文章编号:1000-7032(2023)06-1085-27

# 基于低维材料的神经形态器件研究进展

刘依婷<sup>1</sup>,万 军<sup>1</sup>,邱晨光<sup>2\*</sup>,赵建文<sup>3\*</sup>,王 华<sup>4</sup> (1.中国计量大学计量测试工程学院,浙江杭州 310020; 2.北京大学电子学院,北京 100871; 3.中国科学院苏州纳米技术与纳米仿生研究所器件部,江苏苏州 215125; 4.太原理工大学新材料界面科学与工程教育部重点实验室,山西太原 030024)

**摘要**:大数据和物联网时代的到来使得传统冯·诺依曼架构的计算机在数据处理过程中面临极大的挑战,存 算分离的架构从根本上限制着计算机的计算速度和能效,迫切地需要开发一种新的计算范式来应对当前面临 的问题和挑战。近年来,神经形态计算以高度的并行处理、极低功耗和存算一体的特征受到广泛关注。其中, 具有独特物理机制的新型神经形态器件是构建神经形态芯片的基本底层单元。在构建神经形态器件的众多 候选电子材料中,低维材料相比传统三维材料具有优异的物理特性和电学特性,并且弱的层间范德华力使其 易于堆叠,有利于异质整合集成。本文详述了基于低维材料的人工突触器件和人工神经元器件的研究进展, 总结了不同类型神经形态器件的工作机制、性能指标和技术优势。在此基础上,介绍了低维材料的神经形态 器件在视觉、听觉、运动控制和规模集成芯片等领域的应用,并对神经形态器件未来发展趋势进行了展望。

**关 键 词:**低维材料;人工突触器件;人工神经元器件;神经形态芯片 中图分类号:047 **文献标识码:** A **DOI**: 10. 37188/CJL. 20230051

## Research Progress of Neuromorphic Devices Based on Low-dimensional Materials

LIU Yiting<sup>1</sup>, WAN Jun<sup>1</sup>, QIU Chenguang<sup>2\*</sup>, ZHAO Jianwen<sup>3\*</sup>, WANG Hua<sup>4</sup>

(1. Institute of Metrology and Testing Engineering, China Jiliang University, Hangzhou 310020, China;

2. School of Electronics, Peking University, Beijing 100871, China;

3. Device Department, Suzhou Institute of Nanotechnology and Nanobionics, Chinese Academy of Sciences, Suzhou 215125, China;

 $\label{eq:constraint} \textbf{4. Key Laboratory of Interface Science and Engineering in Advanced Materials} \text{, } \textit{Ministry of Education} \text{,} \\$ 

Taiyuan University of Technology, Taiyuan 030024, China)

\* Corresponding Authors, E-mail: chenguangqiu@pku. edu. cn; jwzhao2011@sinano. ac. cn

**Abstract:** The arrival of the era of big data and the Internet of Things makes the traditional Von Neumann architecture computer face great challenges in the process of data processing. The architecture of storage and computing separation fundamentally limits the computing speed and energy efficiency of the computer. It is urgent to develop a new computing paradigm to overcome the current challenges. Neuromorphic computing has attracted wide attention because of its high parallelism, low power consumption and integrated storage, and the novel neuromorphic devices with unique physical mechanisms are the basic units of neuromorphic computing systems. Among many candidate materials, low-dimensional materials have unique physical and electrical properties. Weak interlayer Van der Waals forces enable them to be arbitrarily stacked, which is conducive to heterogeneous integration. In this paper, the research progress of artificial synaptic devices and artificial neural devices based on low-dimensional materials is reviewed. The working mechanisms, performance indicators and technical advantages of different types of neuromorphic devices are summarized. On this basis, the applications of neuromorphic devices based on low-dimensional materials in the fields of vision, hearing, motion control and large-scale integration are introduced. Finally, the future

收稿日期: 2023-03-06;修订日期: 2023-03-23

基金项目:国家自然科学基金(61971009,62122006)

Supported by National Natural Science Foundation of China (61971009, 62122006)

development of artificial neuromorphic devices is analyzed and prospected.

Key words: low dimensional materials; artificial synaptic devices; artificial neural devices; neuromorphic chips

### 1引言

随着信息技术的飞速发展,大容量大带宽的 信息传输、处理和存储技术成为必然趋势,对计算 机的硬件和处理系统提出了更高的要求。传统的 冯·诺依曼计算系统,处理器和存储器在物理上分 离。在处理大量数据时,处理器和存储器之间频 繁的数据搬运会导致巨大功耗并限制计算速度, 严重影响了计算机的处理效能。同时,传统 CMOS器件尺寸正在逼近物理极限,摩尔定律难 以延续,同样也限制了计算机性能的进一步提 升<sup>[1]</sup>。对低功耗、高效率的数据处理技术的迫切 需求,促使研究人员不断设计基于新材料和新原 理的新型器件和新计算架构。

受人脑中神经元和突触信息处理模式的启 发,类脑计算与存算一体架构的研究受到学术界 的广泛关注。在过去几十年里,早期有采用硅基 互补金属氧化物半导体(Complementary metal-oxide semiconductor, CMOS)模拟电路来模拟生物突 触的功能。但是,由于需要十多个晶体管来模拟 一个生物突触或神经元的功能,硅基器件在神经 网络的大规模集成中面临重大挑战。例如,IBM 的Loihi芯片有20.7亿个晶体管,可以模拟大约 13.1万个模拟神经元和1.3亿个突触<sup>[2]</sup>,TrueNorth 芯片利用54亿个晶体管模拟了100万个神经元和 2.56亿个突触<sup>[3]</sup>。这类芯片对CMOS晶体管集成 度要求甚大,且能耗远高于人脑,这意味着利用硅 基晶体管难以实现简单高效的低功耗神经网络电 路及系统。因此,开发具有神经元和突触功能的 纳米级电子器件对于构建人脑规模的神经形态电 路及系统至关重要。其中,人工神经形态器件作



- 图1 低维材料人工神经形态器件,包括忆阻器<sup>[4]</sup>、三端浮栅晶体管<sup>[5]</sup>、两端浮栅存储器<sup>[6]</sup>、两端铁电忆阻器<sup>[7]</sup>、铁电栅晶体 管<sup>[8]</sup>、离子栅晶体管<sup>[9]</sup>、两端神经元<sup>[10]</sup>、三端神经元<sup>[11]</sup>。
- Fig.1 Artificial neuromorphic devices based on low dimensional materials: memristor<sup>[4]</sup>, floating gate transistor with three terminals<sup>[5]</sup>, floating gate memory with two terminals<sup>[6]</sup>, ferroelectric memristor<sup>[7]</sup>, ferroelectric-gate transistor<sup>[8]</sup>, ion-gate transistor<sup>[9]</sup>, two-terminal neuron with two terminals<sup>[10]</sup>, neuron with three terminals<sup>[11]</sup>.

为新开发的一类器件,其借鉴生物神经突触和神 经元功能,具有存算一体和并行计算的潜力优势, 有望解决传统冯·诺依曼架构中"存储墙"和"功耗 墙"的瓶颈,简化电路复杂度,被广泛设计用于构 建人工神经网络。而人工神经形态器件在尺寸微 缩的过程中,常规材料的热效应、界面效应等会导 致器件性能下降甚至失效。为了解决这些问题, 需要寻求新材料来代替传统材料。低维材料为近 年来广泛关注的新型纳米材料,其具有原子级厚 度和超高载流子迁移率,以及电导易被信号灵敏 调制等特点,使其在构建人工神经形态器件方面 有特殊优势。此外,低维材料种类丰富,包括二维 材料(过渡金属硫化物、石墨烯、黑磷等)、一维材 料(纳米线、碳纳米管等)和零维材料(量子点等), 并且其带隙变化范围大,涵盖了金属、窄带隙半导 体、宽带隙半导体及绝缘体。随着越来越多的低 维功能材料不断被发现,如光电、阻变、相变、磁性和 铁电低维材料等,为神经形态器件的设计和优化提 供了更多的自由选择和更强大的功能结构。

本文首先介绍了生物神经网络的结构与典型 信号特征,介绍了生物神经网络最基本组成单 元——神经元和突触,对神经元之间信息传递方 式和突触可塑性等进行概述,同时介绍了人工神 经网络的架构、硬件实现方式和目前被广泛研究 的底层器件结构种类,并对人工神经形态器件应 具备的关键性能指标提出要求;接下来重点介绍 了不同种类低维神经形态器件的结构和功能,包 括忆阻器、铁电突触器件、浮栅突触器件、离子栅 突触器件和人工神经元器件(图1),分别对各类 人工神经形态器件的物理机制、结构特征和性能 优势进行总结;在此基础上,对目前人工神经形态 器件的主要应用进行概述,包括在视觉感知、声音 定位、运动控制和大规模集成等领域。最后,总结 了目前的低维材料人工神经形态器件在材料选 择、大规模制备、结构和性能优化等方面仍存在的 瓶颈和挑战,并对未来构建基于低维材料的人工 神经形态系统进行了展望。

## 2 生物神经网络的结构与典型信号 特征

生物神经系统主要由两部分组成:(1)中枢神 经系统,包括大脑和脊髓;(2)外周神经系统,包括 位于脑和脊髓之外的所有神经纤维和神经细胞。 其中,脊髓和外周神经系统(如视神经、听觉神经、 味觉神经和触觉神经等)负责人脑与身体各处肌 肉和腺体的信息感知和信息传递,而更高级的神 经处理功能(如感知、学习、记忆、运动以及认知 等)则是在大脑内完成的。

人脑是目前已知的最为复杂的神经结构,大脑皮层负责人体的运动、感知、逻辑运算、判断、记忆等高级功能。如图2(a)所示,其展开面积可达1394 cm<sup>2</sup>,每平方毫米的皮层中约有10<sup>5</sup>个神经元,整个大脑皮层中神经元的数量约为10<sup>10</sup>~10<sup>11</sup>个。突触是两个神经元之间连接的桥梁,每个神经元可以通过1000多个突触与其他神经元相连接。大脑是由不同类型的神经元和突触交互构成的大规模神经网络,其以并行的方式实时处理人脑接收到的各种信息。

神经元和突触是构成生物神经网络系统的两 个基本组成单元。如图2(b)、(c)所示,神经元主 要由胞体、树突和轴突构成。树突接收从周围其 他神经元传递来的信号,这些信号通过控制电压/ 配体门控离子通道的开启/关闭,汇集到胞体,引 起膜电位升高/降低。当膜电位低于阈值电位时, 没有动作电位被触发;反之,如果膜电位高于阈值 电位,则会产生电尖峰信号形式的动作电位(图 2(d)),动作电位沿神经元轴突无衰减地传递到轴 突末端,由与之相连的突触进行信号处理后传递 到下一级神经元。图2(c)展示了生物体内最常 见的化学突触的基本结构,突触由突触前膜、突触 间隙和突触后膜组成。当突触前神经元的动作电 位传递到突触前膜,会引起突触前膜钙离子通道 开启,大量钙离子进入突触前膜,当钙离子浓度达 到一定程度时,引起神经递质释放<sup>[12]</sup>。神经递质 穿过突触间隙作用于突触后膜,导致突触后膜内 外离子流动,正/负离子流的积累使得突触后膜产 生兴奋性突触后电流(Excitatory postsynaptic current, EPSC)或抑制性突触后电流(Inhibitory postsynaptic current, IPSC);同时,突触后膜的膜电位 升高或降低,称为兴奋性突触后电位(Excitatory postsynaptic potential, EPSP)或抑制性突触后电位 (Inhibitory postsynaptic potential, IPSP)。 突触前 神经元和突触后神经元之间的连接强度被定义为 突触权重,突触前后膜神经信号的刺激会改变突 触之间的连接强度,称为突触可塑性。突触可塑 性是神经系统记忆和学习的生物学基础。根据突



- 图 2 生物神经网络和典型信号特征。(a)人类神经系统高级功能;(b)生物神经网络示意图;(c)生物化学突触示意图; (d)生物神经元的动作电位;(e)典型的突触可塑性,包括生物突触的EPSC(红色)和IPSC(蓝色)行为、LTP(红色)和 STP(蓝色)行为、PPF(红色)和PPD(蓝色)行为、STDP行为。
- Fig.2 Biological neural networks and typical signal characteristics. (a) Advanced functions of the human nervous system. (b) Schematic diagram of biological neural networks. (c) Schematic diagram of biological chemical synapses. (d) Action potential of biological neurons. (e) Typical synaptic plasticity, including EPSC(red) and IPSC(blue) behavior, LTP(red) and STP(blue) behavior, PPF(red) and PPD(blue) behavior, STDP behavior of biological synapses.

触可塑性变化的时间尺度,突触可塑性可分为两 大类:短期突触可塑性(Short-term synaptic plasticity, STSP) 和长期突触塑性(Long-term synaptic plasticity, LTSP)<sup>[13]</sup>。STSP 又可以分为短期增强 (Short-term-potentiation, STP)和短期抑制(Shortterm-depression, STD), LTSP可以分为长期增强 (Long-term potentiation, LTP)和长期抑制(Longterm depression, LTD)。图 2(e)展示了几种典型 的突触可塑性。其中,STSP发生在毫秒到分钟之 间,是神经网络计算功能的生理基础。典型的 STSP 包括双脉冲易化(Paired pulse facilitation, PPF) 和双脉冲抑制 (Paired pulse degradation, PPD)。PPF(PPD)是指当第二个脉冲紧跟第一个 脉冲时,第二个脉冲引起的PSC比第一个脉冲大 (小)。LTSP 表示持续几个小时或更长时间的可 塑性变化,是人脑形成长期记忆的基础。常见 的LTSP包括脉冲时间依赖可塑性(Pulse time dependent plasticity, STDP)、脉冲频率依赖可塑性 (Pulse frequency dependent plasticity, SRDP)和脉 冲幅值依赖可塑性(Pulse amplitude dependent plasticity, SADP)。其中, STDP是对 Hebbian 理论 的进一步完善,指出突触权重可以通过突触前脉 冲和突触后脉冲作用于突触的相对时间间隔Δt 来调节。如果突触前脉冲在突触后脉冲( $\Delta t > 0$ ) 之前到达,则会导致突触连接加强(突触权重增  $m, \Delta w > 0$ ),并且这种效果随着时间间隔的缩短 而增强。相反,如果突触前脉冲在突触后脉冲  $(\Delta t < 0)$ 之后到达,则会削弱突触连接(突触权重 降低,  $\Delta w < 0$ )<sup>[14]</sup>。STDP是生物神经网络的基本 学习规则之一。

## 3 人工神经网络与底层器件

人工神经网络(Artificial neural network, ANN)是基于生物学中神经网络的基本原理,以感知机网络为理论基础,模拟人脑神经系统对复杂信息进行训练和推理的一种数学模型。随着神经网络的蓬勃发展,人工神经网络已经衍生出多种具有不同拓扑结构的网络模型,例如,用于分类的支持向量机<sup>[15]</sup>、用于图像识别的卷积神经网络<sup>[16-17]</sup> (Convolution neural networks, CNN)和用于语音识别的递归神经网络<sup>[18]</sup>(Recurrent neural networks, RNN)。此外,有一类比较特殊的脉冲神经网络 (Spiking neural networks, SNN),其信息被编码为 空间和时间稀疏的脉冲序列,这类神经网络更接 近于生物神经信号处理方式,被认为有潜力以更 高能效的方式处理信息。

人工神经网络以其极高的自适应、自学习能 力,可以较好地拟合各种非线性函数,在科学研究 中广为应用<sup>[19]</sup>。图3(a)展示了典型多层全连接神 经网络的拓扑结构,神经网络由输入层、隐藏层和 输出层组成。对于ANN,神经元间传递的是时域 连续的信号,上层每个神经元的输出值经过线性 加权求和与非线性激活后传递至下一层神经元。 在训练过程中,采用反向传播(Back propagation, BP)监督学习算法来训练权值:通过梯度下降法 求误差,如图3(b)所示;误差全局反向链式传播 训练每层的权值,权值越高的路径传递的误差比 重越高,所以该路径权值修改的越多,反之则少。 矢量矩阵乘法(Vector matrix multiplication, VMM) 是这类神经网络用到的基本数学运算之一,仅涉 及简单的加法和乘法。与ANN不同,另一种SNN 神经元间传递的是时域离散的脉冲信号,使用"整 合放电"(Integrate-and-Fire)型尖峰脉冲交换信 息。对于 SNN 的训练通常有 2 种方案: 一种是 BP 监督学习,由于低层次的ANN和SNN可以互换权 值拓扑网络,所以借鉴ANN的BP监督学习规则, 利用误差全局反向链式传播来训练权值:另一种 是 STDP 无监督学习,基于生物突触的 STDP学习 规则,用事件驱动的前后脉冲信号的因果律和时 间相关性进行原位学习。基于 STDP 学习规则的 SNN可以在信号传递的过程中进行原位的权值更 新,而无需在信号进行全局正向传递后再反向更 新权重,因此,能极大地提高神经网络的效率并降 低数据传输带来的能耗。

随着人工智能的不断发展,大量新型电子器件被设计用于模拟神经元和突触(图3(c))。包括两端器件如阻变存储器(Resistive random access memory, RRAM)、铁电二极管、两端浮栅存储器等,器件的两个电极分别充当前神经元和后神经元,电信号从一个电极传输到另一个电极。然而,相比于三端器件,两端器件很难同时执行推理和训练的功能,大大阻碍了它们在先进类脑神经形态工程中的进一步应用。对于三端器件如铁电栅突触晶体管、浮栅突触晶体管、离子栅突触晶体管、离子栅突触晶体管、离子栅突触晶体管、离子栅突触晶体管、离子栅突触晶体管、离子栅突触晶体管、离子栅突触晶体管、离子栅突触晶体管、离子栅突触晶体管、离子栅突触晶体管、离子



- 图 3 人工神经网络和底层器件。(a)人工神经网络对图像进行识别和分类的过程<sup>[21]</sup>,ANN 传递时域连续的信号,SNN 传递时域离散的信号;(b)用于进行权重更新的梯度下降算法;(c)典型人工神经形态器件结构示意图;(d)crossbar 阵列示意图,信号由字线输入,由位线输出;(e)对人工神经形态器件的性能要求;(f)对人工神经形态器件关键性 能进行表征的曲线图。
- Fig.3 Artificial neural network and fundamental devices. (a) The process of image recognition and classification by the artificial neural network<sup>[21]</sup>, ANN transmits continuous signals and SNN transmits discrete signals. (b) Gradient descent algorithm for weight updating. (c) Schematic diagram of typical artificial neuromorphic devices. (d) Schematic diagram of crossbar array, signal input by the word line, output by bit line. (e) Performance requirements for artificial neuromorphic devices. (f) Curve charts characterizing the key performances of artificial neuromorphic devices.

易失存储器的出现,模拟态人工神经网络的硬件 实现逐渐成为可能。图3(d)展示了采用人工突 触器件构成 crossbar 阵列来实现人工神经网络, 存储和计算同时发生在 crossbar 阵列的交叉点 上,即实现存算一体。输入信号由字线输入,传递 到具有不同电导值的存储单元上,根据欧姆定律 进行乘法运算,得到每个单元的输出电流值;然 后,根据基尔霍夫电流定律对每一列(位线)的电流进行累加求和,得到最终的输出电流。为了实现具有高识别精度的人工神经网络,Crossbar阵列中的存储单元应满足以下要求<sup>[20]</sup>(如图3(e)、(f)):

(1)权重更新需要较高的线性度和对称性:要求器件电导变化随所施加的脉冲呈明显的线性关

系,且电导增强和电导抑制具有良好的对称性;

(2)足够的可分立电导状态数:可用于高精度 模拟生物突触中突触权重的连续调制,对于理想 的人工神经形态器件,要求可分立电导状态数 >100;

(3)较大的器件开关比:有助于实现对器件电导状态的明确区分,提高器件的鲁棒性,对于理想的人工神经形态器件,要求开关比>100;

(4)良好的保持性:理想情况下,在人工神经 网络的推理过程中,要求器件电导值保持不变,以 保证推理识别精度,对于理想的人工神经形态器 件,要求保持时间>10年;

(5)良好的耐久性:在人工神经网络的训练过 程中,需要多次迭代以更新突触权重,要求器件能 够经受住大量的"写入-擦除"循环,对于理想的人 工神经形态器件,要求耐循环次数>10°;

(6)良好的器件均匀性:器件性能的一致性对 于实现大规模人工神经网络的高精度推理和快速 训练至关重要;

(7)低功耗:生物神经网络中,每个突触事件 仅消耗1~10 fJ能量,理想情况下,人工神经形态 器件的每脉冲能耗也应<10 fJ,其是构成超大规 模人工神经网络硬件的必须要求。

4 基于低维材料的人工突触器件

#### 4.1 低维材料的忆阻器人工突触器件

忆阻器是具有存储功能的两端电阻开关,通 过施加电流或电压信号来改变内部电阻状态<sup>[22]</sup>, 并且断电后阻值保持不变。早在1971年,Chua首 次从理论上阐述了忆阻器的概念[23]。在经历了近 40年的时间后,惠普(Hewlett-packard, HP)实验 室于2008年实验上实现了第一个具有金属-绝缘 体-金属(Metal-insulator-metal, MIM)结构的忆阻 器<sup>[24]</sup>,首次提出导电桥电阻开关机制。忆阻器大 致可分为三类:电化学金属化忆阻器(Electrochemical metallized memristor, ECM)、价态变化忆 阻器(Valence change memristor, VCM)和基于电子 俘获/脱俘获的忆阻器。在这三类忆阻器中,ECM 和VCM的阻变机制源于电极两端导电细丝的形 成/断裂。ECM基于活性金属的扩散,既能表现出 易失性阈值转变的特性,也能表现出非易失特性, 分别适用于神经元和突触功能的模拟;VCM基于 阴离子或缺陷相关的空位在电场下的迁移,更有 利于实现非易失的模拟特性,适用于突触功能的 模拟。然而,ECM和VCM在使用前需要首先在强激励下进行一次激活(Forming)过程,将缺陷引入介电层以进行后续的可逆开关,这一过程使得器件引入一定的随机性,导致器件的均一性降低。与ECM和VCM不同,基于电子俘获/脱俘获的忆阻器的阻变机制与导电细丝无关,而是由空间电荷限制传导机制(Space charge limited conduction, SCLC)决定。基于这一机制的忆阻器无需执行Forming过程,器件表现出高低阻态之间的平稳过渡,减少了器件固有的随机性,其非易失特性有利于实现对生物突触功能的模拟。

近年来,人们对忆阻器及其交叉阵列进行了 广泛的研究<sup>[25]</sup>。传统的忆阻器使用的典型氧化物 材料主要有HfO<sub>x</sub>、TaO<sub>x</sub>和TiO<sub>x</sub>等。虽然基于传统 氧化物材料的忆阻器在许多领域中具有应用前 景,但其在功耗、可靠性和均一性等方面仍存在一 些问题,需要设计基于新材料、新结构和新原理的 新型忆阻器来解决这些挑战。新型2D材料表现 出大量独特的理化性质,通过在忆阻器结构中引 入2D材料,能进一步优化忆阻器性能以及尺寸微 缩特性,并且2D材料层间范德华力有助于在减薄 薄膜的情况下保持材料本身的优异物理性能。

以电化学金属化为导电机理的忆阻器主要由 活性电极(Ag、Cu、Al、Cr、Co等)/介电层/惰性电极 (W,Pt,Au,Ru 等)组成。在阻变过程中,活性金 属电极侧发生氧化反应,形成金属阳离子;在外加 电场作用下,金属阳离子向惰性电极迁移;当金属 阳离子到达惰性电极侧,其发生还原反应从而转 变成金属;最终,器件两端形成导电细丝<sup>[26]</sup>。忆阻 器由高阻态(High resistance state, HRS)突然变到 低阻态(Low resistance state, LRS)的过程称为置 位过程(SET),这一过程伴随着器件内部导电细 丝的形成。反之,器件由LRS突然变到HRS的过 程称为复位过程(ReSET),伴随着器件内部导电 细丝的断裂。Gao等<sup>[27]</sup>基于2D-TiO<sub>x</sub>纳米片,制造 了 Ag/2D-TiO<sub>r</sub>/Pt 结构的高性能忆阻器。器件在 直流模式下表现出稳定的双极电阻切换(Resistance switching, RS)行为和多级存储模式。通过 施加正负交替的电脉冲,器件电导被逐级调制,从 而实现了对突触行为(包括STP/LTP、PPF、STDP、 SRDP)的良好模拟。此外,该器件具有低开关电 压(0.42 V/-0.2 V), 高  $R_{\text{OFF}}/R_{\text{ON}}$  电阻比(10<sup>5</sup>) 和低 开关功率(10-9W/10-5W),表明其在未来高速低功

耗应用中的潜力。光电器件的研究与应用一直以 来也备受学术界的关注<sup>[28-30]</sup>, Lei 等<sup>[31]</sup>利用 BiOI 独 特的电学性能和杰出的光学性能,制备了Ag/Bi-OI/Pt垂直结构的光电忆阻器。基于 Ag<sup>+</sup>的迁移, 电极间导电细丝的形成和断裂导致器件发生高低 阻态的转变。该忆阻器在超低SET电压(约0.05 V)下切换到低阻态,在约-0.05 V的ReSET电压 下可以切换到高阻态,这一电压比大多数基于2D 材料的忆阻器低一个数量级,表明器件具有超低 功耗优势。此外,该忆阻器不仅表现出电压驱动 下的 PPF、LTP、LTD 行为,还表现出光脉冲调制下 的短期和长期突触可塑性,为将来构建具有信息 感知和处理功能的类视网膜视觉传感器提供了新 的材料和策略。虽然近年来利用 2D 材料制备的 忆阻器被广泛研究,但基于超薄2D材料的 crossbar阵列的实现一直受到大规模材料合成和器件 集成工艺相关挑战的阻碍。Li 等<sup>[32]</sup>用分子束外延 生长的晶圆级(2-inch)二硒化铪(HfSe<sub>2</sub>)和金属辅 助范德华转移技术展示了忆阻器 crossbar 交叉阵 列(图4(a))。通过拉曼映射表征了薄膜的均匀 性,无化学金属辅助范德华(vdW)转移方法使器 件具有更好的稳定性。该忆阻器具有较小的开关 电压(0.6 V)、低开关能耗(0.82 pJ),同时实现了 模拟突触权重可塑性(包括LTP、LTD、SADP)。通 过电导原子力显微镜(C-AFM)证实了LRS中导电 丝的形成是基于Ti离子在开关介质中的扩散(图 4(b))。图4(c)、(d)表明器件具有良好的阻变电 学特性。此外,基于该器件的模拟人工神经网络 的识别准确率达到93.34%。利用该器件构建的 3×3 crossbar 阵列作为可编程卷积核进行硬件卷 积图像处理,展示了基于2D材料的忆阻器在下一 代神经网络硬件中的应用潜力。利用量子材料的 高迁移率、卓越的灵敏度和强大的量子效应,最 近,研究人员设计了基于0D量子点的人工突触器 件来模拟生物突触。Yan 等<sup>[3]</sup>提出了一种结构为 Ag/Zr<sub>0</sub>5Hf<sub>0</sub>5O<sub>2</sub>:氧化石墨烯量子点/Ag的忆阻器 器件,器件在(0.6 V,30 ns)的小脉冲电压下即可 实现电导调制,实现了对生物突触的PPF、STDP 行为的模拟。这一器件为未来在低功耗和超快开 关速度神经计算系统中的应用提供了一个很有前 途的选择。Chen等<sup>[34]</sup>开发了一种基于溶液处理的 MgO-氧化石墨烯量子点(MgO-GOQDs)的忆阻器, GOQDs在电场下氧化还原使得忆阻器中形成Mg 金属导电细丝,器件表现出超低的工作电压和高度可控的RS行为,包括PPF、STP、LTP、STDP在内的基本生物突触功能被成功模拟。此外,在聚对苯二甲酸乙二醇酯衬底上制造的器件在大量弯曲循环后也表现出稳定的RS行为。这一工作证明了溶液处理的MgO-GOQDs杂化膜在实现柔性人工神经网络方面的巨大潜力。

传统的价态变化忆阻器主要由非活性金属电 极/金属氧化物/惰性电极组成。器件中对阻变起 主导作用的是金属氧化物中的氧离子或等效氧空 位,氧离子或氧空位的移动导致金属元素发生价 态变化,从而改变金属氧化物材料的电阻。同时, 氧空位的排布会形成非金属导电细丝,使器件表 现出电阻开关行为。对于低维材料的价态变化忆 阻器,导电细丝的产生是由阴离子或缺陷相关空 位(硫族元素、氧)的氧化还原反应以及阴离子或 空位在材料中的迁移引起的<sup>[35]</sup>。基于该机制,具 有不同结构和不同应用场景的忆阻器被陆续提 出。Miao等<sup>[35]</sup>设计了由石墨烯/MoS2-xOx/石墨烯组 成的范德华异质结构的忆阻器,如图4(e)~(g)所 示。与传统忆阻器相比,器件展现出良好的热稳 定性,工作温度高达340℃(图4(h))。通过原位 扫描透射电子显微镜(In-situ scanning transmission electron microscope, STEM)进行微观表征,证 明出热稳定性是受益于 MoS2--O, 开关层、石墨烯 电极以及电极和开关层之间的原子级范德华界 面。进一步通过 STEM 揭示了该忆阻器是基于氧 离子迁移的开关机制。最后,在聚酰亚胺(PI)衬 底上制备了柔性忆阻器件,其有超过1000次的机 械弯折耐久性,证明了器件在柔性电子应用领域 的潜力。Zhang等<sup>[36]</sup>制造了Pt/Ti<sub>3</sub>C<sub>2</sub>/Pt垂直结构的 忆阻器,在部分氧化的Ti<sub>3</sub>C<sub>2</sub>纳米片中,氧空位在 外加电场下的迁移和累积对导电细丝的形成起着 重要作用。根据电压大小的不同,器件可表现出 数字和模拟的RS行为。在高工作电压下,数字 RS可实现两种电阻状态下超过10°的大开关比。 在相对较低的工作电压下,可以观察到一系列电 阻状态逐渐变化的模拟RS行为。基于该行为,器 件实现了对基本突触功能的模拟(包括LTP/LTD、 PPF/PPD)。2D Ti<sub>3</sub>C<sub>2</sub>纳米片中数字和模拟RS行 为的共存简化了复杂神经系统的制备,表明了其 在非易失性存储器和神经形态计算中的潜在应 用。Wang等<sup>[37]</sup>将石墨烯量子点(Graphene quantum



- 图 4 忆阻器。电化学金属化忆阻器:(a) 忆阻器交叉阵列的光学显微镜图像和器件结构示意图<sup>[32]</sup>;(b) HRS和LRS的C-AFM电导映射图<sup>[32]</sup>;(c) 忆阻器的典型*I-V*曲线<sup>[32]</sup>;(d) 忆阻器 26个电导状态的保持曲线<sup>[32]</sup>。价态变化忆阻器:(e) 石墨烯/MoS<sub>2-x</sub>O<sub>x</sub>/石墨烯(GMG)器件结构示意图和晶体结构图<sup>[35]</sup>;(f) GMG器件的横截面 HAADF图<sup>[35]</sup>;(g) GMG 忆 阻器的导电机制<sup>[35]</sup>;(h) GMG器件在不同温度下的*I-V*曲线<sup>[35]</sup>。基于电子俘获/脱俘获的忆阻器:(i) MoS<sub>2</sub>忆阻器结构示意图<sup>[38]</sup>;(j) 忆阻器的光学显微镜图像<sup>[38]</sup>;(k)器件工作机制的能带示意图<sup>[38]</sup>;(1) 1 000次循环下的*I-V*曲线<sup>[38]</sup>。
- Fig.4 Memristor. Electrochemical metalized memristor: (a) optical microscope image of memristor crossbar array and device structure diagram<sup>[32]</sup>, (b)C-AFM conductance maps of HRS and LRS<sup>[32]</sup>, (c)typical *I-V* curve of memristor<sup>[32]</sup>, (d)retention curves of 26 conductance states of the memristor<sup>[32]</sup>. Valence change memristor: (e) schematic diagram and crystal structure diagram of graphene /MoS<sub>2-x</sub>O<sub>x</sub>/graphene(GMG) device<sup>[35]</sup>, (f)HAADF diagram of the cross-section of the GMG device<sup>[35]</sup>, (g) conduction mechanism of GMG memristor<sup>[32]</sup>, (h)*I-V* curves of GMG devices at different temperatures<sup>[35]</sup>. Memristor based on electron trap/de-trap: (i) schematic diagram of MoS<sub>2</sub> memristor<sup>[38]</sup>, (j) optical microscope image of memristor<sup>[38]</sup>, (k) energy band diagram of device operating mechanism<sup>[38]</sup>, (1)*I-V* curve under 1 000 cycles<sup>[38]</sup>.

dots, GQDs)引入到忆阻器中,由于GQDs能释放 出丰富的氧阴离子, GQDs可以作为纳米氧库,增 强导电细丝形成的局域化,最终实现了具有高度 紧密分布的可重复的模拟电阻状态,器件变化率 减少了近85%。这项工作表明, GQDs 忆阻器可以 作为突触权重变化可控的人工突触, 为神经网络 提供准确高效的学习能力, 减少训练周期, 降低编 程错误率。

利用电子俘获/脱俘获效应, Adithi 等<sup>[38]</sup>使用

化学气相沉积的 2D MoS<sub>2</sub>作为开关介质,制备了 基于 Ti/Au 电极的忆阻器(图4(i)、(j)),器件展现 出高度的均一性和可靠性。通过变温电学测试证 实了空间电荷限制传导(SCLC)是主要的输运机 制(图4(k))。与基于导电丝的忆阻器不同,该器 件没有表现出从高阻态(HRS)到低阻态(LRS)的 突变,相反,表现出从HRS到LRS的平稳过渡(图 4(1))。当器件用于模拟生物突触行为时,器件表 现出在 26个不同电导状态下超过 300 s的保持时 间。此外,将该突触器件与MoS<sub>2</sub>神经元<sup>1391</sup>集成起 来,实现了与、或和非逻辑门,表明了用2D材料实 现大规模拟态神经电路的可行性。

表1总结了最近几年基于低维材料忆阻器的 人工突触器件的研究进展。基于低维材料忆阻器 的人工突触器件具有开关速度快、工作电压低、器 件结构简单、电导状态保持时间长、器件尺寸小等 优点。然而,目前仍存在一些限制器件实际应用 的问题。例如,(1)固有的随机性,由于离子或空 位的随机扩散导致器件可靠性低,器件内部不可 控的三维随机导电细丝的形成导致电阻切换行为 中不同周期和不同器件间发生较大变化;(2)差的 耐循环特性,源于电阻切换过程中的结构击穿; (3)电导变化的线性度和对称性差,导致神经网络 识别精度较低,且训练收敛速度变慢;(4)大规模 器件阵列的制备仍然面临着巨大的挑战。对于未 来大规模人工神经形态系统的应用,基于忆阻器 的人工突触器件的性能还有待改进。

表1 基于低维材料的典型忆阻器突触器件性能总结

Tab. 1 Performance summary of typical memristor synaptic devices based on low dimensional materials

器件结			器	神经形态计算					
材料	结构	RS	开关	保持性/	耐久性/	工作电压/	功耗	突触	参考
		机制	比	s	cycle	V	(LTP/LTD)	可塑性	文献
$Cu/MoTe_2/Si$	垂直	ECM		>5. 0×10 <sup>3</sup>	>350	2.000/-2.000	$0.~86~\mu W/93~n W$	PPF、LTP、LTD、STDP	[40]
Ag/2D-TiO <sub>x</sub> /Pt	垂直	ECM	$10^{5}$	>10 <sup>4</sup>	>104	0.420/-0.200	$10^{-9}/10^{-5}$ W	STP_LTP_STDP_SRDP	[27]
Ag/BiOI/Pt	垂直	ECM	$10^{5}$	$10^{4}$	50	0.050/-0.050	10  pW	PPF、LTP、LTD	[31]
$Au/HfSe_2/Ti$	垂直	ECM	~50	>10 <sup>4</sup>	>500	0.600/-0.700	0.82 pJ	LTP LTD SADP	[32]
Al/MgO-GOQD/ITO	垂直	ECM	_	1.2×10 <sup>4</sup>	>10 <sup>3</sup>	0. 180/-0. 184	—	PPF \STP \LTP \STDP	[34]
$\rm Ti/PdSeO_{\it x}/PdSe_{\it 2}/Au$	异质结	ECM	~300	>8. 0×10 <sup>4</sup>	>700	0.700/-0.900	0.90 pJ	LTP_LTD_STDP_SADP	[41]
Au/h-BN/Au	垂直	VCM	$10^{6}$	>2. 0×10 <sup>4</sup>	—	1. 900/0. 900	_	_	[42]
Pt/Ti <sub>3</sub> C <sub>2</sub> /Pt	垂直	VCM	10 <sup>3</sup>	$10^{4}$	2×10 <sup>3</sup>	4.000/-4.000	_	PPF、PPD、LTP、LTD	[36]
Au/α-MoO <sub>3</sub> /Ti	垂直	VCM	_	_	—	3.000/-3.000	37.40/27.50 pJ	PPF、LTP、LTD、SADP、SRDP	[43]
Au/SnSe/Gr/SiO <sub>2</sub> /Si	垂直	VCM	_	—	>200	1.500/-0.400	16. 70/2. 30 nW	PPF_STP_LTP_LTD	[44]

#### 4.2 低维材料的铁电人工突触器件

铁电材料是一种具有自发电极化且极化方向 可以被外部电场逆转的材料,在外加电场作用下, 铁电极化方向会发生不同程度的翻转,使器件表 现出不同的电导状态。目前关于2D铁电材料的 研究仍处于起步阶段,典型代表为铁电半导体,如 CuInP<sub>2</sub>S<sub>6</sub>(CIPS)、SnS、SnSe、SnTe、α-In<sub>2</sub>Se<sub>3</sub>;铁电半 金属,如WTe<sub>2</sub>。在这些2D铁电材料中,CIPS的极 化方向在切换后可以保持两个月45,这对于实现 突触器件或非易失性存储器至关重要。α-In<sub>2</sub>Se<sub>3</sub> 具有合适的带隙(~1.39 eV)和室温铁电性,能将 铁电性维持到几个原子层并具有大面积生长的潜 力。此外,2D铁电材料具有不同的极化方向,包 括面内极化(In-plane, IP)和面外极化(Out-of-Plane, OOP)。其中, 具有 IP 特性的铁电材料包括 SnS、SnTe等,具有 OOP 特性的铁电材料包括 CIPS、WTe<sub>2</sub>等, 而 α-In<sub>2</sub>Se<sub>3</sub>同时具有 IP 和 OOP 特性。

采用2D铁电材料可构成新型突触器件。通过控制铁电极化翻转,可以逐步调制铁电突触器

件的沟道电导。近年来,基于2D铁电材料的各种 两端和三端突触器件已有报道,两端器件主要包 括铁电二极管(FDs)和铁电忆阻器;三端器件主 要为铁电场效应晶体管(Fe-FETs)和铁电半导体 场效应晶体管(FeS-FETs)。

铁电二极管由夹在两个电极之间的较厚的铁 电半导体层组成,利用铁电层的极化反转调节肖 特基势垒,进而实现电学调制。如果分别考虑IP 铁电或OOP铁电,器件可以表现为水平或垂直结 构。Ang等<sup>[46]</sup>设计了一种垂直结构的Au/CIPS/Ti 铁电二极管突触器件(图5(a)~(c)),铁电CIPS薄 膜的极化电荷调节金属/CIPS界面的势垒高度,从 而控制电阻切换(图5(b))。利用该器件模拟了 关键的突触特征,包括PPF/PPD、LTP/LTD、SADP、 SRDP和STDP。此外,基于该器件制备了3×3交 叉阵列,实现模式学习和记忆等功能。由于铁电 二极管本身具有自整流特性,因此可以在没有选 通管的情况下用于构建大规模交叉阵列。

两端铁电忆阻器具有小尺寸、高速、低功耗和 结构简单的特点,适用于构建大规模交叉阵列。

(a)

Ti

Aп

(b)





- 图 5 铁电突触器件。铁电二极管:(a)CIPS铁电二极管的器件结构<sup>[46]</sup>;(b)对应于两个相反极化方向的CIPS二极管的能 带图<sup>[46]</sup>;(c)CIPS二极管的LTP和LTD曲线<sup>[46]</sup>。铁电忆阻器:(d)Ag/α-In<sub>2</sub>Se<sub>3</sub>/ITO器件结构示意图<sup>[47]</sup>;(e)忆阻器的 SET响应时间(左图)和RESET响应时间(右图)<sup>[47]</sup>;(f)Hebbian STDP学习规则实现<sup>[47]</sup>。铁电栅场效应晶体管:(g) MoS<sub>2</sub>/CIPS 2D 异质结构 Fe-FET示意图<sup>[8]</sup>;(h)具有不同沟道长度的几个器件的俯视假彩色扫描电子显微镜(SEM) 图像<sup>[8]</sup>;(i)使用顶栅电极测量的 *I*<sub>D</sub>-*V*<sub>GS</sub>特性曲线<sup>[8]</sup>。铁电半导体场效应晶体管:(j)具有底栅-顶接触结构的α-In<sub>2</sub>Se<sub>3</sub> FeS-FET示意图<sup>[50]</sup>;(k)正向扫描和反向扫描过程中,漏极到源极的能带示意图<sup>[50]</sup>;(1)线性且对称的电导变化曲 线<sup>[50]</sup>。
- Fig.5 Ferroelectric synaptic devices. Ferroelectric diode: (a) device structure of CIPS ferroelectric diode<sup>[46]</sup>, (b) energy band diagram of CIPS diode corresponding to opposite polarization directions<sup>[46]</sup>, (c) LTP and LTD curves of CIPS diode<sup>[46]</sup>. Ferroelectric memristor: (d) schematic diagram of Ag/α-In<sub>2</sub>Se<sub>3</sub>/ITO device<sup>[47]</sup>, (e) SET response time (left) and RESET response time (right) of memristor<sup>[47]</sup>, (f) Hebbian STDP learning rule implementation<sup>[47]</sup>. Ferroelectric gate field-effect transistor: (g) schematic diagram of MoS<sub>2</sub>/CIPS 2D heterostructure Fe-FET<sup>[8]</sup>, (h) top-view false-color scanning electron microscope (SEM) images of several devices with different channel lengths<sup>[8]</sup>, (i)I<sub>D</sub>-V<sub>CS</sub> characteristic curve measured using a top-gate electrode<sup>[8]</sup>. Ferroelectric semiconductor field-effect transistor: (j) schematic diagram of α-In<sub>2</sub>Se<sub>3</sub> FeS-FET with bottom-gate-top-contact structure<sup>[50]</sup>, (k) schematic diagram of energy band from drain to source during forward scanning and reverse scanning<sup>[50]</sup>, (1) linear and symmetrical conductivity curve<sup>[50]</sup>.

硒化锡(SnSe)是一种典型的二维铁电半导体材 料, Yan 等<sup>[7]</sup>采用脉冲激光沉积(PLD)技术在 NSTO(0.7%Nb掺杂的SrTiO<sub>3</sub>)单晶衬底上外延生 长了一层 SnSe 薄膜,构建了一种基于二维 SnSe铁 电薄膜的忆阻器。通过铁电 SnSe 层的逐渐极化 实现了器件电导的连续调制,器件高低阻态之间 的转换呈现出逐渐变化的过程,成功模拟了生物 突触的 EPSC、PPF、LTP/LTD、STDP 等功能。此 外,该器件能耗低至66 fJ,有望应用于小型化、高 密度、低功耗的神经形态计算。Zhao 等[47]基于二 维α-In<sub>2</sub>Se<sub>3</sub>纳米片,制备了Ag/α-In<sub>2</sub>Se<sub>3</sub>/ITO垂直结 构的忆阻器(图5(d)~(f)),该器件是基于Ag导电 丝的形成和断裂,表现出典型的双极性阻变行为、 良好的耐循环特性(>10°)、快的开关速度(16.4/ 18.0 ns)和连续可调的电导。基于该器件实现了 多种生物突触功能,包括短期记忆(Short-term memory,STM)、长期记忆(Long-term memory,LTM)、 PPF和STDP、强化学习行为等。

与两端结构的器件相比,具有三端结构的2D 材料突触晶体管器件由于其维度低、可同时读写 操作、效率高等优势,受到了研究者的广泛关 注<sup>[48]</sup>。铁电栅场效应晶体管(Fe-FETs)和铁电半 导体场效应晶体管(FeS-FETs)都是三端器件,铁 电材料被用作栅极介质或直接充当半导体沟道。 作为人工突触器件,晶体管栅极可充当突触前膜, 源极/漏极充当突触后膜,沟道电导即为突触权 重。比较直接的思路是:采用传统铁电绝缘体做 为铁电栅介质和2D半导体材料作为沟道,制备出 2D Fe-FETs。然而,非理想的三维铁电绝缘体/二 维半导体界面会导致界面陷阱,从而降低器件的 性能。二维材料表面缺乏悬挂键也使铁电绝缘体 的原子层沉积(ALD)过程变得困难。针对这一难题,Si等<sup>[8]</sup>通过将2D铁电绝缘体与2D半导体集成为二维范德华(vdW)异质结构,可能消除界面问题、降低界面陷阱密度,从而实现高性能的Fe-FETs。Si等设计了MoS<sub>2</sub>/CIPS 2D vdW 异质结铁 电场效应晶体管(图5(g)~(i)),通过栅压进行调制,器件展现出稳定的非易失存储特性。

利用 $\alpha$ -In<sub>2</sub>Se<sub>3</sub>固有的铁电性和半导体特性, 以α-In<sub>2</sub>Se<sub>3</sub>作为沟道材料的铁电半导体场效应晶 体管也被广泛研究。2020年, Loh 等<sup>[49]</sup>以 50 nm  $Al_2O_3$ 为栅介质层、 $\alpha$ -In<sub>2</sub>Se<sub>3</sub>为半导体沟道,制备了 铁电半导体场效应晶体管。通过控制面外极化, 可以在基于α-In<sub>2</sub>Se<sub>3</sub>的FeS-FET中诱导多个电导 态,成功模拟了 EPSC/IPSC、LTP/LTD、STDP 等生 物突触行为,并在模拟人工神经网络中实现了 91.9%的模式识别精度。Loh等提出,FeS-FET的 多级电导调制是由于铁电沟道中部分极化翻转具 有良好的可控性,这优于两端忆阻器中导电细丝 的随机生长/断裂机制。2022年, Chen等<sup>[50]</sup>制备的 基于  $\alpha$ -In<sub>2</sub>Se<sub>3</sub>的 FeS-FET 器件(图 5(j)~(1))的性 能有了进一步提高,由于铁电极化翻转导致肖特 基势垒高度可调(图5(k)),器件具有大量可编程 电导状态数(~100)且电导变化表现出接近理想 的线性度(0.207/0.211)和对称性(不对称值 0.004)。在模拟的人工神经网络中,模式识别任 务的准确率高达97.76%。

表2总结了基于低维材料的典型铁电突触器件的性能指标。基于2D铁电材料的突触器件已 经取得了一定的进展,器件具有大开关比、低功 耗、高速等优势,但在实际应用之前仍有一些挑战 需要克服。例如,(1)材料方面,尽管目前已经有

器件结构			器	神经形态计算				
材料	类型	开关 比	保持性/ s	耐久性/ cycle	工作 电压/V	功耗 (LTP/LTD)	突触 可塑性	参考 文献
Au/CIPS/Ti	FD	>6×10 <sup>3</sup>	_	10 <sup>2</sup>	_	5.63 pJ	PPF、PPD、SADP、SRDP、STDP	[46]
Au/SnSe/NSTO	忆阻器	_	>104	_	2.00/-3.50	66. 00 fJ	PPF、STP、LTP、LTD、STDP	[7]
Ag/α-In <sub>2</sub> Se <sub>3</sub> /ITO 源/漏-(Ti/Au)/	忆阻器	—	_	10 <sup>6</sup>	0.90/-0.44 4	. 96×10 <sup>−6</sup> / 2. 45×10 <sup>−5</sup> W	STP、LTP、STDP	[47]
α-In <sub>2</sub> Se <sub>3</sub> /Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> / 栅-Si 源/漏-(Cr/Au)/	FeS-FET	>10 <sup>5</sup>		>250	_	_	LTP \LTD \STDP	[49]
α-In <sub>2</sub> Se <sub>3</sub> /Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> / 栅-Si	FeS-FET	10 <sup>6</sup>	>1. 2×10 <sup>4</sup>	2×10 <sup>3</sup>	—	—	EPSC、IPSC、LTP、LTD	[50]

	表 2	基于低维材料的典型铁电突触器	器件性能总结
Tab 2	Porformanco summar	of typical forroclostria synaptic dov	views based on low dimensional materials

超过 10种的 2D 铁电材料,但同时具有高稳定性 和优异性能的 2D 铁电材料仍然缺乏,制造铁电突 触器件的材料选择仍然非常有限,制备具有足够 大矫顽场和剩余极化的铁电薄膜材料对于实现可 靠的器件功能至关重要;(2)器件制造方面,基于 2D 铁电材料的突触器件制造工艺需要进一步优 化,精确控制堆叠图案仍极具挑战;(3)系统级应 用方面:目前的 2D 铁电材料很难大面积生长,对 于大规模晶圆集成制造提出了巨大挑战。

#### 4.3 低维材料的浮栅人工突触器件

基于浮栅结构的人工突触器件是一类电荷俘 获型器件,在外加电场的作用下,器件沟道中的电 荷被浮栅俘获或脱离浮栅,导致器件阈值电压偏 移,使得沟道电导被有效调制。目前关于浮栅器 件用于神经形态领域的研究已有很多报道。由于 低维材料带隙变化广,可从金属到绝缘体变化,这 使得其可被用于浮栅的不同结构层。例如,石墨 烯<sup>[51]</sup>具有零带隙和较低态密度,独特的二维层状 原子晶体结构和狄拉克锥形电子能带结构使其具 有新奇的电学、光学和光电子学性质<sup>[52]</sup>,可以作为 器件浮栅层和电极。碳纳米管<sup>[53,55]</sup>和过渡金属硫 化物<sup>[56]</sup>(TMDs)具有较高的载流子迁移率,可以作 为沟道材料。带隙较大的 h-BN<sup>[57]</sup>适合作为隧 穿层。

低维隧穿器件同样具有两端或三端结构。三 端浮栅突触晶体管具有与传统的 MOSFET 相似的 结构,浮栅用于电荷存储,夹在隧穿层和栅绝缘层 之间。当给控制栅施加电压,电子或空穴可通过 隧穿注入到浮栅层。当偏压撤去后,由于阻挡层 和隧穿层的存在,电子或空穴难以回到原来位置, 实现了非易失存储。被俘获的电荷可以屏蔽控制 栅电极和沟道之间的垂直电场,导致阈值电压的 变化,从而调节沟道电导。浮栅突触晶体管的控 制栅电极相当于突触前神经元,漏极相当于突触 后神经元,沟道电导充当突触权重。Xu等<sup>[58]</sup>设计 了基于 2D-HfS<sub>2</sub>/h-BN/石墨烯异质结构的浮栅突 触晶体管,器件表现出高开关比(>10°)、大存储窗  $\Box$ (约100V)、低至0.2 pJ的每脉冲能耗、优异的 保持性(>10<sup>4</sup> s)和耐久性(>10<sup>3</sup>),在仿真的人工神 经网络中实现了高达91.5%的识别精度。Cao 等<sup>[59]</sup>采用原子层沉积法制备了晶圆级 MoS<sub>2</sub>沟道, 结合HfO,介电层,设计了一种顶栅结构浮栅突触 阵列(3×5阵列),用于在神经网络中实现数字图像 的识别。其中,单个器件识别准确率达到92.2%, 器件阵列识别准确率达到91.3%。这项工作是基 于浮栅结构的二维器件阵列首次应用于人工神经 网络,为未来大规模阵列在神经形态计算中的应 用提供了可能。

由于 2D 器件通常依赖于沉积、机械剥离或转移的绝缘体作为介电层,导致器件兼容性和制造复杂性方面面临各种挑战。为解决这一问题,研究人员提出了分别使用 2D 材料和它们的自然氧化物作为浮栅和介质层的闪存。Lin 等<sup>1601</sup>展示了一种可控且可靠的氧化工艺,将 2D 半导体 HfS<sub>2</sub>转化为天然氧化物 HfO<sub>x</sub>,显示出清洁的 HfO<sub>x</sub>/HfS<sub>2</sub>界面(图 6(a))。将 HfO<sub>x</sub>/HfS<sub>2</sub>异质结构结合到闪存器件中,实现了约10<sup>5</sup>的高开/关电流比、60 V 以上的大存储窗口、良好的耐久性和 10<sup>3</sup> s 以上的长保持时间。将该器件作为人工突触器件工作时,成功模拟了 EPSC/IPSC、PPF、LTP/LTD、STDP、SRDP等多种突触行为。

在神经形态器件的应用方面,利用低维材料 (如碳纳米管、纳米线、过渡金属二硫化合物、量子 点等)优良的机械柔性和良好的光电响应特性,适 用于柔性应用领域和视神经领域的浮栅突触器件 也得到了广泛的研究。Li等阿提出了一种新型的 多浮栅突触纳米线晶体管,它可以模拟突触的 LTP、LTD、多个突触前信号的整合和连续的突触 权重调制行为。Kim 等<sup>[62]</sup>以半导体碳纳米管为沟 道,Au为浮栅层,设计了可拉伸浮栅突触晶体管 (图 6(b))。在(± 25 V,1 s)的栅脉冲电压下,可实 现对沟道电导的多级调制。基于该器件,制备了 10×15的阵列,在人体柔性皮肤上进行了测试, 发现包括戳、压缩和拉伸在内的变形不会引起分 层或机械断裂,为可穿戴电子产品提供了器件原 型。Choi等<sup>[63]</sup>展示了一个由三个碳管浮栅晶体管 (3T-Synapse)构成的突触器件,该器件由高度提 纯的半导体碳纳米管为沟道,嵌入式Au浮栅层, 具有可靠的模拟电导调制行为。通过将制备的突 触晶体管转移到纸衬底上,展示了器件的耐弯曲 特性。此外,基于该器件使用简化的 STDP 方案 实现了系统级模式识别任务,其中与外围神经元 电路相连的 3T-Synapses 可以执行无监督学习。 仿真结果表明,更大的电导变化裕度可以提高识 别准确度,为进一步迈向更复杂的神经形态系统 提供了方向。Meng等<sup>[5]</sup>协同利用 2D MoSSe 沟道



- 图 6 浮栅突触器件。基于 2D、1D、0D 材料的三端浮栅突触晶体管:(a)以 2D-WSe<sub>2</sub>作为沟道的浮栅突触晶体管结构示意 图及其写入、擦除过程的能带示意图<sup>[60]</sup>;(b)以半导体碳纳米管作为沟道的浮栅突触晶体管结构示意图<sup>[63]</sup>;(c)以量 子点作为浮栅的浮栅突触晶体管结构示意图<sup>[5]</sup>。两端浮栅存储器:(d)器件结构示意图<sup>[6]</sup>;(e)浮栅存储器的光学图 像<sup>[6]</sup>;(f)漏极/h-BN/石墨烯的能带示意图<sup>[6]</sup>;(g)两端浮栅存储器的*I-V*曲线<sup>[6]</sup>。高速浮栅晶体管:(h)高速浮栅晶体 管器件结构示意图<sup>[66]</sup>;(i)器件的横截面透射电子显微镜图像<sup>[66]</sup>;(j)器件工作机制<sup>[66]</sup>;(k)器件在不同幅值脉冲(持 续时间 20 ns)下的阈值偏移,表明其具有存储特性<sup>[66]</sup>。半浮栅晶体管:(1)半浮栅晶体管示意图<sup>[60]</sup>;(m)器件的伪彩 色 SEM 图像<sup>[60]</sup>;(n)写入操作下的能带示意图<sup>[60]</sup>;(o)不同宽度电压脉冲下的擦除特性<sup>[60]</sup>。
- Fig.6 Floating gate synaptic devices. Three-terminal floating gate synaptic transistor based on 2D, 1D, and 0D materials: (a) structure diagram of floating gate synaptic transistor with 2D-WSE<sub>2</sub> as channel and energy band diagram of writing and erasing process<sup>[60]</sup>, (b) schematic diagram of floating gate synaptic transistor using quantum dots as floating gate<sup>[5]</sup>. Two-terminal floating gate memory: (d) schematic diagram of device structure<sup>[6]</sup>, (e) optical image of floating gate memory<sup>[6]</sup>, (f) energy band diagram of drain/h-BN/graphene<sup>[6]</sup>, (g) *I-V* curve of floating gate memory<sup>[6]</sup>. High-speed floating gate transistor: (h) schematic diagram of high-speed floating gate transistor<sup>[66]</sup>, (i) transmission electron microscope image of a cross-section of the device<sup>[66]</sup>, (j) device working mechanism<sup>[66]</sup>, (k) threshold offset of the device under different amplitude pulses (duration 20 ns), indicating that it has storage characteristics<sup>[66]</sup>. Semi-floating-gate transistor: (1) schematic diagram of semi-floating-gate transistor<sup>[69]</sup>, (m) false color SEM image of a device<sup>[69]</sup>, (n) energy band diagram under write operation<sup>[69]</sup>, (o) erase characteristics under voltage pulses of different pulse widths<sup>[69]</sup>.

和 0D BPOD 浮栅层的显著光电特性,构建了一种 低维柔性光电调制的人工突触器件(图6(c)),器 件表现出亚fJ的能耗(LTP为0.58 fJ/spike, LTD 为0.86 fJ/spike)和超快响应速度(50 ns),成功地 模拟了电刺激和光刺激下的神经形态功能,包括 EPSC/IPSC、PPF/PPD、STP、LTP/LTD 等。该器件 的性能不受衬底弯曲的影响,表明在机械应变下 具有鲁棒的稳定性和高柔性。此外,作者进行了 "巴甫洛夫狗"经典条件反射实验,基于该器件实 现了联想学习。这些结果表明了基于混合低维结 构来构建高效可穿戴神经形态计算系统的潜力。 Wang 等<sup>[64]</sup> 基于全无机 CsPbBr<sub>3</sub> 钙钛矿量子点 (QDs)设计了一种光子闪存,在CsPbBr3量子点和 半导体层之间形成的 pentacene/PMMA/CsPbBr3 QDs异质结是光电存储器件表现出光诱导电荷俘 获和电介导电荷释放特性的基础。突触权重表现 出从365,450,520 nm 到660 nm 的多波长响应, PPF、PPD、STP、LTP、SRDP等多种突触可塑性被 成功模拟。

综上所述,三端式浮栅器件的研究已经取得 了不错的进展。另一方面,两端式浮栅器件被陆 续提出。与三端浮栅器件不同,两端浮栅器件中 仅通过漏端电极实现电荷隧穿和沟道电流的读 取。Vu等<sup>[6]</sup>制造了一种由单层 MoS<sub>2</sub>/h-BN/单层石 墨烯垂直堆叠的两端浮栅存储器(图6(d)~(g)), 通过h-BN隧穿势垒对石墨烯浮栅进行充放电,器 件展现出10<sup>-14</sup>A的低关态电流和超过10°的超高 开关比。对具有不同h-BN厚度的器件进行表征, 发现合适的 h-BN 厚度范围为 5.5 nm 和 7.5 nm, 在该厚度下,电荷能够存储在石墨烯中而不会产 生明显的泄漏电流。Zhang等<sup>[65]</sup>设计了一种基于 两端浮栅存储器的人工突触,该器件全部由二维 范德华材料构建,以多层石墨烯为浮栅,h-BN为 隧穿层,单层MoS2用作沟道。通过使用相同脉冲 的简单编程操作,即可实现具有高线性度和对称 性(0.18/-0.29)的电导变化,且分立的电导状态 数高达3000个。此外,该器件具有40 ns的高开 关速度和仅18 fJ的单脉冲能耗。基于该器件, Zhang等成功模拟了生物突触的 EPSC/IPSC、LTP/ LTD 行为,并在 MNIST 模拟中实现了高达 97.7% 的分类精度。

低维浮栅突触器件的低开关速度是限制其在 神经形态领域进一步应用的一个主要因素。大多 数低维浮栅器件的擦写速度在毫秒量级,低于商 用硅基闪存<sup>[22]</sup>(微秒)和其他非易失性存储器。研 究发现,调节隧穿势垒的高度对浮栅器件的速度 会产生重要影响。Zhou等<sup>[66]</sup>基于 MoS<sub>2</sub>/hBN/多层 石墨烯(MBG)范德华异质结构,实现了具有20 ns 超快擦写速度的非易失性浮栅晶体管(图6(h)~ (k))。对器件底层工作机制的研究表明,石墨烯 的可调费米能级对于实现该高速浮栅器件起关键 作用。当施加较大的写入电压,石墨烯电极的费 米能级会高于h-BN的导带边缘,使得石墨烯电极 处的高能"幸运电子"在穿过Cr/MoS2界面的小三 角形势垒后将不会再遇到势垒,从而产生大的隧 穿电流,导致写入/擦除时间非常短。在此基础 上,该课题组<sup>671</sup>以Cr/Au电极作为浮栅,设计了 MoS<sub>2</sub>/h-BN/(Cr/Au)异质结构的浮栅晶体管,在Cr/ Au 金属浮栅层和 h-BN 隧穿层之间形成了干净的 界面。与石墨烯浮栅(功函数~4.6 eV)相比,金 属Au(~5.1 eV)浮栅的大功函数在阻挡层和隧穿 层之间形成了更深的势垒,确保了电荷泄漏更少, 稳定性更高。器件展示出1000s的保持时间、10<sup>8</sup> 的开关比和20 ns的开关速度。除了通过势垒调 制和制备高质量界面的方式提高闪存速度,将闪 存与 p-n 结相结合的半浮栅存储器也是解决速度 问题的另一途径。Zhou等<sup>[68]</sup>设计了WSe<sub>2</sub>/(MoS<sub>2</sub>, h-BN)/HfS,异质结构的半浮栅存储器(图 6(1)~ (o)),在源电极区由WSe,沟道和MoS,半阻挡层形 成 p-n 结开关。漏极区保持传统的浮栅结构,以 h-BN充当阻挡层并插入WSe,沟道和HfS,浮栅之 间。当p-n结导通时,电荷主要通过p-n结在浮栅 和沟道之间传输,因此可以实现超快的写入速度。 当p-n结关断时,由于h-BN层存在,沟道和浮栅之 间的电荷传输被禁止。基于该原理,器件实现了 纳秒级(约15 ns)的超高速写入速度。然而,尽管 p-n结的引入大大提高了器件写入速度,但较慢的 擦除速度仍然限制了器件性能的整体提升。Li 等<sup>60</sup>通过精心设计器件结构,使用外部 p-n 结直接 对浮栅进行充放电(图6(n)),由于来自浮栅电极 的电荷的直接注入或复合,擦除速度大大提高到 纳秒级。实现了具有对称写入(40 ns)-擦除(40 ns)速度的半浮栅存储器。

表3总结了基于浮栅结构的典型人工突触器件的性能。基于浮栅的人工突触器件目前已经取得了较大的进展,但仍存在一些问题有待解决。

例如,(1)高工作电压。由于大多数浮栅突触器件 中存在较厚的阻挡层,器件的工作电压(>4V)普遍 高于其他类型的人工突触器件,这对于构建低功耗 的人工神经形态系统仍然是一个挑战,未来仍需考 虑如何在保持其他器件性能的前提下进一步降低工 作电压。(2)电导变化的线性度和对称性还需改 善。基于电荷隧穿机制的人工突触器件,其电导变 化的线性度和对称性通常较差。为了改善这一特 性,研究人员通常采用增量步进脉冲代替幅值相同 的脉冲,虽然电导变化的线性度和对称性得到了有 效的改善,但额外增加了电路的复杂度。后续还需 要更多地从器件层面探索,以改善这一性能。

表3 基于低维材料的典型浮栅突触器件性能总结

Tab. 3 Perf	ormano	ce summa	ary of typic	eal floating	gate synaj	ptic devices based on low-	dimensio	nal materials	
器件结构			神经形态计算						
材料 (沟道/隧穿层/ 浮栅层/栅绝缘层)	结构	开关比	存储窗/ V	保持性/ s	耐久性/ cycle	编程 脉冲	功耗 (LTP/ LTD)	突触 可塑性	参考 文献
HfS <sub>2</sub> /h-BN/Gr/SiO <sub>2</sub>	三端	>10 <sup>5</sup>	~100	>104	>10 <sup>3</sup>	(-20. 0/15. 0 V, 50. 0 ms)	0. 2 pJ	PPF <sub>\</sub> STP <sub>\</sub> LTP <sub>\</sub> LTD	[58]
$MoS_2/HfO_2/Pt/HfO_2$	三端	10 <sup>5</sup>	11	$10^{4}$	$10^{4}$	(-5.0/4.5 V, 50.0 ms)	1 nJ	PPF \LTP \ LTD \STDP	[59]
$WSe_2/HfO_x/HfS_2/SiO_2$	三端	10 <sup>5</sup>	>60	>10 <sup>3</sup>	>250	—	_	PPF、STP、 LTP、LTD	[60]
$MoSSe/Al_2O_3/BPQDs/Al_2O_3$	三端	_	3	_	—	(-4.5/5.5 V, 50.0 ns)	0. 58/ 0. 86 fJ	PPF、PPD、STP、 LTP、LTD	[5]
$MoS_2/h-BN/(Cr/Au)/SiO_2$	三端	$10^{8}$	27.8	10 <sup>3</sup>	>400	(±25.0V,20.0ns)	_	_	[67]
Pentacene/TiO <sub>2</sub> /MXene/ SiO <sub>2</sub>	三端	10 <sup>6</sup>	>35.2	>10 <sup>4</sup>	300	(-10.0/10.0V,10.0ms)	3.8 pJ	PPF、LTP、LTD	[70]
$\rm SnS_2/h\text{-}BN/FLG/SiO_2$	三端	10 <sup>5</sup>	_	>10 <sup>4</sup>	>10 <sup>3</sup>	(-8.0/8.0 V,100.0 ms)	7 pJ	PPF、LTP、 LTD、SRDP	[71]
MoS <sub>2</sub> /h-BN/Gr	两端	>109	4	—	—	(±6.0 V,10.0 ms)	_		[6]
MoS <sub>2</sub> /h-BN/Gr	两端	10 <sup>8</sup>	_	>104	>10 <sup>5</sup>	(±15.0 V,40.0 ns)	18 fJ	EPSC \IPSC \ LTP \LTD	[65]

#### 4.4 低维材料的离子栅人工突触器件

离子栅突触晶体管具有与传统金属氧化物半 导体场效应晶体管相似的结构,不同之处在于,离 子栅突触晶体管使用电子绝缘和离子导电的电解 质代替传统MOS管的栅极绝缘层。在栅极电场 作用下,电解质中的离子会发生移动,根据沟道材 料的不同,离子栅突触晶体管有两种不同的工作 机制:静电掺杂机制和电化学掺杂机制<sup>[72]</sup>。对于 静电掺杂类型,沟道材料是不可渗透的,在栅压作 用下,电解质中的离子移动并积聚在沟道和电解 质之间的界面上,在界面周围局部形成具有高电 容的双电层。而对于电化学掺杂类型,其沟道材 料是可渗透的,形成了双电层后,随着栅极电场的 增强,电解质中的功能离子被插入沟道料中,以非 易失性方式进一步调节沟道电导。因此,它可以 模拟多种突触可塑性。常用的电解质材料通常分 为有机电解质和无机电解质。有机电解质具有低

成本、柔性、化学多功能性等独特的特性,被广泛 用于制备离子栅突触晶体管,常见的有机电解质 材料有掺杂有聚(苯乙烯磺酸盐)的聚(3,4-亚乙 基二氧噻吩)(PEDOT: PSS)、聚乙烯醇(PVA)、壳 聚糖(Chitosan)等。然而,由于有机电解质材料与 CMOS器件制备的工艺不兼容,难以进行大规模 器件制备,且基于有机电解质形成的介电层容易 受环境温度和湿度的影响,导致器件性能降低。 因此,无机固态电解质是制备离子栅突触晶体管 更有利的材料。目前常使用的无机固态电解质材 料较少,主要有全氟磺酸基聚合物(Nafion)、钴酸 锂(LiCoO<sub>2</sub>)、锂磷氧氮(LiPON)等。基于无机固 态电解质制备的器件通常具有较为光滑和平整的 界面,且电解质特性几乎不受环境影响,有利于实 现器件的大规模制备和集成。电解质中的功能离 子多种多样,它们可以是阳离子或阴离子,如H\*、 Li<sup>+</sup>、0<sup>2-</sup>等。基于离子栅的突触器件通常具有三端 或多端结构,多端器件通常表现为平面结构,多个 输入端可模拟与突触相连的多个前神经元,从而 实现更为复杂的突触活动。

传统的离子栅突触晶体管常采用氧化铟锡 (ITO)、铟镓锌氧化物(IGZO)等材料作为有源层, 离子在绝缘层/半导体界面积累或进入半导体沟 道,从而模拟突触的短期/长期可塑性。近年来, 基于1D碳纳米管、1D纳米线和多种2D材料的离 子栅突触晶体管的研究也取得了一定的进展。

Chen等<sup>[73]</sup>以1D碳纳米管材料为沟道,PEG为 电解质,设计制造了碳基离子栅突触晶体管,实现 了EPSC、LTP/LTD、STDP等突触可塑性。Zhang 等<sup>[9]</sup>以碳纳米管为沟道层、PVA为电解质层,实现 了小电压下易失、大电压下非易失的器件电导调 制(图7(a)~(c))。器件能够实现多种突触功能, 包括 PPF、SNDP、SADP等。此外,在1000次弯曲



- 图 7 离子栅突触器件。采用H<sup>+</sup>导电的液态电解质制备的离子栅晶体管:(a)碳基离子栅突触晶体管示意图<sup>[9]</sup>;(b)碳基 离子栅突触晶体管工作原理<sup>[9]</sup>;(c)器件的EPSC和IPSC响应<sup>[9]</sup>。采用Li<sup>+</sup>导电的液态电解质制备的离子栅晶体管: (d)离子栅突触晶体管示意图,以2D范德华材料为沟道<sup>[76]</sup>;(e)Li<sup>+</sup>嵌入到范德华间隙<sup>[76]</sup>;(f)器件的LTP和LTD曲 线<sup>[76]</sup>。采用Li<sup>+</sup>导电的固态电解质制备的离子栅晶体管:(g)全固态电解质MoS<sub>2</sub>晶体管示意图<sup>[79]</sup>;(h)连续增强和抑 制脉冲下的电流响应<sup>[79]</sup>;(i)STDP学习规则和两个器件的拟合曲线<sup>[79]</sup>。
- Fig.7 Ion gate synaptic device. Ion-gate transistor prepared by H<sup>+</sup> conducting liquid electrolyte: (a) schematic diagram of carbon-based ion gate synaptic transistor<sup>[9]</sup>, (b) working principle of carbon-based ion gate synaptic transistor<sup>[9]</sup>, (c) EPSC and IPSC responses of devices<sup>[9]</sup>. Ion-gate transistor prepared by Li<sup>+</sup> conducting liquid electrolyte: (d) schematic diagram of an ion-gate synaptic transistor with 2D van der Waals material as a channel<sup>[76]</sup>, (e) Li<sup>+</sup> is embedded into the van der Waals gap<sup>[76]</sup>, (f) LTP and LTD curves of a device<sup>[76]</sup>. Ion-gate transistor prepared by Li<sup>+</sup> conducting solid electrolyte: (g) schematic diagram of all-solid electrolyte MoS<sub>2</sub> transistor<sup>[79]</sup>, (h) current response under continuous enhancement and suppression pulses<sup>[79]</sup>, (i) STDP learning rules and fitting curves of two devices<sup>[79]</sup>.

循环后,由于机械性能良好,器件保持了良好的突 触功能。由于较高的表面体积比以及有利的电荷 传输,1D纳米线可进一步提升突触晶体管的特 性。Xu等<sup>[74]</sup>设计了一种基于有机纳米线(Organic nanowire, ONW)沟道和离子凝胶电解质的离子栅 突触晶体管,核鞘(Core-sheath)结构的ONW使得 晶体管能够很好地模拟神经纤维的形态,单个 ONW 晶体管的每次突触事件仅消耗约1.23 fJ,这 与生物突触的情况相当。器件实现了对生物突触 的EPSC、IPSC、PPF、LTP、LTP、STDP等行为的模 拟,为进一步开发低功耗、高密度、柔性类脑计算 系统提供了解决方案。Chang等<sup>[75]</sup>通过低成本的 静电纺丝技术和简单的纳米线转移工艺,制造了 基于铟锌氧化物(InZnO)纳米线阵列和LiClO<sub>4</sub>电 解质的三端电解质栅突触晶体管,模拟了生物突 触的 EPSC、PPF、LTP、LTD 等特性。基于实验测 量的LTP/LTD特性,模拟了人工神经网络用于手 写数字识别,识别准确率达93.1%。

对于 2D 材料, Zhu 等<sup>[76]</sup>研究了以多种 2D vdW 层状晶体 WSe<sub>2</sub>、NiPS<sub>3</sub>、FePSe<sub>3</sub>做沟道, LiClO<sub>4</sub>/PEO 为电解质层的离子栅突触晶体管(图 7(d)~(f))。 当一系列连续的电压脉冲施加到栅极时,可以清 楚地观察到从 STP到 LTP 的转变, 表明 Li<sup>+</sup>插入到 沟道, 这是由于 2D vdW 沟道材料相对开放的微观 结构为 Li<sup>+</sup>提供了大量的插层位置(图 7(e))。器 件可模拟突触短期和长期可塑性, 如 EPSC、PPF、 SRDP等, 能耗低至约 30 fJ/spike。此外, 当施加连 续的 60 个增强(1.2 V, 100 ms)和抑制(-0.4 V, 100 ms)栅脉冲, 电导变化显示出良好的线性和对 称性(图 7(f)), 这对于神经形态应用非常重要。 由于 Li<sup>+</sup>的迁移可以使 MoS<sub>2</sub>发生可逆的 2H-1T'结 构相变<sup>[77]</sup>, 基于这种效应的器件表现出可靠的忆 阻特性。近年来, 以 MoS<sub>2</sub>作为沟道材料的锂离子

栅突触晶体管被广泛研究。Sun等<sup>[78]</sup>使用聚环氧 乙烷(PEO)和高氯酸锂(LiClO<sub>4</sub>)作为横向耦合的 离子传导电解质,制造了共面结构的2D MoS2突 触晶体管。由于强双电层(EDL)效应,器件能够 在1V的低工作电压下工作并实现10°的高开/关 比。成功模拟了突触的短期和长期可塑性,包括 EPSC、PPF、LTP、LTD 和高通滤波。然而,机械剥 离法制备的 MoS<sub>2</sub>不利于大规模应用,且液态有机 电解质与传统CMOS工艺不兼容。为解决这一问 题,Zhang等<sup>[79]</sup>采用两步法制备了具有可控层数的 晶圆级多晶 MoS2,并将其用作沟道材料,结合钴 酸锂(LiCoO<sub>2</sub>)固态电解质,制备了离子栅突触晶 体管(图7(g)~(i))。器件显示出线性的电导变化 和典型的突触行为,包括PPF、STP、LTP/LTD、 STDP等。除了单纯以电信号刺激促进离子迁移 的方式来模拟突触行为,光信号的引入可以进一 步丰富离子栅突触晶体管在神经形态领域的应 用。Meng等<sup>[80]</sup>受生物眼睛的启发,制造了一种基 于 MoSSe/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/PI(Li<sup>+</sup>)/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/ITO 结构的离子栅突 触晶体管,模拟人体视网膜。其中,旋涂在Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 层上的含有 Li<sup>+</sup>的聚酰亚胺(PI)溶液充当电解质 层, MoSSe沟道可以被电信号或 Lit调制,也可以 被光信号调制。通过在 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/电解质界面形成 EDL,器件可实现多种突触功能,如PPF、STP、 LTP/LTD、SNDP。引入光刺激后,器件将传感、存 储和神经形态计算功能集于一体,实现了类眼的 光适应、手写数字的预处理和识别等功能。这项 工作为未来用于光电人工视网膜感知应用提供了 一种策略。

表4总结了基于离子栅的典型人工突触器件的性能。离子栅突触晶体管基于混合的电子/离子调制,在神经形态领域具有独特的优势,包括小的工作电压、线性且对称的电导调制。然而,目前

Та	b. 4 Perform	ance s	ummary	of typical	ion-gate s	ynaptic devices l	based on low-dim	ensional materials		
器			器化		神经形态计算					
沟道	中細毛	结构	五子山	线性度/	′保持性/ s	编程	功耗	突触	参考	
	电胜灰		开天比	%		脉冲	(LTP/LTD)	可塑性	文献	
WSe2, NiPS3,	LICIO /PEO	北面		_	>5×10 <sup>3</sup>	(1.2/-0.4 V,	20 fI	EPSC、PPF、STP、	[76]	
$\mathrm{FePSe}_3$		州山			25×10	100 ms)	50 1	LTP \LTD \SRDP		
M-S	L:CIO /DEO	北西	105		—	(0.5/-0.7V,		EPSC、PPF、	[78]	
M052	MOS <sub>2</sub> LICIO <sub>4</sub> /PEO	光田	10	_		100 ms)	—	LTP、LTD		
$MoS_2$		T. +	5 ± 105	0.0		(1.2/-1.2 V,		PPF STP LTP	5 - · · 7	
	LiCoO <sub>2</sub>	LiCoO <sub>2</sub>	CoO <sub>2</sub> 垂直	10	10	98	>150	100 ms)	—	LTD、STDP

表4 基于低维材料的典型离子栅突触器件性能总结

					表 4	(续)			
器任			器	神经形态计算					
沟道	电解质	结构	开关比	线性度/	保持性/	编程	功耗 (ITP/ITP)	突触	参考
				%	s	肋杆甲	(LIP/LID)	り 空 住	
P <sub>3</sub> HT-PEO 有 机 纳米线	离子凝胶	垂直	—	—	—	(-1/1 V, 50 ms)	~1.23 fJ	EPSC、IPSC、PPF、 LTP、LTP、STDP	[74]
InZnO 纳米线	LiClO <sub>4</sub> /PEO	垂直	—	—	—	(0.5/-0.5 V, 50 ms)	0.8 pJ	EPSC、PPF、LTP	[75]
CNT	PEG	垂直	—	—	—	(5 V, 1 ms)	7.5 pJ	EPSC \LTP \LTD \STDP	[73]
CNT	PVA	垂直	>104	_	_	(-5/5 V, 50 ms)	420/360 aJ	PPF、LTP、LTD、	[9]

对于这类器件的研究仍处于起步阶段,对于未来 大规模神经形态系统的应用,许多器件性能还有 待提高。例如,(1)由于离子迁移导致的低开关速 度,未来应寻找并选择具有高离子迁移率的栅极 电解质和沟道材料以缩短离子迁移时间;或者可 通过进一步缩小器件尺寸(如,减薄电解质厚度) 来缩短离子迁移距离,从而提高器件开关速度。 (2)面对高密度集成应用,有机电解质材料带来的 器件加工工艺不兼容和器件均一性差的问题需要 尽快解决。建议未来更多地选用无机固态电解质 材料,改善器件性以拓宽其应用范围。

## 5 基于低维材料的人工神经元器件

在神经生物学中,神经元接收来自树突的兴奋性或抑制性突触后电流,随着电流在细胞体内整合(Integrate),细胞膜电位会发生相应的变化。 当整合达到阈值电位时,神经元会激活(Fire)并产生动作电位(Action potential, AP)。为了实现 真正意义上的人工神经网络,对于人工神经元器 件的设计必不可少。

目前,神经科学家们已经提出了各种模型 (例如,Hodgkin-Huxley模型、Integrate-and-Fire模型、Leaky Integrate-and-Fire模型)来解释神经元 的工作方式。其中,Hodgkin-Huxley(HH)模型揭 示了生物神经元细胞膜上离子通道(主要是 Na<sup>+</sup> 和K<sup>+</sup>通道)的电导率变化和神经元膜电位之间的 关系,从基本原理上解释了生物神经元的工作方 式。Integrate-and-Fire(IF)模型忽略了动作电位 具体的动态特性,只考虑膜电位的被动特性和动 作电位的触发,即将整个神经元看作一个整体, 仅研究神经元的输入和输出关系。当神经元接 收到神经脉冲信号后,膜电位发生变化,超过特 定的阈值后开始发放神经脉冲。IF模型是对HH 模型的一种简化,更容易集成于神经网络中。但 IF模型缺少自发的漏电(Leaky)过程,在没有神经 脉冲时,膜电位保持不变,只有完成脉冲发放后, 神经元才恢复初始状态。然而实验证明,具有 leaky功能的神经元模型更具有鲁棒性和泛化性。 漏电整合激活(Leaky integrate-and-fire, LIF)模型 在 IF模型的基础上引入了 leaky功能,当输入脉 冲没有到达阈值时,膜电位会自发衰减到低于静 息电位的状态,然后逐渐上升到静息电位,更具 生物合理性<sup>[26]</sup>。

在硬件电路中基于 CMOS电路的设计可用于 实现人工神经元,然而这类电路往往需要数十个 晶体管,功耗和集成度受到了极大的限制<sup>[81]</sup>。近 年来,基于忆阻器、PCM、Mott 器件和铁电器件的 人工神经元被陆续提出。然而,与人工突触器件 相比,关于人工神经元器件的研究相对较少。本 节介绍了具有两端、三端和多端结构的基于 2D 材 料的人工神经元器件。

具有两端结构的神经元与基于忆阻器结构的 突触器件具有相似的工作原理,都是基于两电极 之间导电细丝的形成和断裂实现HRS和LRS之 间的切换。不同之处在于,两端神经元器件中,导 电细丝在外加电场撤去后会自发断裂,从而表现 出易失性行为,赋予了器件与神经元相关的功能。 利用电场下Ag在MoS2晶格中的快速扩散和迁 移,Dev等<sup>[39]</sup>设计了一种Au/MoS2/Ag忆阻器结构 的神经元,实现了具有低阈值电压和高开关比 (10°)的易失性电阻开关。依赖于面积和温度的 测量结果表明,易失性开关源于复杂的银离子动 力学。在适当的电场作用下,银从顶部电极通过 沟道材料扩散,并在顶部和底部电极之间形成导 电路径。去除电场后,银丝自发断裂收缩成球体。 作者将器件与一个简单的RC电路集成,以模拟 LIF 神经元,该神经元与生物神经元一样,具有全 或无尖峰、阈值驱动放电和基于刺激强度的频率 响应,并显示随输入和电路参数变化的时间响应。 Hao 等<sup>100</sup>将离子迁移动力学和电化学反应引入到 单层 MoS<sub>2</sub>单晶中,实现了 2D 神经元(图 8(a)~ (c))。基于外加电场下导电 Ag丝的形成和断裂 (图 8(b)),模拟了复杂的 LIF 电生理过程(图 8(c))。此外,可以通过调节输入电压脉冲来容易 地调制人工神经元的激发频率和弛豫时间。最 后,将基于 MoS<sub>2</sub>的神经元与非易失性突触阵列集 成,构建了全忆阻人工神经网络并实现了模式 分类。



- 图 8 人工神经元器件。具有两端结构的人工神经元器件:(a)Ag/MoS<sub>2</sub>/TiW器件示意图<sup>[10]</sup>;(b)Ag/MoS<sub>2</sub>/TiW器件的工作 机制示意图<sup>[10]</sup>;(c)基于 MoS<sub>2</sub>的忆阻器在连续脉冲刺激下的LIF 行为<sup>[10]</sup>。具有三端结构的人工神经元器件:(d)神 经元晶体管示意图<sup>[82]</sup>;(e)在神经元上施加电压脉冲序列的整合与激活行为<sup>[82]</sup>;(f)神经元晶体管对兴奋性输入和 抑制性输入的空间整合行为的演示<sup>[82]</sup>。
- Fig.8 Artificial neuron device. Artificial neuron device with two terminals: (a) schematic diagram of an Ag/MoS<sub>2</sub>/TiW device<sup>[10]</sup>, (b) schematic diagram of working mechanism of Ag/MoS<sub>2</sub>/TiW device<sup>[10]</sup>, (c) the LIF behavior of MoS<sub>2</sub> based memristive device under a continuous pulse train<sup>[10]</sup>. Artificial neuron device with three terminals: (d) schematic diagram of a neuron transistor<sup>[82]</sup>, (e) integration and fire of voltage impulse sequences applied to neurons<sup>[82]</sup>, (f) demonstration of the spatial integration behavior of neuronal transistor for excitatory and inhibitory inputs<sup>[82]</sup>.

除了上述两端神经元器件,基于三端/多端结构的神经元器件也被提出。Li等<sup>[82]</sup>通过集成一个 阈值开关(Threshold switch, TS)与一个栅控二维 半导体 MoS<sub>2</sub>沟道,展示了一个单晶体管人工兴奋-抑制(Excitatory-Inhibitory, E-I)神经元(图 8(d)~ (f))。在漏极施加的电脉冲充当兴奋性输入信 号,使得器件表现出LIF行为;而在栅极施加的电 脉冲充当抑制性输入信号,与兴奋性信号协同作 用,使器件实现神经元对输入信号的时空整合。 独特的设计使得器件在没有外围电路的情况下, 在单一器件中即可实现多种神经元行为,为未来 实现紧凑的神经形态系统提供了新途径。Wan 等<sup>[83]</sup>首次提出利用质子传导的石墨烯氧化物 (GO)作为静电耦合电解质,制造了基于多栅极结 构的神经元晶体管。该器件不仅实现了树突整合 功能。更重要的是,实现了速率编码方案中的神 经元增益控制(算法)。由于这些功能与神经计算 (如模式识别、感觉处理等)高度相关,这种神经元 晶体管为构建神经形态认知系统提供了新的解决 方案。

## 6 低维人工神经形态器件的应用

要在真正意义上实现类脑计算和人工智能, 需要通过由人工神经元和突触器件组成的各种神 经网络和电路来实现感知、学习、识别、运动等智 能功能。目前对于人工神经网络的硬件实现仍处 于起步阶段,大多数研究致力于实现大规模阵列 的制备,或将高性能的神经形态器件与CMOS电



- 图 9 人工神经形态器件的应用。(a)人体视神经系统原理图,与h-BN/WSe<sub>2</sub>光电探测器集成的h-BN/WSe<sub>2</sub>突触器件以及 相对应的简化电路<sup>[85]</sup>;(b)MoS<sub>2</sub>突触器件在声音定位中的应用<sup>[87]</sup>;(c)由纤维神经形态器件、信号处理模块、人造纤 维肌肉和效应器构成的纤维人工神经肌肉系统,用于模拟人类的膝跳反射<sup>[88]</sup>;(d)完全集成的 8×8 密码引擎交叉阵 列(左图)<sup>[92]</sup>、由 5 个 MoS<sub>2</sub>晶体管(5T 单元)组成的代表性密码引擎(中间图)<sup>[92]</sup>和单个 MoS<sub>2</sub>神经形态晶体管器件结 构(右图)<sup>[92]</sup>;(e)人工神经网络集成电路的假彩色光学显微图像,其中红色方块对应于 ANN电路<sup>[93]</sup>;(f)由 CMOS编 码器芯片和 Memristor解码器芯片及其子功能块组成的系统架构,用于边缘计算任务<sup>[94]</sup>。
- Fig.9 Application of artificial neuromorphic devices. (a)Schematic diagram of the human optic nervous system, an h-BN/WSe<sub>2</sub> synaptic device integrated with the h-BN/WSe<sub>2</sub> photodetector, and a corresponding simplified circuit<sup>[85]</sup>. (b) Application of MoS<sub>2</sub> synaptic devices in sound localization<sup>[87]</sup>. (c)A fiber artificial neuromuscular system consisting of fiber neuromorphic devices, signal processing modules, artificial fiber muscles, and effectors to simulate the human knee jerk reflex<sup>[88]</sup>. (d)A fully integrated cross array of 8×8 cryptographic engines (left)<sup>[92]</sup>, a representative cryptographic engine consisting of five MoS<sub>2</sub> transistors(5T cells)(middle)<sup>[92]</sup>, and a single MoS<sub>2</sub> neuromorphic transistor device structure(right)<sup>[92]</sup>. (e) False color optical microscopic image of an artificial neural network integrated circuit, where the red squares correspond to ANN circuits<sup>[93]</sup>. (f)A system architecture consisting of a CMOS encoder chip, a Memristor decoder chip and their subfunctional blocks for edge computing tasks<sup>[94]</sup>.

路相结合,用于实现视觉、触觉的感知与识别,以 及生物的学习、记忆、认知等功能,以期望未来最 终实现智能化人工神经形态系统。

基于 WSe2 优异的光学特性<sup>[84]</sup>, Seo 等<sup>[85]</sup> 展示 了一种h-BN/WSe,异质结构的光学神经突触器件 (图9(a)),其同时实现了突触和光传感功能。将 该器件应用于光学神经网络中时,成功模拟了人 类视觉系统的彩色和混合彩色模式识别能力。 Sun 等<sup>[86]</sup>设计了基于 2D SnS 的两端结构的光电忆 阻器,通过原子薄材料中的电荷俘获/脱俘获动力 学和光栅控效应的协同作用,实现了双模式操作 (电和光刺激驱动)下的高性能和多功能忆阻行 为,能够在传感器内执行储备池计算(Reservoir computing, RC)。对具有小自然误差的实用韩语 句子进行分类,达到了91%的准确率。光电刺激时 空信号的低训练成本和实时处理利于构建高效的边 缘机器学习。Sun等<sup>[87]</sup>通过在Jeffress模型电路中应 用可调的兴奋性和抑制性 MoS<sub>2</sub>突触器件,演示了神 经形态计算在声音定位中的应用(图9(b))。Ni等[88] 提出了由电解质、石墨烯和铜线芯组成的纤维神经 形态器件的设计和制作。通过将该器件与人造肌肉 纤维结合,构建了纤维水平的神经集成肌肉系统,成 功地模拟了对环境刺激的无条件反射,并模拟了人 体的膝跳反射(图9(c))。

对于阵列集人工神经形态器件的实现和应 用,近年来也取得了一定的进展。Zhu等<sup>[89]</sup>使用碳 纳米管和钙钛矿量子点的组合作为沟道材料,设 计了具有超强光灵敏度的光电传感器,提出了一 个1024像素的柔性光电传感器阵列。Chen等<sup>[90]</sup> 利用 CVD 生长的大面积多层 h-BN 作为电阻开关 材料,在2英寸晶圆上制备了基于Au/h-BN/Au和 Ag/h-BN/Ag垂直结构的高密度忆阻器交叉阵列, 阵列表现出高产量(98%)、低循环间变异性 (1.53%)和低器件间变异性(5.74%)。根据所使 用的电极材料(Au用于双极开关,Ag用于阈值开 关)不同,器件表现出不同的开关机制;根据不同 的器件性能(如大的电导动态范围和 zJ 级开关能 耗),器件适用于不同的神经形态电路。此外,研 究人员基于集成的 Au/h-BN/Au 忆阻器交叉阵列, 建立了一个多层感知器网络模型用于图像识别, 结果表明,128×128交叉阵列的分类精度与CMOS 计算体系的分类精度(98.02%)仅相差0.8%以 内。这项工作为低维材料在高密度神经形态领域

中的发展奠定了基础。在利用神经网络对图像信 息进行加密和解密<sup>[91]</sup>的应用中,Dodda等<sup>[92]</sup>基于单 层 MoS<sub>2</sub>的 2D 晶体管,提出并实验证明了一种"一 体式"8×8阵列的加密引擎(图9(d)),用于编码8× 8像素的图像。每个引擎包括5个单片集成的2D 晶体管,以实现传感和编码功能。整个硬件系统 共使用了 320个 2D MoS2晶体管,已经构成了基于 2D材料和器件的中等规模集成电路,能够实现包括 传感、计算、存储和安全在内的一体式物联网功能。 Ma等<sup>[93]</sup>基于CVD生长的高质量连续MoS2薄膜,首 次实现了第一个功能强大的 MoS2 人工神经网络 (ANN)芯片(图9(e))。该芯片由818个场效应晶体 管组成,包括乘法累加(MAC)电路、存储器阵列和激 活功能电路。基于该神经网络电路,成功演示了触 觉数字传感识别,训练后的神经网络识别准确度超 过97%。Kumar等<sup>1941</sup>设计了基于二维忆阻器交叉阵 列和CMOS集成电路的混合架构,其中CMOS电路 用于实现编码功能,基于2Dh-BN的忆阻器交叉阵 列用于实现解码功能(图9(f))。所设计的系统可用 于多种应用,如音频检测、语音和非语音检测、图像 分类以及其他边缘计算任务。

#### 7 总结与展望

本文综述了有望用于人工神经形态系统中的 基于低维材料的新器件,包括人工突触器件和人 工神经元器件。每一种器件都有相应的优缺点, 通过选择合适的材料和设计器件结构可以获得所 需的器件性能。虽然基于低维材料的神经形态器 件已在图像识别、视觉感知等领域得到了初步应 用,但目前对于低维材料神经形态器件的研究还 处于起步阶段。因此,在材料选择、材料制备、结 构优化等方面还需进一步探索。

(1)材料选择:低维材料具有宽的带隙范围, 能够表现出从绝缘体到金属的不同物理特性。其 中,不同维度的材料(0D、1D、2D)都具有其独特的 优势。未来要进一步实现具有不同功能的神经形 态器件,需要精确选择合适的材料,合理设计能带 匹配的器件结构。同时,在使用多种材料进行器 件制备的过程中,还应当考虑材料复杂度和器件 性能之间的平衡。例如,需要解决金属电极和2D 材料之间的费米钉扎效应来实现良好的欧姆接 触,以及解决在2D材料上制备高质量超薄介电层 的工艺挑战。应解决神经形态器件的新材料与集 成电路工艺兼容性的问题。 (2)材料制备:目前制备基于低维材料的神经 形态器件多采用机械剥离等方法获得小面积低维 材料,这种方法极大地限制了器件的大规模制造 和系统级应用。最近,随着金辅助机械剥离法、化 学气相沉积(CVD)、脉冲激光沉积(PLD)、分子束 外延(MBE)、水热生长等方法的提出,制备晶圆级 大尺寸低维材料成为可能。尽管已取得了相应的 进步,科研人员仍需继续努力,优化现有的方法或 提出新方法以实现对各种低维材料的大面积制 备。尤其是目前已经在多种器件中表现出优异性 能的二维材料(如MoS<sub>2</sub>等),迫切需要开发出高质 量、均匀的晶圆级单晶二维材料。

(3)结构优化:目前没有一种器件能够集成所 有器件的优点,每一种器件受到其自身工作原理 的限制,都存在一定的不足。如何通过设计新结 构或提出新原理的方式进一步优化器件性能,是 科研人员需要不断思考的问题。此外,对于现有 的器件,如何在保持自身优势不变的情况下更好 地平衡不同性能(如开关速度、保持时间、开关比、 功耗等)指标,仍需进一步讨论。

综上所述,基于低维材料的神经形态器件是 近几年来的新兴领域,为神经形态计算带来了新 的优势和机遇。相信未来经过在材料、器件结构、 工艺集成等方面的进一步优化,基于低维材料的 人工神经形态器件在未来将能构建出有丰富智能 处理功能的超大规模神经形态芯片。

本文专家审稿意见及作者回复内容的下载地址: http://cjl. lightpublishing. cn/thesisDetails#10.37188/ CJL. 20230051.

## 参考文 献:

- [1]张玲,刘国柱,于宗光.人工神经形态器件发展现状与展望[J]. 电子与封装, 2021, 21(6): 060101-1-14.
   ZHANG L, LIU G Z, YU Z G. Recent advances in neuromorphic devices [J]. *Electron. Packag.*, 2021, 21(6): 060101-1-14. (in Chinese)
- [2] ZHONG H, SUN Q C, LI G, et al. High-performance synaptic transistors for neuromorphic computing [J]. Chin. Phys. B, 2020, 29(4): 040703-1-15.
- [3] MEROLLA P A, ARTHUR J V, ALVAREZ-ICAZA R, et al. A million spiking-neuron integrated circuit with a scalable communication network and interface [J]. Science, 2014, 345(6197): 668-673.
- [4] XU R J, JANG H, LEE M H, et al. Vertical MoS<sub>2</sub> double-layer memristor with electrochemical metallization as an atomic-scale synapse with switching thresholds approaching 100 mV [J]. Nano Lett., 2019, 19(4): 2411-2417.
- [ 5 ] MENG J L, WANG T Y, CHEN L, et al. Energy-efficient flexible photoelectric device with 2D/0D hybrid structure for bio-inspired artificial heterosynapse application [J]. Nano Energy, 2021, 83: 105815.
- [ 6 ] VU Q A, SHIN Y S, KIM Y R, et al. Two-terminal floating-gate memory with van der waals heterostructures for ultrahigh on/off ratio [J]. Nat. Commun., 2016, 7: 12725-1-8.
- [7] WANG H, LU W H, HOU S H, et al. A 2D-SnSe film with ferroelectricity and its bio-realistic synapse application [J]. Nanoscale, 2020, 12(42): 21913-21922.
- [8] SI M W, LIAO P Y, QIU G, et al. Ferroelectric field-effect transistors based on MoS<sub>2</sub> and CuInP<sub>2</sub>S<sub>6</sub> two-dimensional van der Waals heterostructure [J]. ACS Nano, 2018, 12(7): 6700-6705.
- [9] WANG Y R, HUANG W H, ZHANG Z W, et al. Ultralow-power flexible transparent carbon nanotube synaptic transistors for emotional memory [J]. Nanoscale, 2021, 13(26): 11360-11369.
- [10] HAO S, JI X L, ZHONG S, et al. A monolayer leaky integrate-and-fire neuron for 2D memristive neuromorphic networks
   [J]. Adv. Electron. Mater., 2020, 6(4): 1901335-1-8.
- [11] HUO J L, YIN H X, ZHANG Y D, et al. Quasi-volatile MoS<sub>2</sub> barristor memory for 1T compact neuron by correlative charges trapping and Schottky barrier modulation [J]. ACS Appl. Mater. Interfaces, 2022, 14(51): 57440-57448.
- [ 12 ] VOGLIS G, TAVERNARAKIS N. The role of synaptic ion channels in synaptic plasticity [J]. EMBO Rep., 2006, 7
  (11): 1104-1110.
- [13] ZHANG Z R, YANG D L, LI H H, et al. 2D materials and van der Waals heterojunctions for neuromorphic computing
   [J]. Neuromorph. Comput. Eng., 2022, 2(3): 032004.
- [14] ZAMARREÑO-RAMOS C, CAMUÑAS-MESA L A, PÉREZ-CARRASCO J A, et al. On spike-timing-dependent-plasticity,

memristive devices, and building a self-learning visual cortex [J]. Front. Neurosci., 2011, 5: 26-1-22.

- [15] 韩晓艳,赵东.基于粒子群的支持向量机图像识别[J]. 液晶与显示, 2017, 32(1): 69-75.
  - HAN X Y, ZHAO D. Support vector machine image recognition based on particle swarm [J]. Chin. J. Liq. Cryst. Disp., 2017, 32(1): 69-75. (in Chinese)
- [16] 贠卫国,史其琦,王民.基于深度卷积神经网络的多特征融合的手势识别[J]. 液晶与显示, 2019, 34(4): 417-422.

YUN W G, SHI Q Q, WANG M. Multi-feature fusion gesture recognition based on deep convolutional neural network [J]. Chin. J. Liq. Cryst. Disp., 2019, 34(4): 417-422. (in Chinese)

[17] 陈彦彤, 陈伟楠, 张献中, 等. 基于深度卷积神经网络的蝇类面部识别 [J]. 光学 精密工程, 2020, 28(7): 1558-1567.

CHEN Y T, CHEN W N, ZHANG X Z, *et al.* Fly facial recognition based on deep convolutional neural networks [J]. *Opt. Precision Eng.*, 2020, 28(7): 1558-1567. (in Chinese)

- [18] 李迪,陈向坚,续志军,等.自组织递归区间二型模糊神经网络在动态时变系统辨识中的应用 [J]. 光学 精密工程, 2011, 19(6): 1406-1413.
   LI D, CHEN X J, XU Z J, et al. Type-Ⅱ fuzzy neural networks with self-organizing recurrent intervals for dynamic time-varying system identification [J]. Opt. Precision Eng., 2011, 19(6): 1406-1413. (in Chinese)
- [19]黄伟明,文尚胜,夏云云.基于BP神经网络的LED可靠性模型研究[J].发光学报,2015,36(8):962-968.
   HUANG W M, WENSS, XIA Y Y. Reliability model of LEDs based on artificial neural network [J]. Chin. J. Lumin., 2015, 36(8):962-968. (in Chinese)
- [20] SEO S, LEE J J, LEE H J, et al. Recent progress in artificial synapses based on two-dimensional van der Waals materials for brain-inspired computing [J]. ACS Appl. Electron. Mater., 2020, 2(2): 371-388.
- [21] KIM S, LEE Y, KIM H D, et al. Parallel weight update protocol for a carbon nanotube synaptic transistor array for accelerating neuromorphic computing [J]. Nanoscale, 2020, 12(3): 2040-2046.
- [22] YANG JJ, STRUKOV DB, STEWART DR. Memristive devices for computing [J]. Nat. Nanotechnol., 2013, 8(1): 13-24.
- [23] CHUA L. Memristor-The missing circuit element [J]. IEEE Trans. Circuit Theory, 1971, 18(5): 507-519.
- [24] STRUKOV D B, SNIDER G S, STEWART D R, et al. The missing memristor found [J]. Nature, 2008, 453(7191): 80-83.
- [25] LI H H, WANG S C, ZHANG X M, et al. Memristive crossbar arrays for storage and computing applications [J]. Adv. Intell. Syst., 2021, 3(9): 2100017-1-26.
- [26]温娟,黄鹤鸣,王哲,等.基于离子型忆阻器的神经形态系统:从材料、器件到芯片[J].科学通报,2022,67 (11):1054-1071.

WEN J, HUANG H M, WANG Z, *et al.* Neuromorphic systems based on ionic memristors: from materials, devices to chips [J]. *Chin. Sci. Bull.*, 2022, 67(11): 1054-1071. (in Chinese)

- [ 27 ] CAO G, GAO C, WANG J J, et al. Memristor based on two-dimensional titania nanosheets for multi-level storage and information processing [J]. Nano Res., 2022, 15(9): 8419-8427.
- [28] 马晨, 王华, 郝玉英, 等. 一种新型结构的黄光有机电致发光器件 [J]. 光谱学与光谱分析, 2008, 28(7): 1479-1482.
   MA C, WANG H, HAO Y Y, et al. A novel yellow organic light-emitting device [J]. Spectrosc. Spectral Anal., 2008, 28(7): 1479-1482.
- [29] WANG H, WU Y L, XU Y, *et al.* Vacuum annealing of white-light organic light-emitting devices with polyfluorene copolymer as light-emitting layer [J]. *Asian J. Chem.*, 2014, 26(4): 960-962.
- [ 30 ] TAO P, MIAO Y Q, WANG H, et al. High-performance organic electroluminescence: design from organic light-emitting materials to devices [J]. Chem. Rec., 2019, 19(8): 1531-1561.
- [31] LEI P X, DUAN H, QIN L, et al. High-performance memristor based on 2D layered BiOI nanosheet for low-power artificial optoelectronic synapses [J]. Adv. Funct. Mater., 2022, 32(25): 2201276.
- [ 32 ] LI S F, PAM M E, LI Y S, et al. Wafer-scale 2D hafnium diselenide based memristor crossbar array for energy-efficient neural network hardware [J]. Adv. Mater., 2022, 34(25): 2103376.
- [ 33 ] YAN X B, ZHANG L, CHEN H W, et al. Graphene oxide quantum dots based memristors with progressive conduction tuning for artificial synaptic learning [J]. Adv. Funct. Mater., 2018, 28(40): 1803728-1-10.

- [ 34 ] CHEN T, YANG S W, WANG J, et al. Flexible artificial memristive synapse constructed from solution-processed MgOgraphene oxide quantum dot hybrid films [J]. Adv. Electron. Mater., 2021, 7(3): 2000882-1-9.
- [ 35 ] WANG M, CAISH, PANC, et al. Robust memristors based on layered two-dimensional materials [J]. Nat. Electron., 2018, 1(2): 130-136.
- [ 36 ] ZHANG X L, CHEN H H, CHENG S Q, et al. Tunable resistive switching in 2D MXene Ti<sub>3</sub>C<sub>2</sub> nanosheets for non-volatile memory and neuromorphic computing [J]. ACS Appl. Mater. Interfaces, 2022, 14(39): 44614-44621.
- [ 37 ] WANG C H, HE W, TONG Y, et al. Memristive devices with highly repeatable analog states boosted by graphene quantum dots [J]. Small, 2017, 13(20): 1603435-1-8.
- [ 38 ] KRISHNAPRASAD A, DEV D, HAN S S, et al. MoS<sub>2</sub> synapses with ultra-low variability and their implementation in boolean logic [J]. ACS Nano, 2022, 16(2): 2866-2876.
- [ 39 ] DEV D, KRISHNAPRASAD A, SHAWKAT M S, et al. 2D MoS<sub>2</sub>-based threshold switching memristor for artificial neuron [J]. IEEE Electron Device Lett., 2020, 41(6): 936-939.
- [40] YU T, ZHAO Z, JIANG H, et al. A low-power memristor based on 2H-MoTe<sub>2</sub> nanosheets with synaptic plasticity and arithmetic functions [J]. Mater. Today Nano, 2022, 19: 100233-1-7.
- [41] LI Y S, CHEN S, YU Z G, et al. In-memory computing using memristor arrays with ultrathin 2D PdSeO<sub>x</sub>/PdSe<sub>2</sub> heterostructure [J]. Adv. Mater., 2022, 34(26): 2201488-1-11.
- [42] MAO J Y, WU S, DING G L, et al. A van der Waals integrated damage-free memristor based on layered 2D hexagonal boron nitride [J]. Small, 2022, 18(12): 2106253-1-13.
- [43] SHAN X, WU Z, XIE Y, et al. Centimetre-scale single crystal alpha-MoO<sub>3</sub>: oxygen assisted self-standing growth and low-energy consumption synaptic devices [J]. Nanoscale, 2023, 15(3): 1200-1209.
- [44] WANG H, YU T Q, ZHAO J H, et al. Low-power memristors based on layered 2D SnSe/graphene materials [J]. Sci. China Mater., 2021, 64(8): 1989-1996.
- [45] LIU F C, YOU L, SEYLER K L, et al. Room-temperature ferroelectricity in CuInP<sub>2</sub>S<sub>6</sub> ultrathin flakes [J]. Nat. Commun., 2016, 7: 12357-1-6.
- [46] LI B C, LI S F, WANG H, et al. An electronic synapse based on 2D ferroelectric CuInP<sub>2</sub>S<sub>6</sub> [J]. Adv. Electron. Mater., 2020, 6(12): 2000760-1-7.
- [47] ZHAO Y, PEI Y F, ZHANG Z C, et al. Memristor based on α-In<sub>2</sub>Se<sub>3</sub> for emulating biological synaptic plasticity and learning behavior [J]. Sci. China Mater., 2022, 65(6): 1631-1638.
- [48] 杨倩, 杜世远, 罗榕思. 高性能超薄 In-Ga-Zn-O 突触晶体管制备 [J]. 发光学报, 2021, 42(2): 250-256. YANG Q, DU S Y, LUO R S. Preparation of high performance metal oxide synaptic transistor with ultra-thin channel layer [J]. Chin. J. Lumin., 2021, 42(2): 250-256. (in Chinese)
- [49] WANG L, WANG X J, ZHANG Y S, et al. Exploring ferroelectric switching in α-In<sub>2</sub>Se<sub>3</sub> for neuromorphic computing [J]. Adv. Funct. Mater., 2020, 30(45): 2004609-1-9.
- [ 50 ] CHEN Y T, LI D W, REN H H, et al. Highly linear and symmetric synaptic memtransistors based on polarization switching in two-dimensional ferroelectric semiconductors [J]. Small, 2022, 18(45): 2203611.
- [51] NI G X, WANG L, GOLDFLAM M D, et al. Ultrafast optical switching of infrared plasmon polaritons in high-mobility graphene [J]. Nat. Photon., 2016, 10(4): 244-247.
- [52] 霍婷婷,张冬冬,她祥蕾,等.基于碳纳米薄膜/砷化镓范德华异质结的高性能自驱动光电探测器研究[J].中国光学,2022,15(02):373-386.
   HUOTT, ZHANGDD, SHIXL, et al. High-performance self-powered photodetectors based on the carbon nanomaterial/GaAs vdW heterojunctions [J]. Chin. Opt, 2022,15(02):373-386. (in Chinese)
- [ 53 ] FENG Y Q, CHEN X Y, WU Q X, et al. A method for rapid self-calibration of wearable soft strain sensors [J]. IEEE Sensors J., 2021, 21(18): 20943-20950.
- [54] WANG X, WEI M M, LI X Q, et al. Large-area flexible printed thin-film transistors with semiconducting single-walled carbon nanotubes for NO<sub>2</sub> sensors [J]. ACS Appl. Mater. Interfaces, 2020, 12(46): 51797-51807.
- [ 55 ] DENG J, LI X Q, LI M, et al. Fabrication and electrical properties of printed three-dimensional integrated carbon nanotube PMOS inverters on flexible substrates [J]. Nanoscale, 2022, 14(12): 4679-4689.
- [56] MAK K F, LEE C, HONE J, et al. Atomically thin MoS<sub>2</sub>: a new direct-gap semiconductor [J]. Phys. Rev. Lett., 2010,

1110

105(13): 136805-1-4.

- [57] LI L H, SANTOS E J G, XING T, et al. Dielectric screening in atomically thin boron nitride nanosheets [J]. Nano Lett., 2015, 15(1): 218-223.
- [ 58 ] XU L P, XIONG H, FU Z C, et al. High conductance margin for efficient neuromorphic computing enabled by stacking nonvolatile van der Waals transistors [J]. Phys. Rev. Appl., 2021, 16(4): 044049.
- [ 59 ] CAO Y Y, MENG J L, LI Q X, et al. An efficient training methodology of hardware neural network based on wafer-scale MoS<sub>2</sub> synaptic array [J]. Adv. Electron. Mater., 2022, 8(12): 2200909-1-8.
- [ 60 ] JIN T Y, ZHENG Y, GAO J, et al. Controlling native oxidation of HfS<sub>2</sub> for 2D materials based flash memory and artificial synapse [J]. ACS Appl. Mater. Interfaces, 2021, 13(8): 10639-10649.
- [61] LIXK, YANGYC, CHENG, et al. Design and simulation of a novel multi-floating-gate synaptic nanowire transistor for neuromorphic computing [C]. Proceedings of the 14th IEEE International Conference on Solid-state and Integrated Circuit Technology, Qingdao, China, 2018: 867-869.
- [ 62 ] SON D, KOO J H, SONG J K, et al. Stretchable carbon nanotube charge-trap floating-gate memory and logic devices for wearable electronics [J]. ACS Nano, 2015, 9(5): 5585-5593.
- [ 63 ] KIM S, CHOI B, LIM M, et al. Pattern recognition using carbon nanotube synaptic transistors with an adjustable weight update protocol [J]. ACS Nano, 2017, 11(3): 2814-2822.
- [ 64 ] WANG Y, LV Z Y, CHEN J R, et al. Photonic synapses based on inorganic perovskite quantum dots for neuromorphic computing [J]. Adv. Mater., 2018, 30(38): 1802883-1-9.
- [ 65 ] TANG J, HE C L, TANG J S, et al. A reliable all-2D materials artificial synapse for high energy-efficient neuromorphic computing [J]. Adv. Funct. Mater., 2021, 31(27): 2011083-1-9.
- [ 66 ] LIU L, LIU C S, JIANG L L, et al. Ultrafast non-volatile flash memory based on van der Waals heterostructures [J]. Nat. Nanotechnol., 2021, 16(8): 874-881.
- [ 67 ] LIU L W, SUN Y B, HUANG X H, et al. Ultrafast flash memory with large self-rectifying ratio based on atomically thin MoS<sub>2</sub>-channel transistor [J]. Mater. Futures, 2022, 1(2): 025301-1-10.
- [ 68 ] LIU C S, YAN X, SONG X F, et al. A semi-floating gate memory based on van der Waals heterostructures for quasi-nonvolatile applications [J]. Nat. Nanotechnol., 2018, 13(5): 404-410.
- [ 69 ] LI J Y, LIU L, CHEN X Z, et al. Symmetric ultrafast writing and erasing speeds in quasi-nonvolatile memory via van der Waals heterostructures [J]. Adv. Mater., 2019, 31(11): 1808035-1-8.
- [70] LYU B Z, CHOI Y, JING H Y, et al. 2D MXene-TiO<sub>2</sub> core-shell nanosheets as a data-storage medium in memory devices
   [J]. Adv. Mater., 2020, 32(17): 1907633-1-8.
- [71] WANG Y N, ZHENG Y, GAO J, et al. Band-tailored van der Waals heterostructure for multilevel memory and artificial synapse [J]. InfoMat, 2021, 3(8): 917-928.
- [72] BU X B, XU H, SHANG D S, et al. Ion-gated transistor: an enabler for sensing and computing integration [J]. Adv. Intell. Syst., 2020, 2(12): 2000156-1-19.
- [73] KIM K, CHEN C L, TRUONG Q, et al. A carbon nanotube synapse with dynamic logic and learning [J]. Adv. Mater., 2013, 25(12): 1693-1698.
- [74] XU W T, MIN S Y, HWANG H, et al. Organic core-sheath nanowire artificial synapses with femtojoule energy consumption [J]. Sci. Adv., 2016, 2(6): e1501326-1-7.
- [75] CHANG Y, CONG H F, ZHOU R F, et al. Enhanced artificial synaptic properties enabled by arrays of electrolyte-gated electrospun InZnO nanowires [J]. ACS Appl. Electron. Mater., 2022, 4(5): 2570-2579.
- [76] ZHU J D, YANG Y C, JIA R D, et al. Ion gated synaptic transistors based on 2D van der Waals crystals with tunable diffusive dynamics [J]. Adv. Mater., 2018, 30(21): 1800195-1-11.
- [77] ZHU X J, LI D, LIANG X G, et al. Ionic modulation and ionic coupling effects in MoS<sub>2</sub> devices for neuromorphic computing [J]. Nat. Mater., 2019, 18(2): 141-148.
- [78] WANG Y R, YANG Y F, HE Z Y, et al. Laterally coupled 2D MoS<sub>2</sub> synaptic transistor with ion gating [J]. IEEE Electron Device Lett., 2020, 41(9): 1424-1427.
- [79] ZHANG L F, LIANG A G, WANG F, et al. High conductivity update linearity MoS<sub>2</sub> memtransistors array based on lithium-ion modulation [J]. Adv. Mater. Interfaces, 2022, 9(32): 2201775.

- [80] MENG J L, WANG T Y, ZHU H, et al. Integrated in-sensor computing optoelectronic device for environment-adaptable artificial retina perception application [J]. Nano Lett., 2022, 22(1): 81-89.
- [81] 王洋昊,刘昌,黄如,等. 神经形态器件研究进展与未来趋势[J]. 科学通报, 2020, 65(10): 904-915.
   WANG Y H, LIU C, HUANG R, et al. Progress and outlook in neuromorphic devices [J]. Chin. Sci. Bull., 2020, 65 (10): 904-915. (in Chinese)
- [82] LI H X, HU J Y, CHEN A Z, et al. Single-transistor neuron with excitatory-inhibitory spatiotemporal dynamics applied for neuronal oscillations [J]. Adv. Mater., 2022, 34(51): 2207371-1-9.
- [83] WAN C J, ZHU L Q, LIU Y H, et al. Proton-conducting graphene oxide-coupled neuron transistors for brain-inspired cognitive systems [J]. Adv. Mater., 2016, 28(18): 3557-3563.
- [84]夏风梁,石凯熙,赵东旭,等.二维WSe<sub>2</sub>场效应晶体管光电性能[J].发光学报,2021,42(2):257-263.
   XIA F L, SHI K X, ZHAO D X, et al. Optoelectronic performance of 2D WSe<sub>2</sub> field effect transistor [J]. Chin. J. Lumin., 2021, 42(2):257-263. (in Chinese)
- [ 85 ] SEO S, JO S H, KIM S, et al. Artificial optic-neural synapse for colored and color-mixed pattern recognition [J]. Nat. Commun., 2018, 9(1): 5106-1-8.
- [86] SUN L F, WANG Z R, JIANG J B, et al. In-sensor reservoir computing for language learning via two-dimensional memristors [J]. Sci. Adv., 2021, 7(20): eabg1455-1-8.
- [ 87 ] SUN L F, ZHANG Y S, HWANG G, et al. Synaptic computation enabled by joule heating of single-layered semiconductors for sound localization [J]. Nano Lett., 2018, 18(5): 3229-3234.
- [ 88 ] NI Y, HAN H, LIU J Q, et al. A fibrous neuromorphic device for multi-level nerve pathways implementing knee jerk reflex and cognitive activities [J]. Nano Energy, 2022, 104: 107898-1-10.
- [89] ZHU Q B, LI B, YANG D D, et al. A flexible ultrasensitive optoelectronic sensor array for neuromorphic vision systems [J]. Nat. Commun., 2021, 12(1): 1798-1-7.
- [90] CHEN S C, MAHMOODI M R, SHI Y Y, et al. Wafer-scale integration of two-dimensional materials in high-density memristive crossbar arrays for artificial neural networks [J]. Nat. Electron., 2020, 3(10): 638-645.
- [91] 胡涛,孙雪茹,金伟民.基于神经网络的混沌虹膜相位掩模计算全息加密图像恢复[J]. 光学 精密工程,2023,31 (3):417-428.

HU T, SUN X R, JIN W M. Neural network-based computational holographic encryption image reconstruction scheme for chaotic iris phase mask [J] *Opt. Precision Eng.*, 2023, 31(3): 417-428. (in Chinese)

- [92] DODDA A, TRAINOR N, REDWING J M, et al. All-in-one, bio-inspired, and low-power crypto engines for near-sensor security based on two-dimensional memtransistors [J]. Nat. Commun., 2022, 13(1): 3587-1-12.
- [93] MA S L, WU T X, CHEN X Y, et al. An artificial neural network chip based on two-dimensional semiconductor [J]. Sci. Bull., 2022, 67(3): 270-277.
- [94] KUMAR P, ZHU K C, GAO X, et al. Hybrid architecture based on two-dimensional memristor crossbar array and CMOS integrated circuit for edge computing [J]. npj 2D Mater. Appl., 2022, 6(1): 8-1-10.



刘依婷(1997-),女,吉林省吉林市人, 硕士研究生,2019年于中国计量大学 获得学士学位,主要从事碳基神经形 态器件的研究。 E-mail: ytliu0520@163.com



**赵建文**(1976-),男,湖南衡阳人,博 士,研究员,博士生导师,2008年于中 国科学院理化技术研究所获得博士学 位,主要从事碳基纳米功能薄膜可控 制备和应用的研究。

E-mail: jwzhao2011@sinano.ac.cn

