

引用格式: 徐洁, 解淼, 黄伟. 有机电化学晶体管循环稳定性的衰退机理分析 [J]. 电子科技大学学报, 2025, 54(2): 191-196.  
XU J, XIE M, HUANG W. Mechanism analysis on the degradation of cycling stability in organic electrochemical transistors [J]. Journal of University of Electronic Science and Technology of China, 2025, 54(2): 191-196.

# 有机电化学晶体管循环稳定性的 衰退机理分析



徐洁, 解淼, 黄伟\*

(电子科技大学 自动化工程学院, 成都 611731)

**摘要:** 有机电化学晶体管 (organic electrochemical transistor, OECT) 作为高效的离子-电子换能器在生物电子学领域受到了广泛关注。但当前具有超高循环稳定性的 OECT 仍然鲜有报道, 成为了阻碍其进一步发展及商业化的瓶颈问题。为了探究循环稳定性测试过程中 OECT 性能衰退的规律及其机理, 该文对比了平面结构和垂直结构的 OECT 在相同测试条件下的循环稳定性, 并使用光学显微镜表征了测试前后的沟道区域形貌变化; 同时还对比了垂直结构 OECT 在不同偏置条件下的性能衰退情况。实验结果表明: OECT 循环稳定性的衰退是多方面因素共同作用的结果, 其中离子的反复掺杂/去掺杂过程、源极/漏极上偏置电压以及非电容性法拉第副反应的产生都会加速 OECT 的性能衰退。

**关键词:** 有机电化学晶体管; 循环稳定性; 衰退机理; 复合离子-电子半导体; 生物电子学

中图分类号: TN321

文献标志码: A

DOI: 10.12178/1001-0548.2024116

## Mechanism analysis on the degradation of cycling stability in organic electrochemical transistors

XU Jie, XIE Miao, and HUANG Wei\*

(School of Automation Engineering, University of Electronic Science and Technology of China, Chengdu 611731, China)

**Abstract:** Organic Electrochemical Transistors (OECTs) have garnered significant research interest in bioelectronics due to their efficient ion-electron transducing capability. However, there were few reports on OECTs with ultra-high cycling stability, which further inhibited their further development and commercialization. Here, to investigate the performance degradation mechanism of OECTs during cycling testing, the differences in cycling stability between planar and vertical OECTs under identical testing conditions were compared, and morphological changes pre- and post-testing were characterized using an optical microscope. Additionally, the performance degradations of vertical OECTs were assessed under different bias conditions. It is indicated that the degradation in the cycling stability of OECTs is attributed to majorly three factors, including repeated doping/de-doping process of ions, bias stress on the source/drain electrodes, and generation of non-capacitive faradaic side-reactions, where all of which contribute to the accelerated performance degradation of OECTs.

**Key words:** organic electrochemical transistors; cycling stability; degradation mechanism; mixed ionic-electronic semiconductors; bioelectronics

有机电化学晶体管 (organic electrochemical transistor, OECT) 由于其良好的生物兼容性、低驱动电压以及高跨导等特点, 在生理信号记录<sup>[1-2]</sup>、神经形态计算<sup>[3-4]</sup>和化学/生物传感器<sup>[5-6]</sup>等领域具有广泛的应用前景<sup>[7-8]</sup>。OECT 的性能通常通过其能实现的最大跨导 ( $g_m$ ) 来评估, 这与有机复合离子-电子

导体 (organic mixed ionic-electrochemical conductor, OMIEC) 的载流子迁移率及体积电容有关。然而, 实现具有高循环稳定性的 OECTs 是其技术成熟度进一步提升和产业化的前提。

OECT 的运行依赖于 OMIEC 中的离子扩散和载流子传输, 其电流调制是电解质中离子对沟道薄

收稿日期: 2024-05-17

基金项目: 国家自然科学基金面上项目 (62273073); 四川省中央引导地方科技发展专项 (2023ZYD0161)

作者简介: 徐洁, 副研究员, 主要从事电子器件老化机理及寿命预测方面的研究。

\*通信作者 E-mail: whuang@uestc.edu.cn

膜掺杂以及去掺杂的结果,这一过程将不可避免地引起 OMIEC 微观结构和化学结构的变化。具体而言,离子(特别是携带较大溶剂化壳的离子)在栅极偏压的作用下被掺入沟道薄膜或从沟道中析出回到电解质中,引起沟道薄膜的动态溶胀,这可能会削弱分子间相互作用和聚合物链间的有效互联,对电荷传输产生不利影响<sup>[9-10]</sup>。溶剂分子(通常是水)的大量吸收也可能导致沟道薄膜与电极或基底分离<sup>[11]</sup>。同时,当 OEET 在含氧的水性电解质中运行时,通常伴随着非电容性法拉第反应,如氧还原反应(oxygen reduction reaction, ORR)的发生。ORR 可以通过双电子过程( $O^2+2H^++2e^- \rightarrow H_2O_2$ )生成  $H_2O_2$ ,也可以通过四电子过程( $O^2+4H^++4e^- \rightarrow 2H_2O$ )生成  $H_2O$ ,其中  $H_2O_2$  的生成可能会导致与 OMIEC 的副反应发生,降低 OEET 的循环稳定性<sup>[12]</sup>。除此之外,漏极的还原偏置应力和源极的氧化偏置应力的共同作用也可能导致界面性质的退化,从而加速 OEET 性能的衰退<sup>[13]</sup>。

提升 OEET 循环稳定性的一种常见策略是优化 OMIEC。对于沟道材料的剧烈溶胀,可以通过侧链重分配<sup>[14]</sup>、在侧链上添加烷基间隔物<sup>[15]</sup>或减小侧链长度<sup>[16]</sup>等方法来抑制。而对于电化学副反应,如 ORR,虽然电解质脱氧是抑制 ORR 最简便的方法,但是在实际应用中使用时无氧电解质是不切实际的。通过设计电离电位(ionization potential, IP)  $\geq 4.9$  eV 的 OMIEC 可以有效避免非电容性法拉第反应,并防止反应副产物如  $H_2O_2$  的产生<sup>[12]</sup>。同时,在 OMIEC 中添加掺杂剂也是提升 OEET 器件性能和稳定性的有效策略。如在 PEDOT:PSS 中添加一定量的 GOPS 可以改善沟道薄膜形貌,显著增强其循环稳定性<sup>[17]</sup>。但是,尽管对 OEET 循环稳定性衰退机理和提升策略的研究已取得诸多成果,对 OEET 循环稳定性衰退机理的研究仍然不够成熟,这导致 OEET 在生物传感应用中所表现出的循环稳定性并不令人满意。

因此,本文通过对不同结构的 OEET 在不同条件下的循环稳定性展开测试,并对其在测试前后的形貌变化进行表征,在此基础上对 OEET 的性能衰退规律及相关机理进行了分析讨论。

## 1 实验部分

### 1.1 试剂与材料

有机半导体聚合物 poly(2-(3,3'-bis(2-(2-(2-methoxyethoxy)ethoxy)ethoxy)-[2,2'-bithiophen]-5)yl

thiophene) [p(g2T-T)] 购自深圳睿迅光电材料科技有限公司。交联试剂 double-end trifluoromethyl diazirines(DtFDA) 和 Cinnamete-Cellulose (Cin-Cell) 依据文献 [18-19] 合成。以上有机材料的化学结构式如图 1 所示。异丙醇、丙酮和三氯甲烷溶液购自四川西陇科学有限公司。磷酸盐缓冲液(0.01 M PBS) 购自北京索莱宝科技有限公司并用作电解质溶液。聚二甲基硅氧烷(polydimethylsiloxane, PDMS) 购自美国道康宁公司,用于制备 PDMS 小室并且主剂和固化剂按照 10:1 的质量比混合。

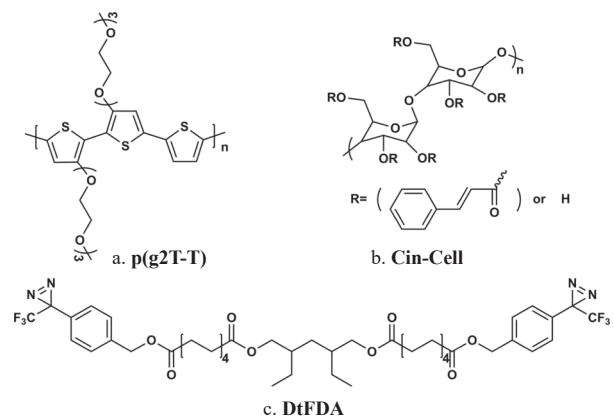


图 1 p(g2T-T), DtFDA 以及 Cin-Cell 的化学结构式

### 1.2 溶液配制

首先,将 p(g2T-T) 和 Cin-Cell 分别以 10 mg/ml 和 20 mg/ml 的浓度溶解在三氯甲烷溶液中。此外, DtFDA 按照 20 mg/mL 和 100 mg/mL 2 个浓度溶解在三氯甲烷溶液中。以上溶液都使用规格为 0.45  $\mu$ m 的聚偏氟乙烯(polyvinylidene difluoride, PVDF) 滤头进行过滤。随后,将 p(g2T-T) 溶液与 DtFDA 溶液(20 mg/mL) 按照溶质质量比为 4:1 的比例进行混合,用于制备沟道薄膜。最后,将 Cin-Cell 溶液与 DtFDA 溶液(100 mg/mL) 按照溶质质量比为 4:1 的比例进行混合,用于制备封装层。

### 1.3 平面 OEET 制备

首先,将 Si/SiO<sub>2</sub> 基底浸入异丙醇溶液并置于超声波清洗机(宁波新芝生物科技股份有限公司)中清洗 15 min。其次,使用氮气枪吹干基底并在紫外光清洗机(深圳市汇沃科技有限公司)中紫外臭氧处理 15 min。随后,使用金属电极掩模版遮盖基底,并使用小型电阻蒸发镀膜仪(北京浅蓝纳米科技发展有限公司)通过热蒸镀法蒸镀并制得源极和漏极。这里电极材料为金,且沉积厚度约为

50 nm (为增强金电极与基底之间的附着力, 在蒸镀金之前需要先沉积厚度约为 3 nm 的铬)。所制得的沟道长度和宽度分别为 20  $\mu\text{m}$  和 200  $\mu\text{m}$ 。接着, 在湿度为 10% RH 条件下将 p(g2T-T) 与 DtFDA 的混合溶液旋涂在基底上。旋涂的转速设置为 3 000 rpm, 旋涂时间为 20~30 s。随后, 使用对准机 (成都测芯科技有限公司) 将用于有机半导体层图案化的掩模版与基底严格对齐, 并使用波长为 365 nm 的紫外光源持续照射 2 min 以光固化沟道材料。然后, 将其置于三氯甲烷溶液中显影 2~3 s, 并用氮气枪吹干。接着, 在湿度为 10% RH 条件下将 Cin-Cell 与 DtFDA 的混合溶液旋涂在基底上。旋涂的转速设置为 5 000 rpm, 旋涂时间为 10~20 s。随后, 将用于封装层图案化的掩模版与基底严格对齐, 并使用波长为 365 nm 的紫外光源持续照射 2 min 以光固化封装层。最后, 将其置于三氯甲烷溶液中显影 2~3 s, 并用氮气枪吹干, 即完成平面 OEET 的制备。

#### 1.4 垂直 OEET 制备

首先, 使用小型电阻蒸发镀膜仪通过热蒸镀法在预清洁后的基底上蒸镀并制得底电极 (源极)。电极材料为金, 且沉积厚度约为 150 nm (为增强金电极与基底之间的附着力, 在蒸镀金之前需要先沉积厚度约为 3 nm 的铬)。底电极宽度为 30  $\mu\text{m}$ 。其次, 在基底上旋涂 p(g2T-T) 与 DtFDA 的混合溶液, 并通过紫外光固化和显影得到图案化的有机半导体层。随后, 再次使用小型电阻蒸发镀膜仪蒸镀并制得顶电极 (漏极)。电极材料为金, 且沉积厚度约为 150 nm, 宽度为 30  $\mu\text{m}$ 。最后, 使用 Cin-Cell 与 DtFDA 的混合溶液完成对垂直 OEET 的封装。

#### 1.5 OEET 性能表征

OEET 的性能表征是在探针台 (成都测芯科技有限公司) 上借助 FS-Pro 半导体参数分析仪 (上海概伦电子股份有限公司) 进行的, 且所有测试都是在实验室暗态空气环境中进行。为了保持测试过程中 PBS 溶液浓度一致, PDMS 小室被固定在器件的工作区域, 滴加的 PBS 溶液体积为 40  $\mu\text{L}$ 。

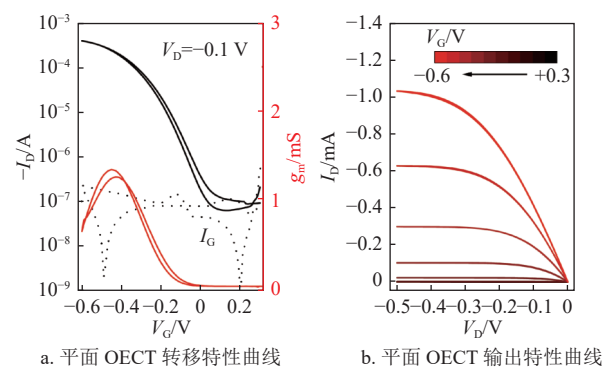
## 2 结果与讨论

### 2.1 OEET 循环稳定性表征

首先, 对基于 p(g2T-T):DtFDA 混合溶液所制备的平面结构 OEET 的基础性能进行了表征。通

过调控施加在平面结构 OEET 的源极、漏极以及栅极上的偏压测得器件的转移特性曲线和输出特性曲线, 如图 2a 和图 2b 所示。对于转移特性曲线测试, 固定漏极偏压  $V_D = -0.1$  V, 源极偏压  $V_S = 0$  V (接地), 栅极偏压  $V_G$  从 +0.3 V 扫至 -0.6 V, 然后再从 -0.6 V 回扫至 +0.3 V, 并且步进为 0.01 V。从图 2a 可以看出, 漏极电流 ( $I_D$ ) 在开态电压 ( $V_{ON}$ ) 之后随着  $V_G$  的增大 (绝对值) 而增大, 平面结构 OEET 从“关态”转变为“开态”; 反之, 在回扫过程中, 平面结构 OEET 从“开态”转变为“关态”; 并且在前扫和回扫过程中分别具有 1.33 mS ( $V_G = -0.45$  V) 和 1.24 mS ( $V_G = -0.43$  V) 的最大  $g_m$ 。对于输出特性曲线测试, 同样固定  $V_S = 0$  V,  $V_D$  从 0 V 扫至 -0.5 V, 然后再从 -0.5 V 回扫至 0 V, 且步进为 0.01 V, 另外  $V_G$  从 +0.3 V 扫至 -0.6 V, 且步进为 0.1 V。从图 2b 可以看出, 起初  $I_D$  随着  $V_D$  的增加而线性增加, 处于 OEET 的线性区; 随着  $V_D$  的持续增加,  $I_D$  的增加趋势逐渐变缓, 达到 OEET 的饱和区; 并且, 当施加的  $V_G$  更负时,  $I_D$  更高, 也更迟到达器件的饱和区。

垂直结构的引入会给 OEET 带来更高的跨导、更短的瞬态响应时间以及更高的循环稳定性<sup>[20]</sup>。基于同样的偏压条件表征了基于 p(g2T-T):DtFDA 混合溶液所制备的垂直结构 OEET 的基础性能, 如图 2c 和图 2d 所示。从图 2c 可以看出, 相比于平面结构 OEET, 垂直结构 OEET 具有更加优越的电学性能。具体来说, 其具有更大的开关电流比 ( $\sim 10^5$ ), 更高的  $g_m$  ( $\sim 60$  mS) 以及更早的  $V_{ON}$ 。而从图 2d 可以看出, 垂直结构 OEET 的输出特性曲线具有与平面结构 OEET 相似的线性区及饱和区, 不同点在于在高  $V_G$  偏压下线性区占比更大, 这可能是由于电极串联电阻及接触电阻相对于沟道电阻来说处于类似或同一量级导致的。



a. 平面 OEET 转移特性曲线

b. 平面 OEET 输出特性曲线

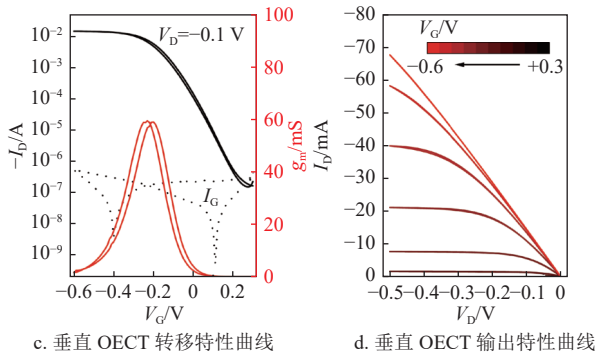


图 2 OEET 基础性能表征

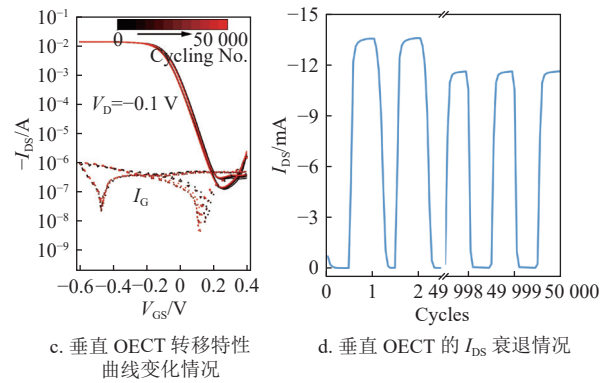
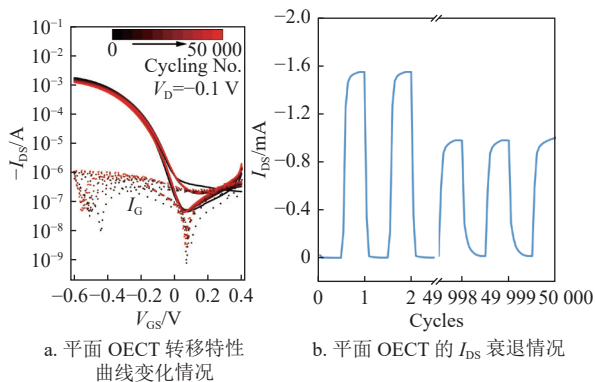


图 3 OEET 循环稳定性表征

OEET 的循环稳定性通常是通过监测 OEET 的  $I_D$  在连续栅极偏压脉冲作用下的响应情况来表征的。本文通过固定  $V_D = -0.1$  V、 $V_S = 0$  V,  $V_G$  设置为频率为 25 Hz、占空比为 0.5 且高低电平分别为 +0.4 V 和 -0.6 V 的周期性脉冲信号, 对上述基于 p(g2T-T) : DtFDA 混合溶液所制备的平面结构和垂直结构 OEET 的循环稳定性进行表征。运行周期总数为 50 000 次, 运行时长为 2 000 s。由于仅从循环稳定性测试过程中  $I_D$  随时间衰退的趋势图中能够获得的信息十分有限, 因此, 在每 5 000 个循环周期后测得一条转移特性曲线 ( $V_G$  从 +0.4 V 扫至 -0.6 V, 再从 -0.6 V 扫至 +0.4 V, 同样固定  $V_D = -0.1$  V、 $V_S = 0$  V)。在相同测试条件下, 平面结构和垂直结构 OEET 的性能都表现出不同程度的衰退, 如图 3 所示。具体来讲, 平面结构 OEET 的转移特性曲线随着循环周期数的增加变化明显, 特别是开态电流 (on-state current,  $I_{ON}$ )。从图 3b 可见,  $I_{ON}$  从第一个循环周期的 -1.55 mA 衰退到了第 50 000 个循环周期的 -0.98 mA, 仅保留了初始  $I_{ON}$  的 63.22%。而对于垂直结构 OEET, 其转移特性曲线在 50 000 个循环周期的稳定性测试过程中几乎没有变化, 并且图 3d 中的  $I_{ON}$  从第 1 个循环周期的 -13.53 mA 仅衰退到第 50 000 个循环周期的 -11.60 mA, 保留了初始  $I_{ON}$  的 85.74%, 远远超过相同条件下制备的平面结构 OEET。



a. 平面 OEET 转移特性曲线变化情况

b. 平面 OEET 的  $I_{DS}$  衰退情况

## 2.2 有机半导体薄膜形貌表征

为了探究 OEET 的衰退机理, 利用光学显微镜对循环稳定性测试前后有机半导体薄膜的表面形貌变化进行了表征。如图 4a 和图 4b 所示, 平面结构 OEET 的有机半导体薄膜由于整体暴露在 PBS 电解质溶液中, 其形貌在循环稳定性测试后发生明显变化。不管是在沟道区域的还是覆盖在源极/漏极上的有机半导体薄膜都明显变得更为粗糙。源极/漏极上所覆盖的有机半导体薄膜颜色略有加深, 同时出现由于薄膜退化导致的孔洞。这些现象说明, 在循环稳定性测试过程中, 由于 PBS 电解质溶液中的离子在栅极偏压的驱动下反复掺杂/去掺杂有机半导体薄膜, 加上源极/漏极上的氧化/还原偏置应力的共同作用以及实验室空气中氧的存在, 加速了有机半导体薄膜的退化, 使其微观结构受到不可逆的破坏而变得更加粗糙, 对平面结构 OEET 的长期稳定运行产生不利影响。

垂直结构 OEET 的有机半导体薄膜由于源极和漏极的垂直堆叠而被遮盖, 因此无法直接对其在循环稳定性测试过程中的形貌变化进行表征。但是, 利用光学显微镜也能够观察到循环稳定性测试前后器件的形貌差异。如图 4c 和图 4d 所示, 在循环稳定性测试后, 失效的垂直结构 OEET 的工作区域形貌发生明显变化: 沟道区域和顶电极 (漏极) 区域出现明显变形变色的现象, 顶电极甚至呈现出与基底脱落的趋势。这些现象说明, 虽然垂直结构能够减少有机半导体薄膜与 PBS 电解质溶液的接触面积, 但是水分子的过度吸收会使得有机半导体薄膜发生不受控制的溶胀, 造成薄膜与电极/基底分离, 甚至引起顶电极的偏移, 这些将使得垂直结构 OEET 的循环稳定性受到限制。

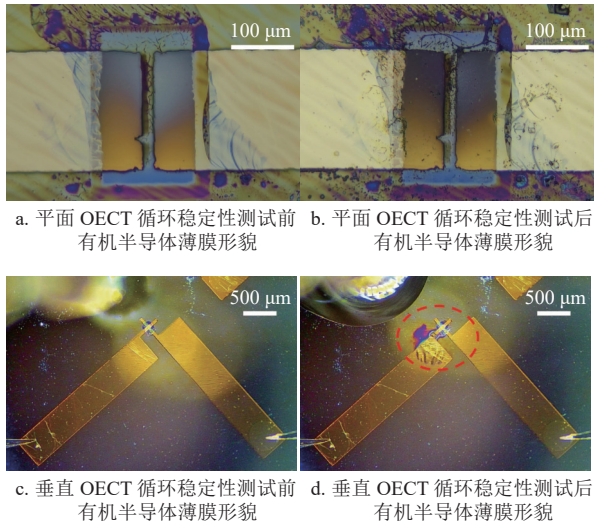


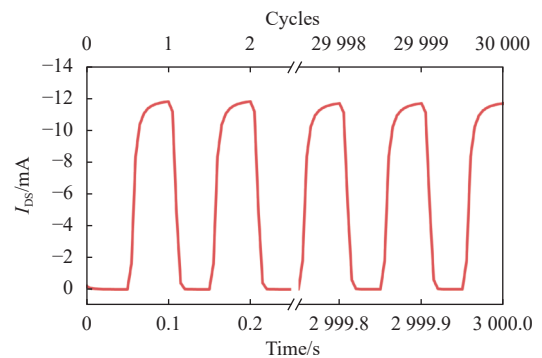
图4 循环稳定性测试前后 OEET 有机半导体薄膜形貌表征

### 2.3 栅极偏置影响

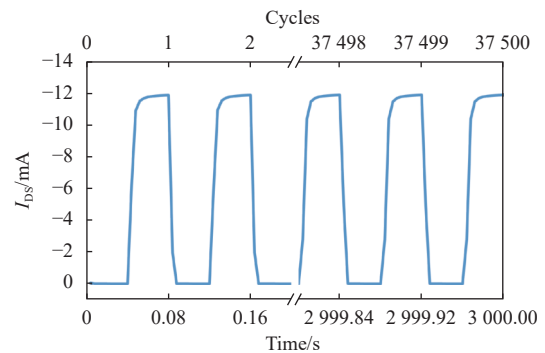
另一方面, 栅极上施加的偏置电压  $V_G$  通过调控电解质中的离子对有机半导体薄膜的掺杂/去掺杂过程, 以改变有机半导体薄膜的电导率, 从而实现  $I_D$  的调制。同时,  $V_G$  的微小变化可以实现  $I_D$  的较大调制, 这也使得 OEET 成为有效的开关的高效放大器。因此, 驱动 OEET 运行的偏置条件也是决定其能否正常工作的关键条件。然而, 循环稳定性测试过程中不同栅极偏置的影响对 OEET 性能退化及其循环次数或运行时长之间的关系尚不明晰。

为此, 对垂直结构 OEET 在不同栅极偏置条件下驱动时的循环稳定性进行了表征。这里同样固定  $V_D = -0.1$  V、 $V_S = 0$  V,  $V_G$  设置为占空比为 0.5 且高低电平分别为 +0.4 V 和 -0.4 V 的周期性脉冲信号, 其频率分别设置为 10、12.5 及 25 Hz, 并且运行时长为统一固定的 3 000 s, 循环稳定性测试结果如图 5 所示。可以看到, 垂直结构 OEET 在不同切换频率的  $V_G$  驱动下仍然表现出良好的循环稳定性。具体来说, 当  $V_G$  切换频率为 10 Hz (循环周期数为 30 000) 时, 图 5a 中的  $I_{ON}$  从第 1 个循环周期的 -11.82 mA 变化到第 3 000 s 的 -11.70 mA, 保留了初始  $I_{ON}$  的 98.98%; 当  $V_G$  切换频率增大到 12.5 Hz (循环周期数为 37 500) 时, 图 5b 中的  $I_{ON}$  从第 1 个循环周期的 -11.86 mA 变化到第 3 000 s 的 -11.87 mA, 保留了初始  $I_{ON}$  的 100.08%; 当  $V_G$  切换频率进一步增大到 25 Hz (循环周期数为 75 000) 时, 图 5c 中的  $I_{ON}$  从第 1 个循

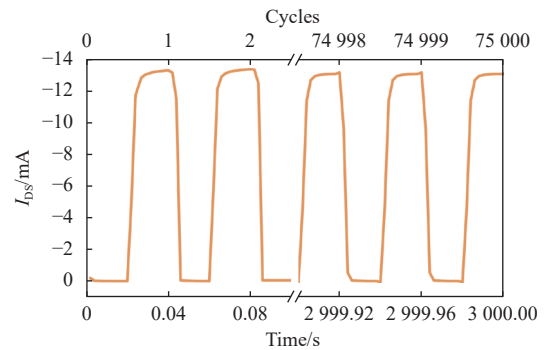
环周期的 -13.35 mA 变化到第 3 000 s 的 -13.22 mA, 保留了初始  $I_{ON}$  的 99.03%。



a.  $V_G$  切换频率为 10 Hz



b.  $V_G$  切换频率为 12.5 Hz



c.  $V_G$  切换频率为 25 Hz

图5 垂直结构 OEET 在不同栅极偏置条件下驱动时的循环稳定性

当以一定的循环周期数来表征垂直结构 OEET 在循环稳定性测试过程中的性能衰退情况时, 从图 5 中可以得到, 当垂直结构 OEET 持续循环运行 30 000 个周期后,  $V_G$  切换频率为 10 Hz (运行时长为 3 000 s)、12.5 Hz (运行时长为 2 400 s) 以及 25 Hz (运行时长为 1 200 s) 偏置条件下对应的  $I_{ON}$  的保留量分别为 98.98%、100.12% 以及 100.82%。

以上实验结果表明, 尽管循环周期数的增加意味着离子对有机半导体薄膜掺杂/去掺杂过程的次数增加, 会引入 OMIEC 微观结构受到破坏的问

题, 从而不利于 OEET 的长期稳定运行。但是垂直结构 OEET 由于源极和漏极的垂直堆叠减缓了有机半导体薄膜反复溶胀过程中的性能退化, 能够在较高开关频率下持续稳定运行大量的循环周期。相比之下, 运行时长与垂直结构 OEET 的循环稳定性之间的联系更为密切。这是由于垂直结构 OEET 的有机半导体薄膜在循环稳定性测试过程中持续受到来自源极和漏极的氧化和还原偏置应力的作用, 并且在此过程中伴随有非电容性法拉第副反应的发生, 加速了垂直结构 OEET 的性能包含循环稳定性的衰退。

### 3 结束语

本文探究了 OEET 在循环稳定性测试过程中的性能衰退规律和相关机理。分析发现, OEET 循环稳定性的衰退是多方面因素共同作用的结果: 在循环稳定性测试过程中, 平面结构 OEET 的有机半导体薄膜由于整体暴露在电解质溶液中, 随着离子的反复掺杂/去掺杂以及电极上偏置应力的共同作用, 其微观结构更容易受到不可逆的破坏, 从而导致平面结构 OEET 表现出较差的循环稳定性; 相比之下, 垂直结构 OEET 的有机半导体薄膜由于源极和漏极的垂直堆叠, 削弱了有机半导体薄膜反复溶胀引起的微观结构破坏, 使其能够在较高开关频率下持续稳定运行大量的循环周期。但是, 源极/漏极上氧化/还原偏置应力的持续作用仍会加速有机半导体薄膜的退化; 同时, 水分子的过度吸收会造成薄膜分离甚至电极漂移, 这些都将成为垂直结构 OEET 循环稳定性的衰退。实验室空气环境中氧的存在也使得非电容性法拉第副反应不可避免, 如氧还原反应等, 同样会对有机电化学晶体管的循环稳定性产生不利影响。除此之外, 垂直结构的引入能够大幅度减少 OMIEC 与环境中空气、水等接触的面积, 这可能延缓 OMIEC 在 OEET 存储过程中的退化, 从而使得垂直结构 OEET 能够具备更优的存储稳定性。

### 参考文献

- [1] LI T, CHERYL KOH J Y, MOUDGIL A, et al. Biocompatible ionic liquids in high-performing organic electrochemical transistors for ion detection and electrophysiological monitoring[J]. *ACS Nano*, 2022, 16(8): 12049-12060.
- [2] WU X, CHEN S, MOSER M, et al. High performing solid-state organic electrochemical transistors enabled by glycolated polythiophene and ion-gel electrolyte with a wide operation temperature range from  $-50$  to  $110$  °C[J]. *Advanced Functional Materials*, 2022, 33(3): 2209354.
- [3] JI J, WANG H, LIU R, et al. Dual-liquid-gated electrochemical transistor and its neuromorphic behaviors[J]. *Nano Energy*, 2021, 87: 106116.
- [4] XIE Z, ZHUGE C, ZHAO Y, et al. All-solid-state vertical three-terminal n-type organic synaptic devices for neuromorphic computing[J]. *Advanced Functional Materials*, 2022, 32(21): 2107314.
- [5] YAO Y, HUANG W, CHEN J, et al. Flexible and stretchable organic electrochemical transistors for physiological sensing devices[J]. *Advanced Materials*, 2023, 35(35): e2209906.
- [6] WANG L, YUE X, SUN Q, et al. Flexible organic electrochemical transistors for chemical and biological sensing[J]. *Nano Research*, 2021, 15(3): 2433-2464.
- [7] NAWAZ A, LIU Q, LEONG W L, et al. Organic electrochemical transistors for in vivo bioelectronics[J]. *Advanced Materials*, 2021, 33(49): e2101874.
- [8] ZHAO Z, TIAN Z, YAN F. Flexible organic electrochemical transistors for bioelectronics[J]. *Cell Reports Physical Science*, 2023, 4(11): 101673.
- [9] FLAGG L Q, BISCHAK C G, ONORATO J W, et al. Polymer crystallinity controls water uptake in glycol side-chain polymer organic electrochemical transistors[J]. *Journal of the American Chemical Society*, 2019, 141(10): 4345-4354.
- [10] FLAGG L Q, GIRIDHARAGOPAL R, GUO J, et al. Anion-dependent doping and charge transport in organic electrochemical transistors[J]. *Chemistry of Materials*, 2018, 30(15): 5380-9538.
- [11] SZUMSKA A A, MARIA I P, FLAGG L Q, et al. Reversible electrochemical charging of n-type conjugated polymer electrodes in aqueous electrolytes[J]. *Journal of the American Chemical Society*, 2021, 143(36): 14795-14805.
- [12] GIOVANNITTI A, RASHID R B, THIBURCE Q, et al. Energetic control of redox-active polymers toward safe organic bioelectronic materials[J]. *Advanced Materials*, 2020, 32(16): e1908047.
- [13] SCHAFFER E A, WU R, MELI D, et al. Sources and mechanism of degradation in p-type thiophene-based organic electrochemical transistors[J]. *ACS Applied Electronic Materials*, 2022, 4(4): 1391-1404.
- [14] MOSER M, HIDALGO T C, SURGAILIS J, et al. Side chain redistribution as a strategy to boost organic electrochemical transistor performance and stability[J]. *Advanced Materials*, 2020, 32(37): e2002748.
- [15] MARIA I P, PAULSEN B D, SAVVA A, et al. The effect of alkyl spacers on the mixed ionic-electronic conduction properties of n-type polymers[J]. *Advanced Functional Materials*, 2021, 31(14): 2008718.
- [16] MOSER M, SAVAGIAN L R, SAVVA A, et al. Ethylene glycol-based side chain length engineering in polythiophenes and its impact on organic electrochemical transistor performance[J]. *Chemistry of Materials*, 2020, 32(15): 6618-6628.
- [17] HÅKANSSON A, HAN S, WANG S, et al. Effect of (3-glycidylxypropyl) trimethoxysilane (GOPS) on the electrical properties of PEDOT: PSS films[J]. *Journal of Polymer Science Part B-polymer Physics*, 2017, 55(10): 814-820.
- [18] ZHENG YQ, LIU Y, ZHONG D, et al. Monolithic optical microlithography of high-density elastic circuits[J]. *Science*, 2021, 373(6550): 88-94.
- [19] WANG Z, ZHUANG X, CHEN Y, et al. Cinnamate-functionalized natural carbohydrates as photopatternable gate dielectrics for organic transistors[J]. *Chemistry of Materials*, 2019, 31(18): 7608-7617.
- [20] HUANG W, CHEN J, YAO Y, et al. Vertical organic electrochemical transistors for complementary circuits[J]. *Nature*, 2023, 613(7944): 496-502.