文章编号: 1007-4252(2025)04-0283-09 DOI: 10.20027/j.gncq.2025.0029 CSTR: 32180.14.j.gncq.2025.0029

基于混合离子电解质的有机电化学晶体管在神经突触模拟中的应用

齐浩荣, 张 蓓*
(新疆大学物理科学与技术学院, 乌鲁木齐 830046)

摘要: 通过将 3 种离子液体 EMIM-TFSI、EMIM-BF_4、EMIM-PF_6 分别与聚合物电解质(PIL, poly(DADMATFSI))混合, 构建混合离子电解质体系。将该体系应用于有机电化学晶体管(OECT)中, 显著提升了其扫描速率和非易失特性, 并实现了生物突触的功能模拟, 为神经形态计算提供了新策略。研究采用电学测试、电化学阻抗谱测试以及多层感知器仿真。结果表明, 基于 EMIM 基离子体系的混合电解质在扫描速率方面表现优异, 其中 EMIM-TFSI 的表现尤为突出。基于 EMIM-TFSI 离子电解质的 OECT 实现了良好的非易失特性和响应快速的离子传输, 成功模拟了生物突触的可塑性。在手写体识别任务中, 该 OECT 的识别率高达 84.2%, 相较于其他两种体系分别提升了 19.1% 和 12.7%。研究结果为开发高性能 OECT 神经突触器件提供了新的思路和方法, 有望推动神经形态计算技术的发展。

关键词: 聚合物电解质; 混合策略; 有机电化学晶体管; 非易失特性; 神经形态计算
中图分类号: TN389 **文献标志码:** A

Application of organic electrochemical transistors based on mixed ionic electrolytes in neural synaptic simulation

QI Haorong, ZHANG Bei*
(School of Physics and Technology, Xinjiang University, Urumqi 830046, China)

Abstract: This study develops hybrid ionic electrolytes by blending EMIM-TFSI, EMIM-BF_4, and EMIM-PF_6 with a polymer electrolyte (poly(DADMATFSI), PIL) to enhance the performance of organic electrochemical transistors (OECTs) for neuromorphic computing. The primary objective is to improve ionic transport speed and non-volatility in OECTs, thereby enabling better emulation of synaptic functions. Device performance was systematically evaluated through electrical characterization techniques, electrochemical impedance spectroscopy, and multilayer perceptron simulations. Results demonstrate that hybrid electrolytes based on EMIM cations significantly enhance ionic mobility, with electrolytes containing EMIM-TFSI exhibiting superior overall performance. OECTs incorporating

收稿日期: 2025−03−13; **修订日期:** 2025−04−09
基金项目: 国家自然科学基金 (No.12164046).
作者简介: 齐浩荣 (1997—), 男, 硕士研究生, 主要研究方向为有机化学晶体管 (E-mail: qihaorong1023@163.com).
通信作者: 张 蓓 (1981—), 女, 博士, 教授, 主要研究方向为低维凝聚态理论 (E-mail: zhb@xju.edu.cn).

EMIM-TFSI-based electrolytes displayed rapid ionic transport and robust non-volatile properties, effectively mimicking synaptic plasticity. In a handwritten digit recognition task, the OECT device employing EMIM-TFSI-modified electrolytes achieved an accuracy of 84.2%, surpassing the other two electrolyte systems by 19.1% and 12.7%, respectively. This work provides valuable insights and methodologies for advancing high-performance artificial synaptic OECTs, holding promising implications for future neuromorphic computing technologies.

Key words: polymer electrolyte; blending strategy; OECT; non-volatility; neuromorphic computing

0 引言

在大数据时代，图像、文字、声音、视频等多维数据呈现爆炸式增长，使得传统冯·诺依曼架构计算机在存储和运算方面面临巨大挑战，难以满足海量数据的高效处理需求[1-3]。人脑作为一种高度复杂的生物智能系统，具有并行处理、自适应学习及低功耗等显著优势，能够高效处理复杂信息[4-5]。近年来，模仿人脑工作模式的神经形态计算技术受到广泛关注。人工突触作为该技术的核心组件，能够模拟生物突触的可塑性，并通过调控神经网络权值实现记忆功能，为突破传统计算架构的局限性提供了潜在的解决方案[6-9]。

有机电化学晶体管（organic electrochemical transistor，OECT）作为一种新型非易失性电子器件，能够有效模拟短期可塑性（STP）、长时程增强（LTP）、长时程抑制（LTD）以及尖峰时间依赖性可塑性（STDP）生物突触等多种基本功能，成为连接有机半导体与神经元突触功能的重要桥梁[10-11]。

近年来，为实现 OECT 的非易失特性，科学家开展了大量研究工作。2021 年，Ji 等[12]采用聚(3,4-乙烯二氧噻吩):甲苯磺酸盐/聚四氢呋喃（PEDOT:Tos/PTHF）复合材料作为活性层，发现其非易失特性与 PEDOT:Tos 和 PTHF 的质量比密切相关，通过优化质量比，成功抑制了离子迁移，使器件获得显著的非易失特性和较长的保持时间。然而，该方法在提升器件性能的同时，对离子迁移的控制较为复杂，且在一定程度上受限于材料本身的特性。此外，尽管该方案模拟了双脉冲易化（PPF）、兴奋突触后电流（EPSC）以及短期记忆（STM）到长期记忆（LTM）转变的突触可塑性，但在扫描速度和电导率方面仍有提升的空间。2023 年，Choi 等[13]通过选择性地将交联剂与聚 (3-己基噻吩-2,5-二基)（P3HT）的烷基链结合，有效抑制了离子在 P3HT 与电解质之间的流动，从而延长了电流保持时间。但该方法对交联剂的选择和反应条件的控制要求较高，可能影响器件的稳定性和重复性。2021 年，Quill 等[14]采用聚合物电解质控制离子吸收，并通过调控电解质中的自由电荷运动，成功优化了基于 OECT 神经形态器件的扫描速度和保持时间，使其具有非易失特性。然而，该器件仍存在扫描速度和离子电导率较低的问题，在实际应用中可能限制其对生物突触功能的高效模拟。综上所述，为实现优异的突触功能，仍需对 OECT 的非易失特性进行进一步优化。

传统离子液体 1-乙基-3-甲基咪唑啉双 (三氟甲基磺酰基) 亚胺 (EMIM-TFSI)、1-乙基-3-甲基咪唑四氟硼酸盐 (EMIM-BF_4) 以及 1-乙基-3-甲基咪唑六氟磷酸盐 (EMIM-PF_6) 具有响应迅速的优点，但电流保持水平较低；而聚合物电解质虽然在电流保持方面表现出色，但存在响应时间过长和扫描速度较慢的缺陷。因此，如何实现二者的性能协调成为提升器件综合性能的关键。针对这一问题，本研究提出混合电解质的策略并应用于 OECT。具体而言，将上述 3 种离子液体与聚合物电解质（PIL，poly(DADMATFSI)）混合，形成混合离子电解质。这一策略不仅优化了离子迁移速率，还成功模拟了 EPSC、PPF、STM 和 LTM 等生物突触功能，同时增强了 OECT 的非易失性，使其在突触模拟中表现出更高的动态范围和识别精度。研究结果表明，EMIM-TFSI 的表现尤为突出，在手写体识别任务中，基于该电解质的 OECT 取得了高达 84.2% 的识别率，相比其他两种体系的识别率分别提升了 19.1% 和 12.7%。

1 实验

1.1 原材料

聚（3-己基噻吩-2,5-二基）（P3HT）、1-乙基-3-

甲基咪唑啉双(三氟甲基磺酰基)亚胺(EMIM-TFSI)、1-乙基-3-甲基咪唑四氟硼酸盐(EMIM-BF_4)、1-乙基-3-甲基咪唑六氟磷酸盐(EMIM-PF_6)和聚偏氟乙烯-六氟丙烯(PVDF-HFP 购)自 Sigma 公司; 聚(二烯丙基二甲基胺)双(三氟甲烷磺酰基)酰亚胺(poly(DADMATFSI))购自默尼森(南京)科技有限公司; 氯苯(分析纯)购自 Sigma 公司; 丙酮(分析纯)、异丙醇(分析纯)购自上海国药集团化学试剂有限公司; 去离子水由实验室自制; AZ5214 型光刻和 AM300MF 型显影液购自西安博研微纳信息科技有限公司。

1.2　突触器件制备

1.2.1　溶液配制

首先, 将 P3HT 溶解于氯苯溶剂中, 配制质量浓度为 10 mg·ml^{-1} 的溶液; 然后, 将 3 种离子液体 EMIM-TFSI、EMIM-BF_4 和 EMIM-PF_6 分别与 poly(DADMATFSI)混合, 形成质量分数为 70% 的混合电解质; 最后, 将 PVDF-HFP、混合电解质和丙酮按 1:4:4 的质量比混合后置于密封容器, 并在 80 ℃ 下加热搅拌直至形成透明均一的溶胶。

1.2.2　基板制备与清洗

在钠光灯氛围下, 采用旋涂工艺将光刻胶均匀涂覆于硅衬底表面(其上有 300 nm 厚 SiO_2 涂层), 设置旋涂转速为 1500 r·min^{-1}, 时间为 60 s; 随后在 105 ℃ 下烘烤 5 min, 经光刻机曝光 6 s 后浸入显影液中显影 40 s; 最后通过磁控溅射在硅片上形成 Cr(5 nm)/Au(50 nm)电极。

将沉积电极后的硅片裁成 1 cm×1 cm 的小硅片, 分别浸入超纯水、丙酮和异丙醇中进行超声清洗(10 min), 再用惰性气体吹干, 并用等离子清洗机进行清洗, 最后密封保存在手套箱中备用。

1.2.3　突触器件制备

将制备好的 P3HT 溶液以 1500 r·min^{-1} 转速旋涂(40 s)于洁净的硅片上, 并在 130 ℃ 下加热 5 min, 最后采用滴涂法将混合电解质溶液滴涂在源漏栅电极上。整个器件制备流程均在超级净化手套箱中的氩气环境下完成。

1.3　突触器件的电学性能表征

采用 2912B 数字源表(美国 Keithley 公司)搭配探针台对 OECT 的电学性能进行表征; 采用电化学工作站(荷兰 Ivium Vertex)对电解质层的阻抗特性进行表征。

1.4　人工突触模拟

使用基于多层感知器的神经网络模拟器(NeuroSimV3.0)对突触器件进行基准测试[15]。

为更准确评估突触器件在电导调制过程中的非理想特性, 特别是在 LTP 与 LTD 过程中所表现出的非线性(如初始响应迅速而后趋于饱和)行为, 需引入量化指标对权重变化的非线性程度进行评价。NeuroSimV3.0 采用非线性因子 NL 来表征导电性随脉冲的变化对线性行为的偏离程度, 这也是衡量器件学习性能的重要参数。

LTP 和 LTD 过程的电导变化曲线可采用如下模型进行拟合:

$$G_{\mathrm{LTP}} = B\{1-\exp[1-\exp(-P/A_{\mathrm{P}})]\}+G_{\min} \tag{1}$$

$$G_{\mathrm{LTD}} = -B[1-\exp(P-P_{\max})/A_{\mathrm{D}}]+G_{\max} \tag{2}$$

$$B = (G_{\max}-G_{\min})/[1-\exp(P_{\max}/A_{\mathrm{P,D}})] \tag{3}$$

式中, G_{LTP} 和 G_{LTD} 分别为 LTP 和 LTD 区域的电导值, $G_{\min}$ 和 $G_{\max}$ 分别为电导的最小值和最大值, P 为施加的脉冲数, A_{P} 和 A_{D} 分别表示曲线在 LTP 和 LTD 区域的非线性程度, B 为归一化电导范围的拟合常数。

2　结果与讨论

2.1　电学性能分析

如图 1(a)所示, 选用 P3HT 作为活性层, 将 3 种离子液体 EMIM-TFSI、EMIM-BF_4 和 EMIM-PF_6 与聚电解质(PIL)混合作为电解质材料, 制备了共平面侧栅结构的 OECT。以栅极(gate, G)作为突触前端, 源漏(source, S; drain, D)作为突触后端, 构建了突触仿生器件。在栅极上施加 2.5 V→−4.5 V→2.5 V 的电压(V_{G}), 源漏电极间保持−0.5 V 的恒定电压(V_{DS}), 记录沟道电流(I_{DS})在栅极调控下的变化。图 1(b)展示了基于 3 种离子体系器件的转移特性曲线, 可以看到, 在正负栅压扫描过程中, 器件呈现出显著的回滞现象。

为更好地评估器件性能, 定义了若干关键指标, 包括阈值电压 V_{th}、最大电流 $I_{\mathrm{on,max}}$、回滞窗口电压 Δ_{hys} 和跨导 g_{m}。其中, 最大电流 $I_{\mathrm{on,max}}$ 可通过测量最大导通电流来获得, Δ_{hys} 表示源漏电流达到

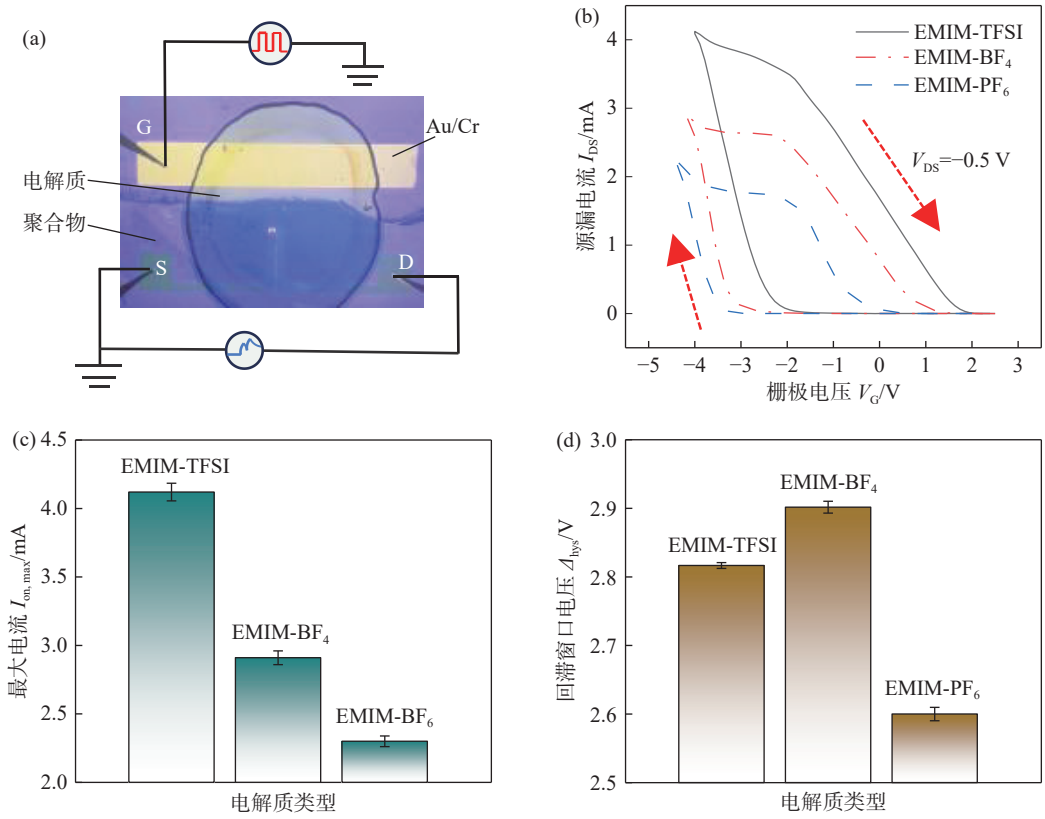

图 1 (a) 共平面栅极 OECT 的光学显微图; (b) 混合离子电解质器件的转移特性曲线; (c) 混合离子电解质最大开启电流 $I_{on,max}$; (d) 混合离子电解质回滞窗口电压

Fig. 1 (a) Optical micrograph of the coplanar gate OECT. (b) Transfer characteristics of the mixed ionic electrolyte devices. (c) $I_{on,max}$ of the mixed ionic electrolyte. (d) Hysteresis window voltage of hybrid ionic electrolytes

$I_{on,max}/2$ 时的电压差[16]。如图 1(c)所示，$[TFSI]^-$、$[BF_4]^-$和 $[PF_6]^-$离子的 $I_{on,max}$ 分别为 4.12 mA、2.91 mA 和 2.30 mA。其中，$[TFSI]^-$离子的 $I_{on,max}$ 相较于 $[BF_4]^-$和 $[PF_6]^-$离子分别提高了 41.6% 和 79.1%。这一现象可能是由于 $[BF_4]^-$和 $[PF_6]^-$离子的极性较低，当它们与 poly(DADMATFSI) 混合时，会与其中的官能团发生相互作用，导致整体导电性的下降。如图 1(d)所示，$[TFSI]^-$、$[BF_4]^-$和 $[PF_6]^-$离子的 Δ_{hys} 分别为 2.81 V、2.90 V 和 2.60 V，表明基于这几种离子的电解质均表现出显著的记忆效应，适合作为突触器件的候选材料。

如表 1 所示，在 12 $mV\cdot s^{-1}$ 的描速度下，基于纯 poly(DADMATFSI) 电解质无法成功制备器件。这是由于纯聚电解质的响应速度过于缓慢。相比之下，基于混合电解质的 OECT 具有更高的扫描速度，这得益于 EMIM 基离子液体的加入所导致的可移动阳离子和阴离子数量的增加，从而加速了电荷的传输过程。另外，发现 3 种阴离子 $[TFSI]^-$、$[BF_4]^-$、$[PF_6]^-$的阈值电压存在明显差异，这可能是由于不同半径的阴离子与 PIL 混合后，其离子迁移率在电场作用下发生了变化[17]。

表 1 基于不同电解质的 OECT 特性总结

Table 1 Summary of OECT properties based on different electrolytes

电解质类型	扫描速度/($mV\cdot s^{-1}$)	V_{th}/V	g_m/mS	文献
PIL	5	—	—	[14]
纯poly(DADMATFSI)	12	—	—	本研究
EMIM-TFSI	216	−0.83	200.62	本研究
EMIM-BF_4	224	−0.99	17.21	本研究
EMIM-PF_6	216	−1.11	1.09	本研究

OECT 的瞬态特性反映了器件的电荷传输和离子扩散行为，其响应速度是突触模拟中的关键因素[18]。本实验中，对基于不同电解质的 3 种器件施

加相同大小的栅极电压, 计算电流从初始状态到稳态的响应时间以及撤去栅压后的离子弛豫时间, 进而实现对 OECT 瞬态特性的表征。从图 2(a)~(b)可以看出, 3 种离子类型器件的响应时间分别为 $\tau_{res\text{-}TFSI^-}$ =1.68 s、$\tau_{res\text{-}BF4^-}$ =1.76 s、$\tau_{res\text{-}PF6^-}$ =4.43 s, 弛豫时间分别为 $\tau_{rel\text{-}TFSI^-}$ =4.88 s、$\tau_{rel\text{-}BF4^-}$ =1.71 s、$\tau_{rel\text{-}PF6^-}$ =8.69 s。结果表明, [TFSI]$^-$在响应时间和离子弛豫时间方面表现出更适用于突触模拟的潜力。接下来, 从内在机理的角度深入分析造成各器件响应时间差异的原因。

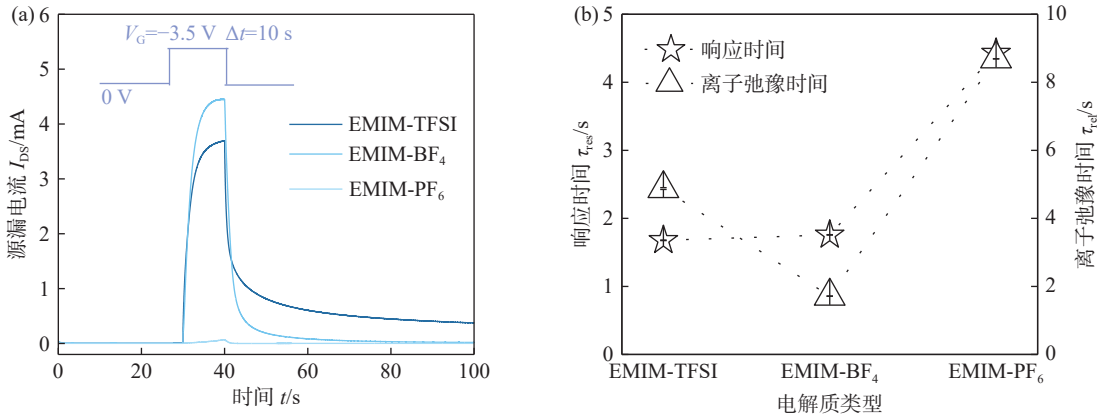

图 2　(a) EMIM 基混合离子电解质的瞬态响应曲线, 脉冲幅值为−3.5 V, 脉冲宽度为 10 s; (b) EMIM 基混合离子电解质的响应时间与弛豫时间

Fig. 2 (a) Transient response curve of the EMIM-based mixed ionic electrolyte. Pulse amplitude is −3.5 V, pulse width is 10 s. (b) Response time and relaxation time of EMIM-based mixed ionic electrolytes

2.2　电化学阻抗谱(EIS)分析

为进一步研究混合电解质对电化学性能的影响, 采用恒压法对不同混合离子的 EIS 进行了测试。如图 3(a)所示, 相较于 [BF$_4$]$^-$和 [PF$_6$]$^-$离子, [TFSI]$^-$离子在阻抗图上表现出更大的斜率, 表明其扩散过程受阻抗的影响更为显著。这一现象可能与 3 种离子的半径有关: [TFSI]$^-$的半径较大, 导致其在电场作用下的迁移率受到限制。同时, 这也间接解释了 [TFSI]$^-$具有更优的电流保持特性的原因。为定量比较混合聚合物电解质的离子电导率, 通过电路拟合对 EIS 进行了分析, 得到 EMIM-TFSI、EMIM-BF$_4$ 和 EMIM-PF$_6$ 电解质的电阻值 (R_b) 分别为 64.60 Ω、50.35 Ω 和 152.80 Ω。依据下式可计算出混合电解质的电导率 σ[19]:

$$\sigma = \frac{1}{R_b}\frac{l}{A} \tag{4}$$

式中, l 为电解质厚度, A 为面积。计算结果如图 3(b)所示, EMIM-TFSI、EMIM-BF$_4$ 和 EMIM-

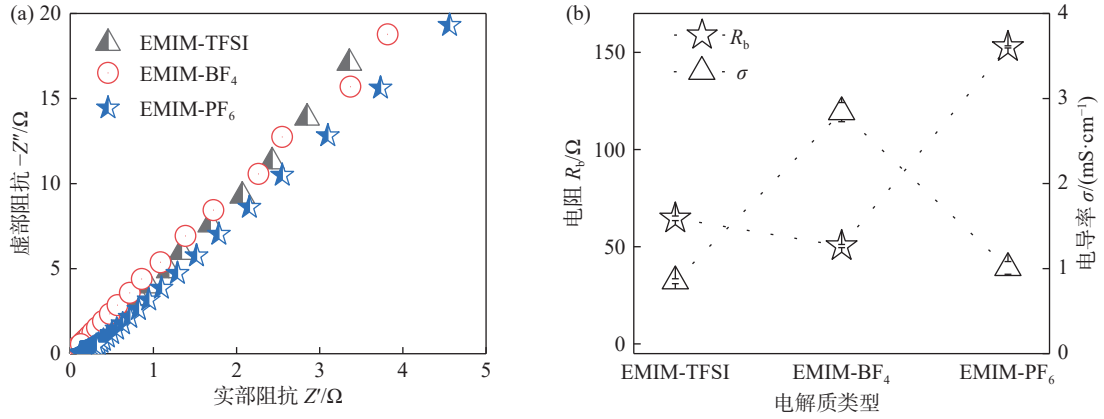

图 3　(a) 3 种混合离子电解质的电化学阻抗图; (b) 3 种混合离子电解质的电阻与电导率

Fig. 3 (a) Electrochemical impedance spectra of 3 mixed ionic electrolytes. (b) Resistance and ionic conductivity of 3 mixed ionic electrolytes

PF_6 混合电解质的电导率分别为 0.85 $mS·cm^{-1}$、2.84 $mS·cm^{-1}$ 和 1.01 $mS·cm^{-1}$。

基于德鲁德模型，电导率一般可表示为：

$$\sigma = n_i q_i \mu_i \tag{5}$$

式中，n_i 为移动离子的浓度，q_i 为离子电荷，μ_i 为离子迁移率，i 表示不同类型的离子。在本研究中，3 种离子体系中 PIL 的添加比例均为 30%(质量分数)，且离子液体浓度相同，因此 n_i 与 q_i 在各组样品间差异较小，可近似被视为常量。可见，不同体系间电导率的差异主要源于离子迁移率 μ_i。这一推论可通过 Stokes–Einstein 方程进一步验证：

$$\mu_i = \frac{q_i}{6\pi\eta r_i} \tag{6}$$

式中，r_i 为离子半径，η 为液体黏度。在实验中，添加了同质量的 PIL 和离子液体，因此 η 和 q_i 为常量。由此可见，离子迁移率 μ_i 的值主要取决于离子半径 r_i 的大小，r_i 越小，μ_i 越大。这与 3 种离子体系的电导率测试结果一致，表明不同离子的迁移率差异是导致其电导率不同的主要原因。

2.3 人工突触模拟

为验证器件的非易失特性，研究了脉冲数目对 LTP 的影响。如图 4(a)~(c)所示，当施加的脉冲数目从 10 次逐步增加至 200 次时，在 3 种器件中均观察到了 STP 向 LTP 转变的现象。该现象与神经突触传递信息的过程高度相似：当突触前神经元被多个动作电位触发时，会释放大量神经递质，从而提升神经元之间的传递效率[20]。数据表明，该器件具有优异的非易失特性。器件的电流记忆水平[16]可通过相关参数进行评估：

$$R_{60} = \frac{I_{EPS-60}}{I_{EPS-max}} \times 100\% \tag{7}$$

式中，I_{EPS-60} 为读取脉冲结束 60 s 后的突触后电流值，$I_{EPS-max}$ 为最大突触后电流值。此外，如图 4(d)所示，在 200 个脉冲下，$[BF_4]^-$和 $[PF_6]^-$的电流记忆水平分别为 2.0% 和 4.1%，而 $[TFSI]^-$的电流记忆水平高达 35.1%。这表明相比于 $[BF_4]^-$和 $[PF_6]^-$，$[TFSI]^-$更有可能成为三端有机突触晶体管的理想电解质离子。

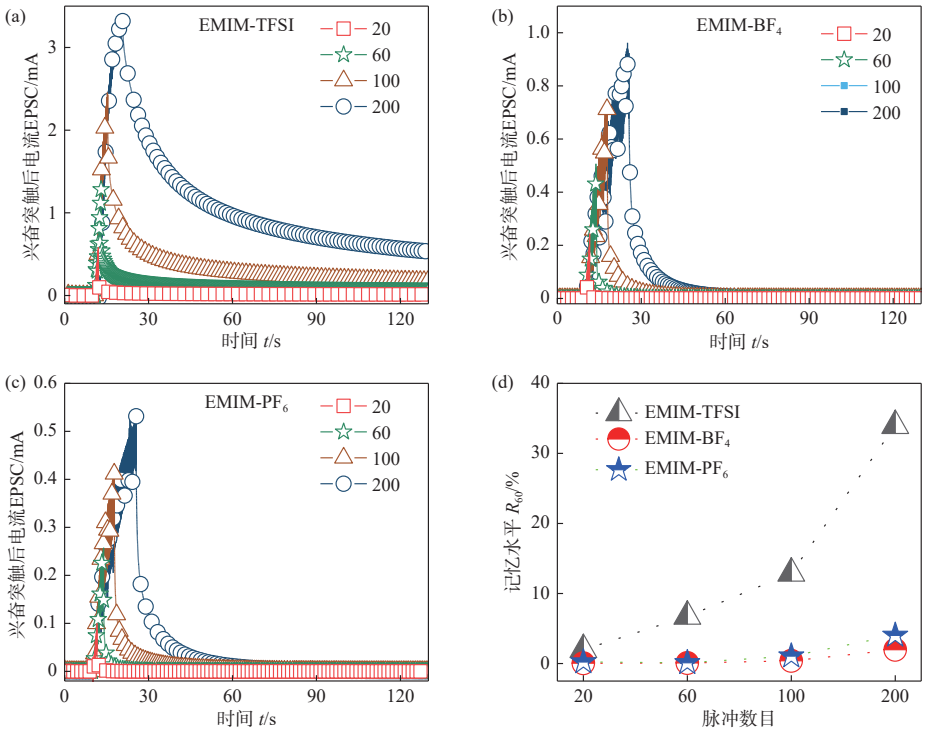

图 4 不同脉冲数目下 (a) EMIM-TFSI、(b) EMIM-BF_4 和 (c) EMIM-PF_6 器件的 EPSC；(d) 不同脉冲数目下的电流记忆水平，脉冲幅值、脉冲宽度和脉冲间隔分别为−3.5 V、20 ms 和 10 ms

Fig. 4 EPSC of (a) EMIM-TFSI-, (b) EMIM-BF_4-, and (c) EMIM-PF_6-based devices with different pulse numbers. (d) Current retention levels under varying pulse numbers. Pulse amplitude, pulse width and pulse interval are −3.5 V, 20 ms and 10 ms, respectively

图 5(a)展示了 EMIM 基器件 PPF 指数(i_{PPF})的计算方法。当脉冲振幅和间隔分别为为−3.5 V 和 45 ms 时，$[PF_6]^-$器件第 2 个突触前脉冲诱导的 EPSC 值(5.42 μA)是第 1 个脉冲(4.26 μA)的 1.27 倍，$[BF_4]^-$器件第 2 个突触前脉冲诱导的 EPSC 值(16.74 μA)是第 1 个脉冲(13.84 μA)的 1.21 倍，而 $[TFSI]^-$器件第 2 个突触前脉冲诱导的 EPSC 值(192.60 μA)比第 1 个脉冲(110.58 μA)大 1.74 倍。这表明，与 $[BF_4]^-$和 $[PF_6]^-$器件相比，$[TFSI]^-$器件的突触后电流更容易产生。如图 5(b)所示，$[TFSI]^-$、$[BF_4]^-$和 $[PF_6]^-$器件的 PPF 指数 i_{PPF} 均可用下式中的双指数函数进行拟合:

$$i_{PPF} = 1 + C_1 \exp\left(\frac{-t}{\tau_1}\right) + C_2 \exp\left(\frac{-t}{\tau_2}\right) \tag{8}$$

式中，t 为脉冲间隔时间，C_1 和 C_2 为各相的初始量，τ_1 和 τ_2 为弛豫时间常数。这种双指数衰减行为与生物突触中突触易化的衰减特性相符。τ_1 和 τ_2 可分别用于模拟突触快速衰减阶段与缓慢衰减阶段的弛豫时间[21]。如表 2 所示，$[TFSI]^-$器件的 τ_1 和 τ_2 分别为 47.31 ms 和 412.65 ms，与基于其他两种离子的器件相比，显示出更快的响应速度。

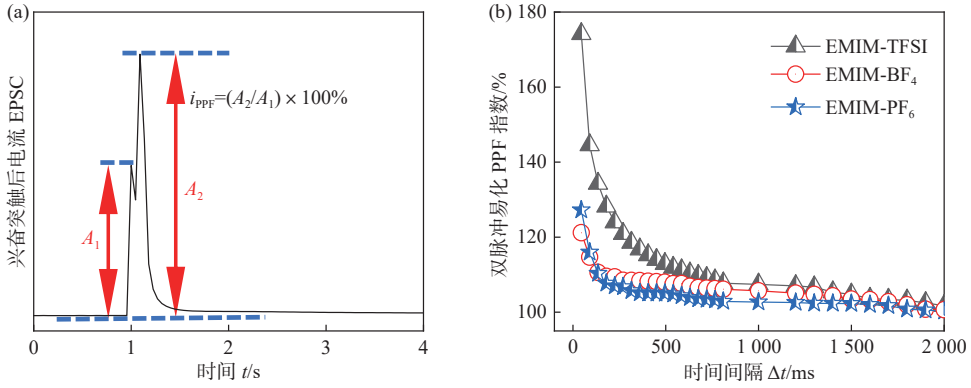

图 5　(a) PPF 指数的计算方法; (b) 对 EMIM-TFSI、EMIM-BF_4 和 EMIM-PF_6 的双指数衰减函数拟合

Fig. 5　(a) Calculation method for PPF index. (b) Bi-exponential decay function fitting for EMIM-TFSI, EMIM-BF_4, and EMIM-PF_6

表 2　利用双指数函数拟合器件 PPF 指数所得的参数

Table 2　Parameters obtained in the bi-exponential fitting of PPF in the devices

电解质类型	τ_1/ms	τ_2/ms
EMIM-TFSI	47.31	412.65
EMIM-BF_4	54.25	874.85
EMIM-PF_6	55.54	1218.06

接下来对器件的稳定性进行评估。图 6(a)~(c)展示了 $[TFSI]^-$、$[BF_4]^-$和 $[PF_6]^-$器件在 10000 次读写训练后的循环耐久性表现。无须在每次训练中对突触进行持续更新，10000 个周期的权重更新足以完成 MNIST 数据集的训练[22]。每个周期包括 200 个相同的负脉冲和 200 个相同的正脉冲。在 10000 次训练后，$[TFSI]^-$器件的通道电流仅下降 2.79%，而 $[BF_4]^-$和 $[PF_6]^-$器件分别下降 11.35% 和 4.26%。尽管通道电流值有所下降，但这其循环行为均未受到显著影响。器件耐久性的降低可能与极性离子同聚合物链的相互作用有关。

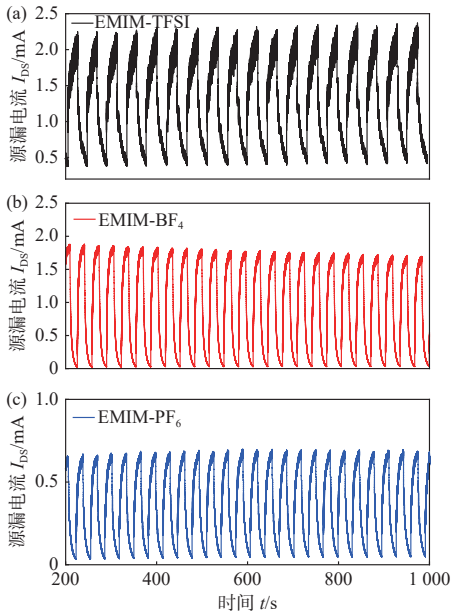

图 6　(a) EMIM-TFSI、(b) EMIM-BF_4 和 (c) EMIM-PF_6 的循环稳定性

Fig. 6　Cycling stability of (a) EMIM-TFSI, (b) EMIM-BF_4, and (c) EMIM-PF_6

最后，基于上述 OECT 构建监督学习的人工神经网络，实现了对手写数字的识别。图 7 展示了神经网络训练的结构图，包含 400 个输入神经元、100 个隐藏神经元以及 10 个输出神经元。

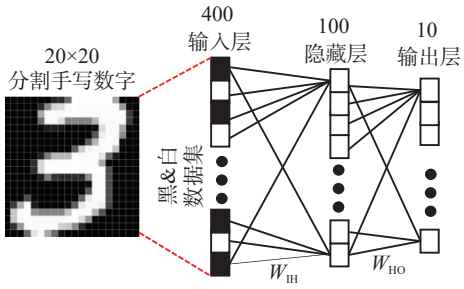

图 7 人工神经网络结构示意图

Fig. 7 Schematic diagram of an artificial neural network structure

人工突触模拟的准确率取决于 LTP/LTD 过程的非线性度 NL 和动态范围。图 8(a)展示了 EMIM-TFSI、EMIM-BF_4 和 EMIM-PF_6 电解质的归一化电导，从中可拟合出其 LTP/LTD 过程的非线性因子分别为 1.84/5.01、3.34/5.41 和 0.82/7.01（图 8(b)），对应的动态范围分别为 62.6、42.3 和 32(图 8(c))。突触器件的动态范围(G_{max}/G_{min} 值)均超过 10，这是成功实现图像识别任务所需的最小值[23]。如图 8(d)所示，经过 125 次训练后，基于 EMIM-TFSI、EMIM-BF_4 和 EMIM-PF_6 电解质的理想器件可达到 95%的手写数字识别率，实际器件的识别率分别为 84.2%、70.7% 和 74.7%。这表明经 EMIM-TFSI 优化后的聚电解质显著提升了 OECT 的动态范围。高动态范围与优异的电流保持特性有助于提高神经形态计算过程中的准确率。

3 结论

本文基于混合离子策略提出了一种提升 OECT 非易失性的有效方案，并成功模拟了突触的 EPSC、PPF 和 LTP 等特性。研究结果表明，采用 EMIM-TFSI 混合聚电解质可显著提高器件的扫描速率和

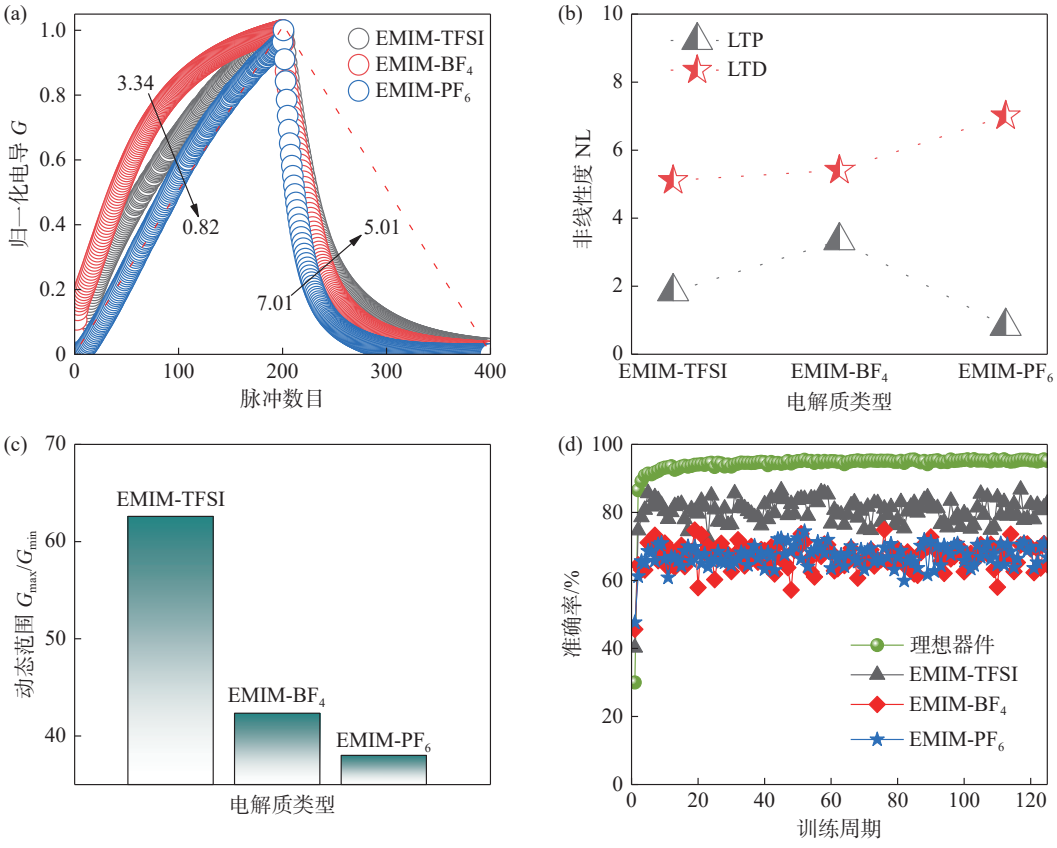

图 8 EMIM-TFSI、EMIM-BF_4 和 EMIM-PF_6 的 (a) 归一化电导、(b) 非线性度、(c) 动态范围和 (d) 图像识别准确率

Fig. 8 (a) Normalized conductivity, (b) nonlinearity, (c) dynamic range, and (d) image recognition accuracy of EMIM-TFSI, EMIM-BF_4, and EMIM-PF_6

非易失性, 记忆水平提升幅度达 35.1%。在神经网络仿真中, 该 OECT 器件的识别率高达 84.2%, 较其他两种体系分别提升了 19.1% 和 12.7%。本文研究通过混合离子策略有效平衡了单一电解质在响应时间与电流保持之间的矛盾, 为有机人工突触器件的材料设计提供了新思路, 并有望推动 OECT 在智能计算与脑机接口等领域的进一步应用。

参考文献:

[1] FULLER E J, KEENE S T, MELIANAS A, et al. Parallel programming of an ionic floating-gate memory array for scalable neuromorphic computing[J]. Science, 2019, 364(6440): 570-574.

[2] PARK S M, WON Y, OH J H, et al. Enhancement of synaptic behavior in organic electrochemical transistors via the introduction of layer-by-layer grown metal-organic framework[J]. Advanced Materials Technologies, 2025, 10(6): 2401316.

[3] XIA Q, YANG J J. Memristive crossbar arrays for brain-inspired computing[J]. Nature Materials, 2019, 18(4): 309-323.

[4] KUDITHIPUDI D, SCHUMAN C, VINEYARD C M, et al. Neuromorphic computing at scale[J]. Nature, 2025, 637 (8047): 801-812.

[5] 章鹏, 陈耿旭. 基于二维铁电钙钛矿的人工光突触晶体管制备与性能研究 [J]. 功能材料与器件学报, 2025, 31(1): 64-69.

[6] GKOUPIDENIS P, KOUTSOURAS D A, MALLIARAS G G. Neuromorphic device architectures with global connectivity through electrolyte gating[J]. Nature Communications, 2017, 8: 15448.

[7] 胡俊达, 刘昊, 徐辛, 等. 基于 Ag/CeO_2/ITO 忆阻器的片上学习神经网络 [J]. 功能材料与器件学报, 2024, 30(2): 104-112.

[8] 朱赛克, 赵毅. 面向神经形态系统的突触器件及芯片综述与展望 [J]. 功能材料与器件学报, 2024, 30(6): 287-299.

[9] ROY K, JAISWAL A, PANDA P. Towards spike-based machine intelligence with neuromorphic computing[J]. Nature, 2019, 575(7784): 607-617.

[10] KIM K, CHEN C L, TRUONG Q, et al. A carbon nanotube synapse with dynamic logic and learning[J]. Advanced Materials, 2013, 25(12): 1693-1698.

[11] 秦瑞东, 陈玲丽, 朱宇波, 等. 忆阻器及其在人工突触器件中的研究进展 [J]. 功能材料与器件学报, 2021, 27(6): 494-504.

[12] JI X, PAULSEN B D, CHIK G K K, et al. Mimicking associative learning using an ion-trapping non-volatile synaptic organic electrochemical transistor[J]. Nature communications, 2021, 12: 2480.

[13] CHOI Y, HO D H, KIM S, et al. Physically defined long-term and short-term synapses for the development of reconfigurable analog-type operators capable of performing health care tasks[J]. Science Advances, 2023, 9(27): eadg5946.

[14] QUILL T J, LECROY G, MELIANAS A, et al. Ion pair uptake in ion gel devices based on organic mixed ionic-electronic conductors[J]. Advanced Functional Materials, 2021, 31(47): 2104301.

[15] CHEN P Y, PENG X, YU S. NeuroSim+: An integrated device-to-algorithm framework for benchmarking synaptic devices and array architectures[C]//Proceedings of the 2017 IEEE International Electron Devices Meeting. New York: IEEE, 2017: 6.1.1-6.1.4.

[16] SUNG M J, SEO D G, KIM J, et al. Overcoming the trade-off between efficient electrochemical doping and high state retention in electrolyte-gated organic synaptic transistors[J]. Advanced Functional Materials, 2024, 34(14): 2312546.

[17] MOUSAVI M P S, WILSON B E, KASHEFOLGHETA S, et al. Ionic liquids as electrolytes for electrochemical double-layer capacitors: structures that optimize specific energy[J]. ACS Applied Materials & Interfaces, 2016, 8(5): 3396-3406.

[18] YANG A, SONG J, LIU H, et al. Wearable organic electrochemical transistor array for skin-surface electrocardiogram mapping above a human heart[J]. Advanced Functional Materials, 2023, 33(17): 2215037.

[19] LEE H, CHO J, JIN M, et al. Electrochemical analysis of ion effects on electrolyte-gated synaptic transistor characteristics[J]. ACS Nano, 2024, 18(7): 5383-5395.

[20] ALCAMÍ P, PEREDA A E. Beyond plasticity: the dynamic impact of electrical synapses on neural circuits[J]. Nature Reviews Neuroscience, 2019, 20(5): 253-271.

[21] ZUCKER R S, REGEHR W G. Short-term synaptic plasticity[J]. Annual Review of Physiology, 2002, 64(1): 355-405.

[22] YU F, ZHU L Q, XIAO H, et al. Restickable oxide neuromorphic transistors with spike-timing-dependent plasticity and Pavlovian associative learning activities[J]. Advanced Functional Materials, 2018, 28(44): 1804025.

[23] KIM M K, LEE J S. Ferroelectric analog synaptic transistors[J]. Nano Letters, 2019, 19(3): 2044-2050.