉각수용체에서 활동전위로 변환되어 신경 섬유를 따라 전달되고 시냅스에서 정보가 통합된다. 이러한 기전을 모방하는 인공 촉각신경은 압력 센서(인공촉각수용체)를 통해 외부 자극을 감지하여 전기 신호로 변환하고, 링 오실레이터(인공뉴런)를 통해 이를 스파이크 신호로 변환한다. 이후 시냅스 트랜지스터에서 신호를 통합한다[5]. 인공감각신경은 여러 압력 센서에서 입력된 신호를 통합해 움직임 방향을 감지하거나 동시적인 압력 신호를 결합하여 점자 문자를 구분하는 등 복잡한 촉각 정보처리 기능을 효과적으로 처리할 수 있는 가능성을 입증했다.

또한 신축성 유기 시냅스 소자는 기존 고전력 신경 및 근육 자극 기반 재활 장치보다 저전력으로 더 자연스러운 근육의 움직임을 유도할 수 있다[51]. 신축성 뉴로모픽 인공 신경은 CNT 기반 인장 센서와 ONW 기반 OECT로 구성되며(Fig. 5(j)), 반복된 신장에서도 안정적인 동작을 유지한다(Fig. 5(k)). 특히 인장 센서 기반의 인공 근방추를 이용해서 고유수용성 피드백(proprioceptive feedback) 기능을 구현하였고, 이를 통해 실시간 감각 피드백을 제공함으로써 과도한 근육

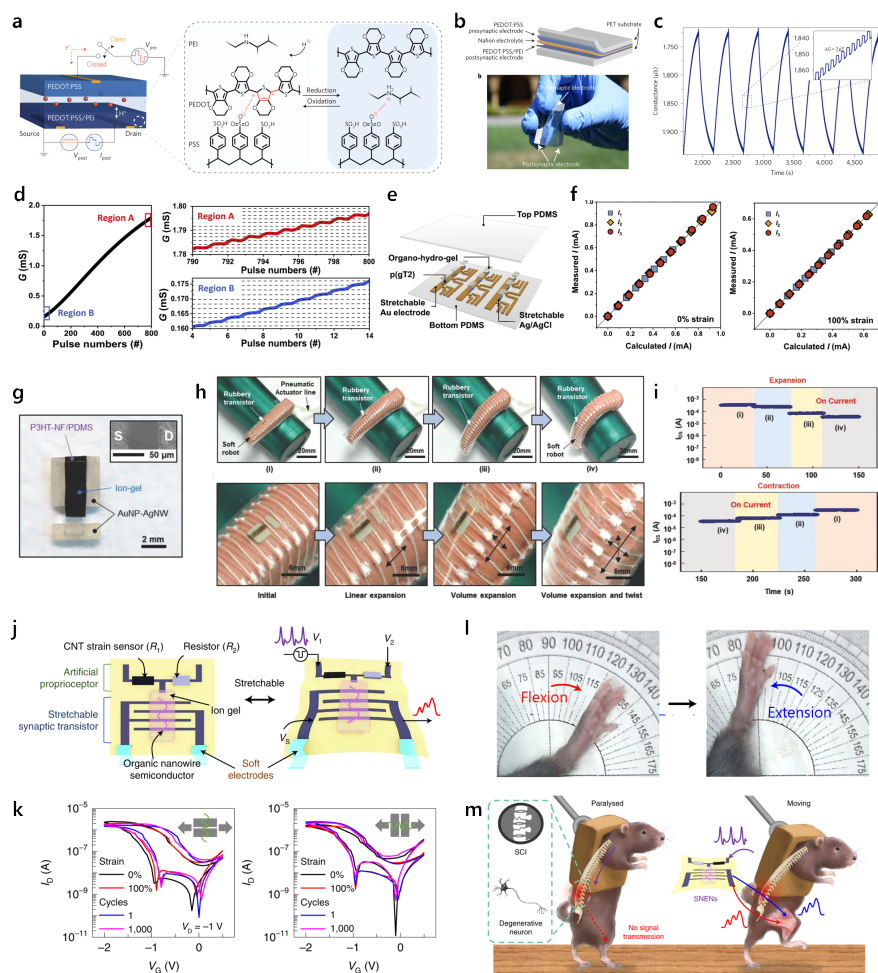


Fig. 5. Applications of Stretchable Organic Artificial Synapses. (a) Schematic of artificial synapse device using PEDOT:PSS (pre-synaptic electrode) and PEDOT:PSS/PEI (post-synaptic electrode) and redox behaviors. (b) Photograph of a flexible artificial synapse. (c) Switching behaviors with 125 conductance states. (d) Schematic of a 3×3 stretchable artificial synapse array. (e) Conductance modulation with 800 states. (f) Ideal match between measured and calculated matrix multiplication results in VMM operations under deformation. (g) Photograph of a stretchable artificial synapse with all the stretchable components. (h) Photographs of a soft robot with a biaxially stretchable organic artificial synapse. (i) Current responses of a stretchable artificial synapse during robot operations. (j) Schematics of a stretchable ONW synaptic transistor with a proprioceptive feedback function. (k) Electrical characteristics of a stretchable ONW synaptic transistor at 0% and 100% strain in parallel and perpendicular directions to the nanowire. (l) Photographs of leg movement with motions. (m) Schematic of a paralyzed mouse with neural disorders, recovered motor function using the stretchable neuromorphic artificial nerve (SNEN). (a–c) Reproduced with permission from Nature Materials [21]. Copyright 2017, Springer Nature. (d–f) Reproduced with permission from Materials Today Physics [48]. Copyright 2022, Elsevier. (g–i) Reproduced with permission from Advanced Materials Technologies [49]. Copyright 2018, Wiley-VCH. (j–m) Reproduced with permission from Nature Biomedical Engineering [51]. Copyright 2022, Springer Nature.



자극을 방지하는 효과를 나타냈으며, 기존 보철 시스템 대비 약 1/150의 초저전력으로 동작하였다. 인공 신경 소자는 마비된 쥐의 다리에서 신경 신호를 근육에 전달하여 움직임을 성공적으로 복원했다(Fig. 5(1,m)). 이와 같이 인공 신경 시스템은 차세대 저전력 신경 보철에 적용될 잠재력을 보였다.

5. 결론 및 전망

본 논문에서는 인간 신경계의 정보 처리 원리를 모사하는 유기물 기반 인공 시냅스 소자를 소개하고, 이와 관련된 신축성 및 유연성 확보 전략을 체계적으로 고찰하였다. 저전력 구동이 가능하며 시냅스 가중치 조절을 통한 효율적인 정보 저장 및 처리 능력을 갖춘 인공 시냅스는, 다양한 차세대 응용 분야로의 확장을 위해 기계적 유연성과 신축성을 필수적으로 갖추어야 한다. 이에 따라 유기 반도체층의 신축성 확보를 위한 재료 및 구조적 접근 전략을 중점적으로 살펴보았다. 이는 탄성 고분자와의 블렌딩, 고분자 사슬의 동역학을 조절하는 첨가제 도입, 주사슬 및 결사슬 구조의 분자설계, 그리고 소자 또는 소재 수준의 구조적 설계 기법을 포함한다.

이러한 전략을 통해 구현된 신축성 유기 인공 시냅스는 저전력 동작과 선형적인 전도도 변화 특성을 기반으로 뉴로모픽 연산 소자로서의 가능성을 입증하였으며, 특히 웨어러블 전자 시스템에 적합함을 확인하였다. 또한 고유의 기계적 유연성을 바탕으로 소프트 로보틱스 분야에서도 적용 가능성이 높으며, 생체 신호와 자연스럽게 상호작용할 수 있는 특성을 바탕으로 신경 보철 및 인공 감각신경과 같은 바이오-인터페이스 기술에도 핵심적인 역할을 수행할 수 있음을 확인하였다.

향후에는 이러한 소자의 기능적 성능뿐만 아니라, 생체와의 상호작용 측면에서도 진전을 이루어야 한다. 특히 이온젤 전해질의 생체적합성 문제는 웨어러블 및

임플란터를 환경에서 반드시 해결되어야 할 과제이며 [52], 이를 위해 생체적합성이 입증된 전해질 재료로의 대체와 관련한 연구가 지속적으로 요구된다. 또한 유기 인공 시냅스는 다양한 시냅스 가중치 구현과 선형 응답 특성이라는 장점을 가지고 있음에도 불구하고 작은 출력 전류의 한계를 갖기 때문에, 이를 극복하기 위한 고출력화 및 신호 증폭 구조 설계 역시 중요한 미래 연구 방향이 될 것이다.

결론적으로, 유기 인공 시냅스 기술은 웨어러블·소프트 일렉트로닉스, 신경보철, 인공 감각 시스템 등 다양한 분야에 걸쳐 응용될 수 있는 잠재력을 지니고 있으며, 이를 실현하기 위해서는 재료공학, 전자소자공학, 생체의공학 등 다양한 분야의 융합적 접근이 요구된다. 본 논문에서 다룬 전략들이 그러한 기술적 진보를 위한 기반이 되기를 기대한다.

기호설명

OECT: Organic electrochemical transistor

CPU: Central processing unit

CMOS: Complementary metal-oxide semiconductor

EDL: Electric double layer

EPSC: Excitatory postsynaptic current

IPSC: Inhibitory postsynaptic current

STP: Short-term plasticity

PPF: Paired pulsed facilitation

LTP: Long-term plasticity

SNDP: Spike number-dependent plasticity

SRDP: Spike rate-dependent plasticity

GO: Graphene oxide

AgNW: Ag(Silver) nanowire

DPPT-TT: Poly(2,5-bis(2-octyldodecyl)-3,6-di(thiophene-2-yl)diketopyrrolo[3,4-c]pyrrole-1,4-dione-alt-thieno[3,2-b]thiophen)



SEBS: Styrene ethylene butylene styrene

Tg: Glass transition temperature

D-A: Donor-acceptor

P3HT: Poly(3-hexylthiophene)

PDMS: Polydimethylsiloxane

DPP-TVT: Poly(3,6-di(thiophen-2-yl)diketopyrrolo[3,4-c]pyrrole-1,4-dione-alt-1,2-dithienylethene)

PDCA: 2,6-Pyridinedicarboxamine

PEDOT:PSS: Poly(3,4-ethylenedioxythiophene):poly(styrenesulfonate)

TFSI-: Bis(trifluoromethane)sulfonimide

DPP: Diketopyrrolopyrrole

CBS: Conjugation-Break spacer

DBB: 1,3-Dibutylbenzene

C6: Hexane

C12: Dodecane

DPPTT: Diketopyrrolopyrrole-thieno[3,2-b]thiophene

Tc: Crystallization temperature

Tm: Melting temperature

FT4-DPP: Fused thiophene diketopyrrolopyrrole

PEO: Polyethylene oxide

ONW: Organic nanowire

DPP-g2T: Poly(2,5-bis(2-octyldodecyl)-3,6-di(thiophen-2-yl)-2,5-diketo-pyrrolopyrrole-alt-2,5-bis(3-triethyleneglycoloxy-thiophen-2-yl))

PEI: Polyethylenimine

VMM: Vector-matrix multiplication

AuNP: Au(Gold) nanoparticle

CNT: Carbon nanotube

approved the final manuscript.

Funding

This research was supported by the National Research Foundation of Korea (NRF) grant funded by the Korean government (Ministry of Science and ICT, MSIT) (RS-2024-00416938). This work was also supported by the Technology Innovation Program (No. 04992970, Alchemist Program) funded By the Ministry of Trade Industry & Energy (MOTIE, Korea).

Declarations of Competing Interests

The authors declare that they have no competing interests.

AUTHORS



정상우

2018~2025년: 건국대학교 생명과학특성학과 학사

2018~2025년: 건국대학교 화학공학부 학사

2025~현재: 한국과학기술원 뇌인지과학과 석박통합과정

[관심분야] 신경보철, 뇌-기계 인터페이스, 유연나노소재, 웨어러블 디바이스



이영준

2005~2012년: 한양대학교 신소재공학부 학사

2012~2014년: 포항공과대학교 신소재공학부 석사

2014~2018년: 포항공과대학교 신소재공학부 박사

2018~2019년: 서울대학교 재료공학부 박사후연구원

2019~2021년: 삼성종합기술원 책임연구원

2021~2024년: Stanford University, Chemical Engineering, 박사후연구원

ACKNOWLEDGMENTS

Author Contributions

SJ, YL drafted the manuscript. All authors read and



2024~현재: 한국과학기술원 뇌인지과학과 조교수
[관심분야] 신경보철, 신경전극, 인공신경, 유연나노소재, 디스플레이

REFERENCES

- [1] Sung, M. J.; Kim, K. N.; Kim, C.; Lee, H. H.; Lee, S. W.; Lee, T. W. et al. Organic Artificial Nerves: Neuromorphic Robotics and Bioelectronics. *Chem. Rev.* 2025, 125 (5), 2625-2664.
- [2] Lee, Y.; Lee, T. W. Organic Synapses For Neuromorphic Electronics: From Brain-Inspired Computing to Sensorimotor Nervetronics. *Acc. Chem. Res.* 2019, 52 (4), 964-974.
- [3] Park, H. L.; Lee, Y.; Kim, N.; Seo, D. G.; Go, G. T.; Lee, T. W. Flexible Neuromorphic Electronics for Computing, Soft Robotics, and Neuroprosthetics. *Adv. Mater.* 2020, 32 (15), 1903558.
- [4] Jang, S.; Jang, S.; Lee, E. H.; Kang, M.; Wang, G.; Kim, T. W. Ultrathin Conformable Organic Artificial Synapse for Wearable Intelligent Device Applications. *ACS Appl. Mater. Interfaces.* 2018, 11 (1), 1071-1080.
- [5] Kim, Y.; Chortos, A.; Xu, W.; Liu, Y.; Oh, J. Y.; Son, D. et al. A Bioinspired Flexible Organic Artificial Afferent Nerve. *Science* 2018, 360 (6392), 998-1003.
- [6] Wang, S.; Chen, X.; Zhao, C.; Kong, Y.; Lin, B.; Wu, T. et al. An Organic Electrochemical Transistor for Multi-Modal Sensing, Memory and Processing. *Nat. Electron.* 2023, 6 (4), 281-291.
- [7] Park, Y.; Lee, J. S. Artificial Synapses with Short-and Long-Term Memory for Spiking Neural Networks Based on Renewable Materials. *ACS nano* 2017, 11 (9), 8962-8969.
- [8] Jeong, D. S.; Kim, K. M.; Kim, S.; Choi, B. J.; Hwang, C. S. Memristors for Energy-Efficient New Computing Paradigms. *Adv. Electron. Mater.* 2016, 2 (9), 1600090.
- [9] Sun, J.; Fu, Y.; Wan, Q. Organic Synaptic Devices for Neuromorphic Systems. *J. Phys. D: Appl. Phys.* 2018, 51 (31), 314004.
- [10] Seo, D. G.; Go, G. T.; Park, H. L.; Lee, T. W. Organic Synaptic Transistors for Flexible and Stretchable Artificial Sensory Nerves. *MRS Bull.* 2021, 46, 321-329.
- [11] Kim, K. N.; Sung, M. J.; Park, H. L.; Lee, T. W. Organic Synaptic Transistors for Bio-Hybrid Neuromorphic Electronics. *Adv. Electron. Mater.* 2022, 8 (1), 2100935.
- [12] Cho, K. W.; Sunwoo, S. H.; Hong, Y., J.; Koo, J. H.; Kim, J. H.; Baik, S. et al. Soft Bioelectronics Based on Nanomaterials. *Chem. Rev.* 2021, 122 (5), 5068-5143.
- [13] Brunger, A. T.; Leitz, J.; Zhou, Q.; Choi, U. B.; Lai, Y. Ca^{2+} -Triggered Synaptic Vesicle Fusion Initiated by Release of Inhibition. *Trends Cell Biol.* 2018, 28 (8), 631-645.
- [14] Reiner, A.; Levitz, J. Glutamatergic Signaling in the Central Nervous System: Ionotropic and Metabotropic Receptors in Concert. *Neuron.* 2018, 98 (6), 1080-1098.
- [15] Wang, D.; Zhao, S.; Yin, R.; Li, L.; Lou, Z.; Shen, G. Recent Advanced Applications of Ion-Gel in Ionic-Gated Transistor. *npj Flex. Electron.* 2021, 5 (1), 13.
- [16] Jeong, N.; Lim, K. G. Vertical 3-Terminal Artificial Synaptic Devices. *J. Flex. Print. Electron.* 2023, 2 (1), 1-13.



- [17] Qian, C.; Sun, J.; Kong, L.; Gou, G.; Yang, J.; Wan, Q. et al. Artificial Synapses Based on In-Plane Gate Organic Electrochemical Transistors. *ACS Appl. Mater. Interfaces*. 2016, 8 (39), 26169-26175.
- [18] Jeong, H. S.; Kim, C.; Son, B. G.; Han, Y. G.; Baeg, K. J. Nano-Structured Organic Semiconductor Thin-Films for High-Performance Electrolyte-Gated Transistors. *J. Flex. Print. Electron.* 2024, 3 (1), 111-120.
- [19] Lee, J.; Kaake, L. G.; Cho, J. H.; Zhu, X. Y.; Lodge, T. P.; Frisbie, C. D. Ion Gel-Gated Polymer Thin-Film Transistors: Operating Mechanism and Characterization of Gate Dielectric Capacitance, Switching Speed, and Stability. *J. Phys. Chem. C*. 2009, 113 (20), 8972-8981.
- [20] Xu, W.; Min, S. Y.; Hwang, H.; Lee, T. W. Organic Core-Sheath Nanowire Artificial Synapses with Femtojoule Energy Consumption. *Sci. Adv.* 2016, 2 (6), e1501326.
- [21] van de Burgt, Y.; Lubberman, E.; Fuller, E. J.; Keene, S. T.; Faria, G. C.; Salleo, A. et al. A Non-Volatile Organic Electrochemical Device as a Low-Voltage Artificial Synapse for Neuromorphic Computing. *Nat. Mater.* 2017, 16 (4), 414-418.
- [22] Lee, Y.; Oh, J. Y.; Xu, W.; Kim, O.; Kim, T. R.; Lee, T. W. et al. Stretchable Organic Optoelectronic Sensorimotor Synapse. *Sci. Adv.* 2018, 4 (11), eaat7387.
- [23] Koo, J. H. Advances in Stretchable Functional Materials for Soft Bioelectronics. *J. Flex. Print. Electron.* 2024, 3 (2), 179-194.
- [24] Lee, S.; Yang, J. C.; Park, S. Geometrical Engineering for Implementing Stretchable Electronics. *J. Flex. Print. Electron.* 2022, 1 (2), 125-136.
- [25] Park, B.; Kang, H.; Ha, Y. H.; Kim, J.; Lee, J. H.; Lee, K. et al. Direct Observation of Confinement Effects of Semiconducting Polymers in Polymer Blend Electronic Systems. *Adv. Sci.* 2021, 8 (14), 2100332.
- [26] Liang, J.; Li, L.; Tong, K.; Ren, Z.; Hu, W.; Pei, Q. et al. Silver Nanowire Percolation Network Soldered with Graphene Oxide at Room Temperature and Its Application for Fully Stretchable Polymer Light-Emitting Diodes. *ACS Nano*. 2014, 8 (2), 1590-1600.
- [27] Zhou, H.; Han, S. J.; Harit, A. K.; Kim, D. H.; Kim, D. Y.; Choi, Y. S. et al. Graphene-Based Intrinsically Stretchable 2D-Contact Electrodes for Highly Efficient Organic Light-Emitting Diodes. *Adv. Mater.* 2022, 34 (31), 2203040.
- [28] Jung, H.; Lee, W.; Kang, J. Recent Progress in Printing Conductive Materials for Stretchable Electronics. *J. Flex. Print. Electron.* 2022, 1 (2), 137-153.
- [29] Shim, H.; Sim, K.; Wang, B.; Zhang, Y.; Patel, S.; Jang, S. et al. Elastic Integrated Electronics Based on a Stretchable N-type Elastomer-Semiconductor-Elastomer Stack. *Nat. Electron.* 2023, 6 (5), 349-359.
- [30] Shin, M.; Oh, J. Y.; Byun, K. E.; Lee, Y. J.; Kim, B.; Jeong, U. et al. Polythiophene Nanofibril Bundles Surface-Embedded in Elastomer: a Route to a Highly Stretchable Active Channel Layer. *Adv. Mater.* 2015, 27 (7), 1255-1261.
- [31] Xu, J.; Wang, S.; Wang, G. J. N.; Zhu, C.; Luo, S.; Jin, L. et al. Highly Stretchable Polymer



- Semiconductor Films through the Nanoconfinement Effect. *Science* 2017, 355 (6320), 59-64.
- [32] Sun, D. H.; Song, J. Y.; Jang, D. Strategies for Developing Intrinsically Stretchable Thermoelectric Materials. *J. Flex. Print. Electron.* 2024, 3 (2), 195-212.
- [33] Oh, J. Y.; Son, D.; Katsumata, T.; Lee, Y.; Kim, Y.; Bao Z. et al. Stretchable Self-Healable Semiconducting Polymer Film for Active-Matrix Strain-Sensing Array. *Sci. Adv.* 2019, 5 (11), eaav3097.
- [34] Park, J.; Kang, K.; Son, D. Recent Trends in Adhesive Bioelectronics using Self-healing and Stretchable Materials. *J. Flex. Print. Electron.* 2024, 3 (2), 145-161.
- [35] Kong, Z.; Boahen, E. K.; Lim, H.; Kim, D. H. Autonomous Self-Healable, Ag Nanowire-Polymer Composite Flexible Electrode for Underwater Sensors. *J. Flex. Print. Electron.* 2023, 2 (2), 229-242.
- [36] Wang, Y.; Zhu, C.; Pfattner, R.; Yan, H.; Jin, L.; Bao, Z. et al. A Highly Stretchable, Transparent, and Conductive Polymer. *Sci. Adv.* 2017, 3 (3), e1602076.
- [37] Kim, T. H.; Nam, Y.; Kim, J. H.; Yoon, M. H.; Kang, K. Cation-Dependence in Electrochemical Dedoping of Heterogeneous Organic Mixed Ionic-Electronic Conductors. *J. Flex. Print. Electron.* 2024, 3 (1), 95-101.
- [38] Savagatrup, S.; Zhao, X.; Chan, E.; Mei, J.; Lipomi, D. J. Effect of Broken Conjugation on the Stretchability of Semiconducting Polymers. *Macromol. Rapid Commun.* 2016, 37 (19), 1623-1628.
- [39] Mun, J.; Wang, G. J. N.; Oh, J. Y.; Katsumata, T.; Lee, F. L.; Bao, Z. et al. Effect of Nonconjugated Spacers on Mechanical Properties of Semiconducting Polymers for Stretchable Transistors. *Adv. Funct. Mater.* 2018, 28 (43), 1804222.
- [40] Oh, J. Y.; Rondeau-Gagné, S.; Chiu, Y. C.; Chortos, A.; Lissel, F.; Bao, Z. et al. Intrinsically Stretchable and Healable Semiconducting Polymer for Organic Transistors. *Nature* 2016, 539 (7629), 411-415.
- [41] Wang, S.; Wang, L.; Ren, S.; Li, W.; Wang, Z.; Yi, Z. et al. Intrinsically Stretchable Polymer Semiconductor with Regional Conjugation for Stretchable Electronics. *Adv. Electron. Mater.* 2024, 10 (9), 2300816.
- [42] Shih, Y. H.; Chen, G. L.; Liu, P. H.; Tseng, K. W.; Lee, W. Y.; Chen, W. C. et al. Revealing the Effect of Branched Side Chain Length on Polymer Aggregation and Paracrystallinity for Improved Mobility-Stretchability Properties. *ACS Appl. Electron. Mater.* 2024, 6 (3), 1797-1808.
- [43] Lipomi, D. J.; Vosgueritchian, M.; Tee, B. C. K.; Hellstrom, S. L.; Lee, J. A.; Fox, C. H. et al. Skin-Like Pressure and Strain Sensors Based on Transparent Elastic Films of Carbon Nanotubes. *Nat. Nanotechnol.* 2011, 6 (12), 788-792.
- [44] Lee, Y.; Oh, J. Y.; Kim, T. R.; Gu, X.; Kim, Y.; Wang, G. J. N. et al. Deformable Organic Nanowire Field-Effect Transistors. *Adv. Mater.* 2018, 30 (7), 1704401.
- [45] Chen, J.; Huang, W.; Zheng, D.; Xie, Z.; Zhuang, X.; Zhao, D. et al. Highly Stretchable Organic Electrochemical Transistors with Strain-Resistant Performance. *Nat. Mater.* 2022, 21 (5), 564-571.



- [46] Lee, S. W.; Kim, S.; Kim, K. N.; Sung, M. J.; Lee, T. W. Increasing the Stability of Electrolyte-Gated Organic Synaptic Transistors for Neuromorphic Implants. *Biosens. Bioelectron.* 2024, 261, 116444.
- [47] Wang, W.; Wang, S.; Rastak, R.; Ochiai, Y.; Niu, S.; Jiang, Y. et al. Strain-Insensitive Intrinsically Stretchable Transistors and Circuits. *Nat. Electron.* 2021, 4 (2), 143-150.
- [48] Dai, S.; Dai, Y.; Li, Y.; Liu, Y.; Cheng, P.; Wang, S. et al. Intrinsically Stretchable Neuromorphic Devices for On-Body Processing of Health Data with Artificial Intelligence. *Matter.* 2022, 5 (10), 3375-3390.
- [49] Kim, H. J.; Thukral, A.; Sharma, S.; Yu, C. Biaxially Stretchable Fully Elastic Transistors Based on Rubbery Semiconductor Nanocomposites. *Adv. Mater. Technol.* 2018, 3 (6), 1800043.
- [50] Ko, G.; Lee, S.; Choi, M.; Park, H. L. Recent Progress in Organic-Based Photonic Synapses. *J. Flex. Print. Electron.* 2022, 1 (2), 155-173.
- [51] Lee, Y.; Liu, Y.; Seo, D. G.; Oh, J. Y.; Kim, Y.; Li, J. et al. A Low-Power Stretchable Neuromorphic Nerve with Proprioceptive Feedback. *Nat. Biomed. Eng.* 2023, 7 (4), 511-519.
- [52] Lu, D.; Chen, H. Solid-State Organic Electrochemical Transistors (OECTs) Based on Gel Electrolytes for Biosensors and Bioelectronics. *J. Mater. Chem. A.* 2025, 13 (1), 136-157.