

蛋壳膜电解质栅控氧化物神经形态晶体管*

李岩 陈鑫力 王伟胜 石智文 竺立强†

(宁波大学物理科学与技术学院, 宁波 315211)

(2023 年 3 月 17 日收到; 2023 年 5 月 24 日收到修改稿)

近年来, 神经形态器件的研究受到了人们的广泛关注, 正在成为人工智能技术发展的重要分支. 与此同时, 天然生物材料具有可降解性、良好的生物相容性、无毒性等多种优势, 在新型便携式智能系统中有重要应用价值. 本文采用蛋壳膜 (ESM) 作为电解质, 具有极高的室温质子电导率 ($\sim 6.4 \times 10^{-3} \text{ S/cm}$) 和极高的室温双电层电容 ($\sim 2.8 \text{ } \mu\text{F/cm}^2$), 因此其具有极强的界面双电层静电调控能力. 以此为基础, 研制了氧化铟锡双电层晶体管, 器件具有优异的电学特性. 基于 ESM 独特的界面双电层调控特性, 在器件上实现了一些重要仿生突触塑性行为, 如兴奋性突触后电流、双脉冲易化和突触滤波. 通过施加突触刺激, 实现了器件的多重突触权重更新. 在此基础上采用人工神经网络实现了手写数字的模式识别, 最佳识别精度约高达 92.59%. 因此, 提出的 ESM 栅控氧化物神经形态晶体管在低成本生物可降解神经形态系统中有一定的应用潜力.

关键词: 蛋壳膜电解质, 氧化物神经形态晶体管, 突触塑性, 模式识别**PACS:** 73.40.Qv, 85.30.Tv, 87.18.Sn**DOI:** 10.7498/aps.72.20230411

1 引言

近年来, 大数据和物联网的飞速发展使智能系统融入了人们生活的方方面面. 伴随着智能系统在各个行业的广泛深入而来的, 是对更高能效计算系统需求的急遽攀升. 而目前对实时非结构化大数据的处理尚高度依赖于传统冯·诺依曼计算机, 其信息处理模块和信息存储模块存在结构上的分离, 因此并行运算能力有限, 且串行运算的能耗超高, 成为制约智能信息技术发展的一个重要因素. 反观人脑, 其拥有数千亿个神经元并通过突触结构相互连接^[1], 组成高度复杂的神经网络结构, 突触则是其最基本的信息处理单元. 基于这一结构, 人脑可以进行高效并行信息处理, 并在外界环境变换的情况下实现大脑地图的重塑, 而脑信息处理可以在超低能耗下进行. 在此背景下, 人们提出可以通过模仿

人脑的工作模式设计神经形态计算这一高效信息处理模式^[2-4]. 而作为神经形态计算的重要硬件基础, 人们也提出了神经形态器件, 用于模仿生物神经系统中的突触结构, 并在器件上实现了对生物突触功能的模仿, 这类器件主要包括两端忆阻器^[5-7]和三端晶体管^[8-10]. 其中, 两端忆阻器具有运行功耗低、物理尺寸小和易于 3 维 (3D) 集成等优点. 相比于基于两端忆阻器的神经形态器件, 三端晶体管由于其栅极可以单独控制沟道电导, 进而实现信息处理和信息存储的同步进行. 这更好地模拟了人脑并行处理的工作模式, 而且可以根据需要设定多个栅电极, 从而在形态上与神经元树突结构更加类似, 从而为丰富神经形态功能和神经元功能奠定器件基础^[8,11-13]. 迄今为止, 科研工作者设计了多种类型的神经形态晶体管, 包括双电层晶体管^[14-17]、铁电晶体管^[18]和浮栅晶体管^[19]等. 最近, 人们也将忆阻器功能融合入晶体管, 设计了新型忆阻晶体

* 国家自然科学基金 (批准号: 51972316, U22A2075) 和宁波市重大科技攻关项目 (批准号: 2021Z116) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: zhuliqiang@nbu.edu.cn

管, 实现了对同源突触可塑性和异源突触可塑性的模仿, 还可以在器件上实现突触兴奋性和抑制性的多功能重构, 这些结果进一步丰富了神经形态器件的仿生突触功能^[20–22].

另外, 柔性电子技术是信息技术领域的一个重要分支, 而柔性、可拉伸电子产品被认为是可穿戴交互系统和类人机器人技术的重要基础, 因此柔性神经形态器件也受到了人们的广泛关注. 与此同时, 传统硅基电子产品被废弃后产生了大量电子垃圾, 造成环境污染. 而生物材料和可降解材料的应用有助于缓解废弃电子废物对环境的影响. 因此, 采用具有生物降解特性的材料通过低成本工艺研制低能耗的电子器件将为智能可穿戴系统的设计提供思路. 比如, 文献^[23]开发了一种基于苹果果胶的超灵敏、可降解超柔性有机突触晶体管, 其单个突触行为的工作电压低至 20 mV, 与生物突触的电位水平相似, 并表现出超高信噪比 (4.7) 和灵敏度 (6.7 dB), 得益于有机材料的低杨氏模量, 该柔性有机突触晶体管可以贴合在不同形状的曲面上并保持稳定的突触塑性行为. 同时, 器件可以在水中自然降解, 进而有效减少环境污染的风险. 文献报道的其他生物电解质材料还有鱼蛋白^[24]、淀粉^[25]、壳聚糖^[12,26,27]、果胶^[28]和蜂蜡^[29]等. 鸡蛋具有可降解性、良好的生物相容性、无毒性等多种特性, 是一种绿色环保用途广泛的天然生物材料. 鸡蛋的各个组成部分, 如蛋壳、蛋壳膜 (egg shell membrane, ESM) 和蛋清等, 被广泛应用于食品、医药和化妆等领域. 文献^[30]也提出了一种蛋白质栅控柔性氧化铟锡 (ITO) 离子/电子耦合神经形态晶体管, 器件采用鸡蛋清作为栅介质, 成功模仿了 3 类尖峰时间依赖可塑性学习规则, 并模仿了神经递质传递的动态行为等. 值得指出的是, ESM 位于蛋壳和蛋清之间, 是一种由高度交联的胶原蛋白、糖蛋白和富含半胱氨酸的蛋壳膜蛋白 (CREMPs) 组成的纤维支架, 具有多孔形态、热稳定性和机械强度等. 因此这些蛋白质基纤维膜具有多种潜在应用价值, 已被研究用于纳米催化剂、微生物燃料电池、有毒染料的吸附、电池和电容器等. 然而, 以 ESM 电解质作为栅介质的神经形态晶体管尚未见文献报道. 本文采用 ESM 作为电解质, 研制了 ITO 双电层神经形态晶体管, ESM 的双电层电容高达 $2.8 \mu\text{F}/\text{cm}^2$ 、室温质子电导率约高达 $6.4 \times 10^{-3} \text{ S}/\text{cm}$, 器件具有优异的界面质子栅控行为. 同时, 在器件

上实现了一些仿生突触塑性行为, 如兴奋性突触后电流、双脉冲易化 (PPF)、短时程突触塑性和突触滤波, 还模仿突触权重的更新. 在此基础上搭建了人工神经网络, 实现了手写数字的 MNIST (modified national institute of standards and technology) 模式识别, 最佳分辨率高达 92.59%. 因此, 本文提出的 ESM 栅控氧化物神经形态晶体管有望在低成本生物可降解神经形态系统方面得到应用.

2 实验

鸡蛋 ESM 是一种天然生物活性材料, 由胶原蛋白、其他蛋白质和蛋白聚糖组成, 组成高度交联的蛋白纤维网状结构, 并分内外两层结构. 如图 1(b) 所示为鸡蛋壳内 ESM 内外双层分层情况照片, 选用了表面相对致密、黏附性更好的 ESM 内膜作为氧化物电解质栅控晶体管 (EGT) 的电解质层. 如图 1(a) 所示为器件工艺流程示意图. 首先, 制备了质量分数约为 2% 的壳聚糖溶液, 其中含有约 2% 的醋酸添加剂, 溶液用保鲜膜密封, 并静置 24 h 备用. 然后, 将壳聚糖溶液通过旋涂工艺在 ITO 导电玻璃衬底上成膜, 旋涂转速为 1000 r/min, 旋涂时间为 30 s. 接着, 将备好的 ESM 膜内膜以内表面朝上贴在旋涂好的壳聚糖溶液上, 其中, 壳聚糖膜由于黏性使得 ESM 电解质膜与 ITO 导电衬底更好贴合. 最后, 将样品放在恒温烘箱中 45 °C 温度下烘烤 1 h. 烘干处理结束后在室温下静置 20 h, 得到干燥的固态 ESM 电解质膜. 然后采用金属单步掩膜工艺在 ESM 电解质膜上溅射 ITO 源、漏电极, 溅射工艺在纯氩气环境中进行, 并采用 ITO 陶瓷靶材 ($\text{In}_2\text{O}_3:\text{SnO}_2$ 质量分数比为 90%:10%). 溅射时, 氩气流量、工作气压、射频功率和溅射时间分别设置为 14 sccm (1 sccm = 1 mL/min), 0.5 Pa, 100 W 和 30 min. 如图 1(a) 所示, ITO 粒子将在掩模板边缘发生反射, 进而可以在源极和漏极之间形成较薄的 ITO 沟道, 由此获得底栅型 ITO 晶体管. 将栅极看成突触前端, 将沟道看成突触后端, 通过在栅极上施加脉冲电信号, 可以在漏极上检测沟道瞬态电流响应, 进而实现对生物突触塑性行为的模仿. 在室温条件下, 空气相对湿度 (RH) 约为 50% 时, 测试器件的电学性能. 首先采用 Solartron 1260A 阻抗分析仪测定了 ESM 电解质的单位面积电容, 用于评估电解质的静电调控特性, 在测试过

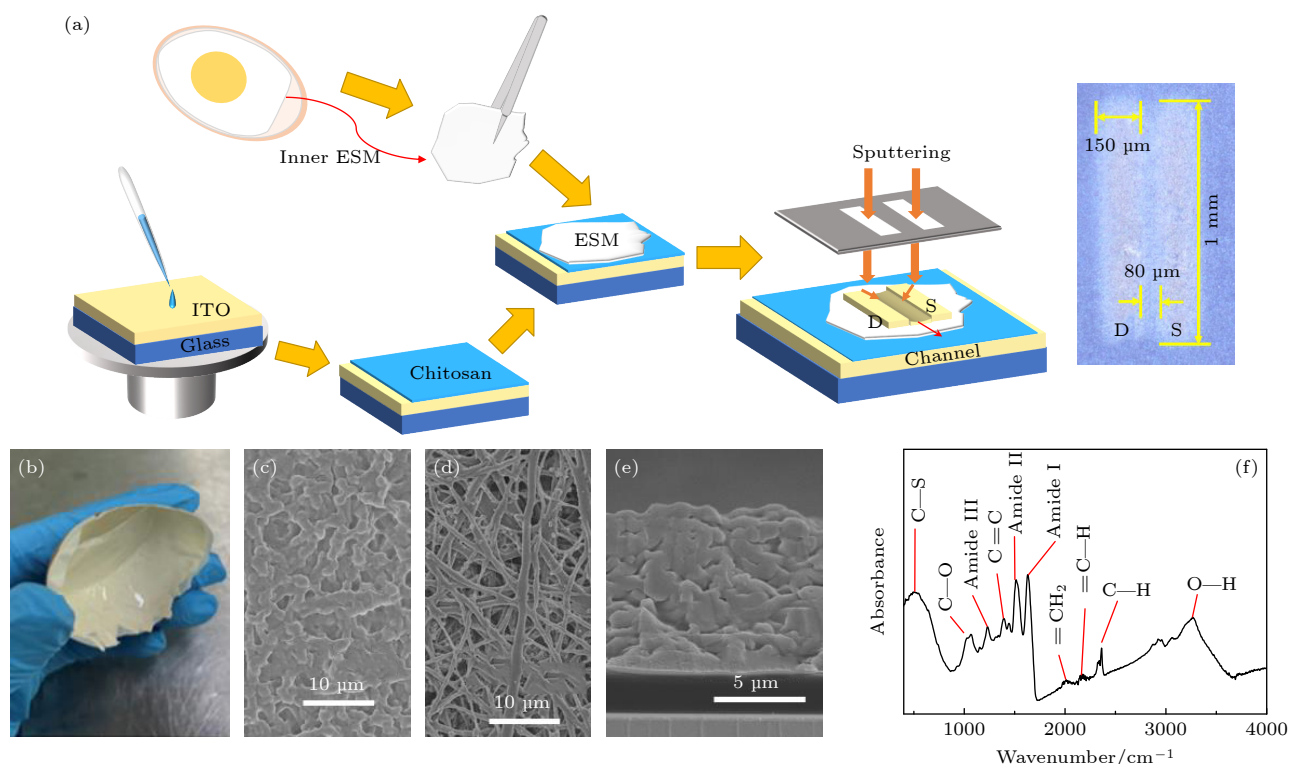


图 1 (a) ESM 电解质膜栅控 ITO 神经形态晶体管的制备流程示意图, 插图是器件的照片; (b) 鸡蛋壳内 ESM 内外双层分层情况照片; (c) ESM 内膜内表面的 SEM 显微形貌照片; (d) ESM 内膜外表面的 SEM 显微形貌照片; (e) ESM 膜的截面 SEM 照片; (f) ESM 膜的傅里叶变换红外光谱 (FTIR)

Fig. 1. (a) Device processing of ESM electrolyte gated ITO neuromorphic transistor; Inset: photograph of device; (b) photograph of ESM double layer in egg shell; (c) SEM morphology image of ESM inner membrane inner surface; (d) SEM morphology image of ESM inner membrane outer surface; (e) SEM cross sectional image of ESM inner membrane; (f) Fourier transform infrared spectroscopy of ESM.

程中, 施加的直流偏压和交流偏压均为 0.1 V. 然后采用 Keithley 4200SCS 半导体参数分析仪测试神经形态晶体管的电学性能和突触塑性行为.

3 结果与讨论

图 1(c) 和图 1(d) 所示分别为 ESM 内膜内、外两个表面的扫描电子显微镜 (SEM) 表面显微形貌照片. 从图 1(c) 可以看出, ESM 内膜的内表面比较平整, 因此可以在其表面上沉积氧化物沟道和源、漏电极. 从图 1(d) 可以看出, ESM 膜具有蛋白纤维网状结构. 为了改善 ESM 电解质层与衬底间的附着度, 选用壳聚糖溶液作为 ESM 膜与导电玻璃衬底间的过渡连接结构. 同时, 由 SEM 形貌图还可以看出, 内膜中存在大量纳米级孔隙结构, 这些孔隙有利于吸附空气中的水分子, 从而使得 ESM 膜具备室温质子导电特性. 图 1(e) 是 ESM 膜的截面 SEM 照片, 可以看出 ESM 膜的厚度约为 8 μm . 此外, 对 ESM 电解质薄膜进行了傅里叶变换红外

光谱 (FTIR) 表征, 其结果如图 1(f) 所示. 特征峰 3264 cm^{-1} 与 O—H 的伸缩振动相对应. 在 2362, 2165 和 2011 cm^{-1} 处的峰对应于 C—H 和 $=\text{C}-\text{H}$ 中 $=\text{CH}_2$ 键的反对称伸缩振动 [31]. 峰值为 1631, 1513 和 1230 cm^{-1} 的特征峰分别与纤维糖蛋白包膜的酰胺 I、酰胺 II 和酰胺 III 的特征振动有关 [32–35]. 在 1394, 1066 和 509 cm^{-1} 处的特征峰分别对应于 C=C, C—O 和 C—S 键的伸缩振动 [33]. 其中, 羟基 (O—H) 的存在有助于 ESM 膜的室温质子导电行为, 是 ESM 电解质膜呈现强烈界面双电层调控效应的重要因素.

图 2(a) 所示为阻抗分析仪测试得到的 ESM 电解质膜的单位面积电容与测试频率的关系曲线, 其中的插图为 ITO/ESM/ITO 三明治电容结构示意图. 可以看出, 电容值随着测试频率的降低而逐渐增大, 在 1 Hz 时获得约 2.8 $\mu\text{F}/\text{cm}^2$ 的最大电容. ESM 膜在外电场的作用下诱导产生大量质子, 并可在外电场的作用下发生迁移. 而当外电场频率较高时, 质子迁移无法快速跟随高频外电场移动,

此时质子仅仅在其平衡位置附近移动, 因此无法在电极/ESM 界面聚集. 随着外电场频率的降低, 质子逐渐发生长程迁移, 并在低频段下, 可以在电极/ESM 界面聚集, 产生界面双电层效应. 因此, 在低频条件下可获得极大的双电层电容. 该结果说明 ESM 膜存在极强的静电耦合效应. 图 2(b) 所示为 ESM 膜的阻抗频谱数据, 当阻抗虚部 ($\text{Im}Z''$) 为 0 时, 阻抗实部 ($\text{Re}Z'$) 值 $R \approx 2536 \Omega$. 其质子电导率 s 计算式为

$$s = \frac{D}{(R - R_0) A},$$

其中, ESM 电解质膜的厚度 $D \approx 8 \mu\text{m}$, MIM 电容电极面积 $A \approx 1.5 \times 10^{-3} \text{ cm}^2$, 电极电阻 $R_0 \approx 30 \Omega$. 由此可得 ESM 电解质膜的质子电导率 $s \approx 6.4 \times 10^{-3} \text{ S/cm}$, 表明该 ESM 电解质膜具有很好的室温

质子导电特性. 图 2(b) 内插图所示为 ESM 膜的漏电特性, 在 $-2.5 \sim 1.5 \text{ V}$ 的偏压范围内漏电流大小始终不超过 3 nA , 表明 ESM 电解质膜具有很好的介电特性. 上述结果表明 ESM 膜是离子导电而电子绝缘的电解质膜, 具有极强的界面质子耦合效应, 是制备氧化物电解质栅控晶体管的优异生物介质材料. 基于独特的界面离子耦合行为, ESM 电解质膜还可以在神经仿生电子学器件中得到应用.

图 3(a) 所示为 ESM 栅控 ITO 神经形态晶体管的输出特性曲线, 源、漏电压 (V_{ds}) 从 0 V 扫描至 1.5 V , 栅极电压 (V_{gs}) 以 0.2 V 的步长从 -0.2 V 增加到 0.8 V . 可以看出, 在较低 V_{ds} 下, 沟道电流 (I_{ds}) 随着 V_{ds} 的增大而线性增加, 表明器件具有良好的欧姆接触. 而在较高的 V_{ds} 下, I_{ds} 逐渐饱和, 并且随着 V_{gs} 的增加而增加. 这一结果表明晶体管

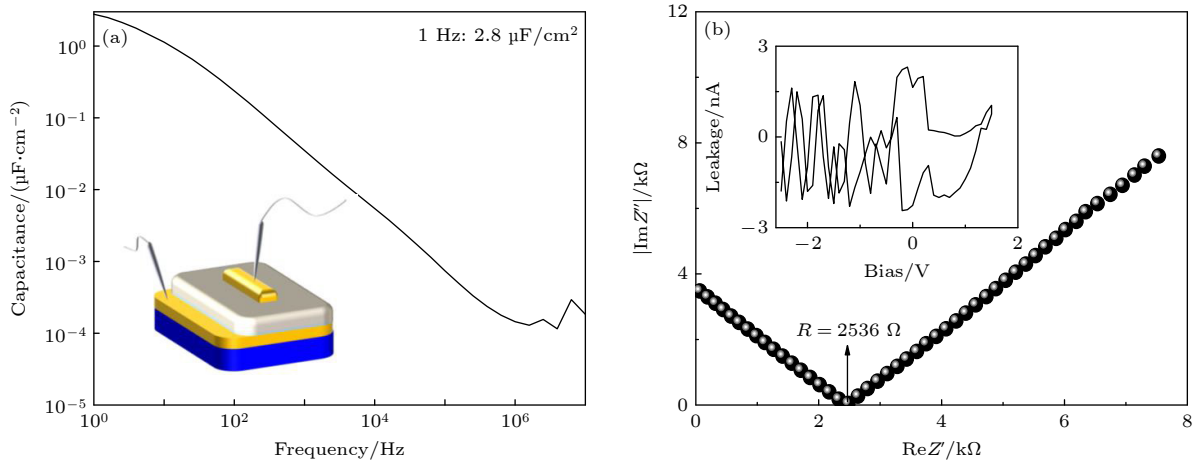


图 2 (a) ESM 膜电解质的单位面积电容与频率关系曲线, 插图为 ITO/ESM/ITO 三明治电容结构示意图; (b) ESM 膜电解质的阻抗频谱数据, 插图为 ESM 膜的漏电特性

Fig. 2. (a) Frequency-dependent capacitance of ESM based electrolyte; Inset: schematic diagram of ITO/ESM/ITO sandwiched testing structure; (b) impedance spectroscopy data of ESM; Inset: leakage current.

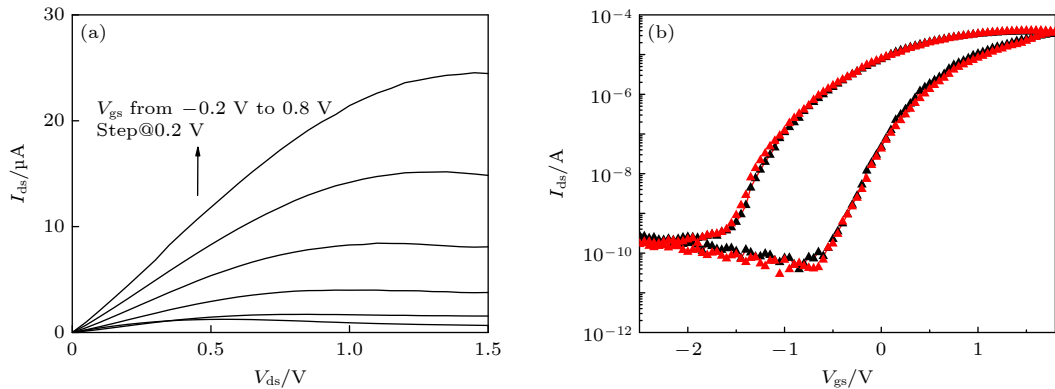


图 3 ESM 栅控 ITO 神经形态晶体管的 (a) 输出特性曲线和 (b) 转移特性曲线. 图 (b) 中黑线为第一次扫描, 红线为第二次扫描

Fig. 3. Electrical performances of ESM gated ITO neuromorphic transistor: (a) Output characteristic curves; (b) transfer characteristic curves (black symbol, the first scan; red symbol, the second scan).

具有典型的 n 型晶体管电学特性. 图 3(b) 所示为晶体管的饱和区转移特性曲线, 测试时固定 $V_{ds} = 1.5$ V, V_{gs} 扫描范围为 $-2.5 \sim 1.8$ V, 扫描步长为 0.05 V/s. 可以看出, 两次扫描的转移特性曲线具有很好的重复性, 说明器件具有很好的稳定性. 器件的开关比约为 2.5×10^6 、阈值电压 (V_{th}) 仅约为 0.1 V、亚阈值摆幅 (SS) 约为 213 mV/dec, 同时器件的场效应迁移率约为 3.2 cm²/(V·s). 同时可以看出, 曲线呈现了明显的逆时针洄滞效应, 大小约为 1.3 V, 这种洄滞效应主要是由于 ESM 电解质膜在外电场作用下诱导产生的质子迁移行为. 类似地, 在其他质子导体电解质中也观察到了类似的逆时针洄滞效应, 比如淀粉电解质栅控 ITO 突触晶体管 [25] 和纳米颗粒磷硅酸盐玻璃 (PSG) 栅控氧化物突触晶体管 [36] 的转移曲线洄滞窗口分别为 0.4 V 和 0.2 V. 由于器件质子诱导的洄滞效应, 器件呈现了丰富的突触塑性行为, 包括短时程和长时程突触塑性、突触易化和抑制行为等. 正是基于这一显著的质子调控洄滞效应, ESM 栅控 ITO 神经形态晶体管将呈现一些突触可塑性行为.

图 4(a) 左图所示为生物突触的结构示意图, 当突触前神经元的动作电位传递到神经末梢时, 突触前膜会释放神经递质, 这些神经递质将通过突触间隙扩散到突触后膜并与受体相结合, 进而触发突触后反应, 即突触后电流/电位变化. 由此, 信息就由突触前神经元传递至突触后神经元. 其中, 兴奋性神经递质诱发兴奋性突触后电流/电位, 而抑制性神经递质诱发抑制性突触后电流/电位. 图 4(a) 右图所示为 ITO 神经形态晶体管结构示意图, 栅极被看成突触前端用于接收刺激信号, 而沟道被看成突触后端, 可以在漏极上检测突触后电流响应, 进而评估突触权重的大小. 图 4(b) 所示为典型的兴奋性突触后电流 (EPSC) 响应, 读取电压 $V_{ds} = 0.5$ V, 前突触刺激为 (1 V, 10 ms). 检测到的 EPSC 峰值约为 56.7 nA, 这一瞬态电流是由于栅极脉冲作用下的界面质子双电层调控效应. 当刺激结束后, 由于浓度梯度, 质子会逐渐扩散到初始的平衡位置. 这一行为体现了器件的短期突触塑性行为. 另外, PPF 是短程突触可塑性的重要表现形式, 在两个连续的前突触刺激下, 第 2 个刺激诱发的突触

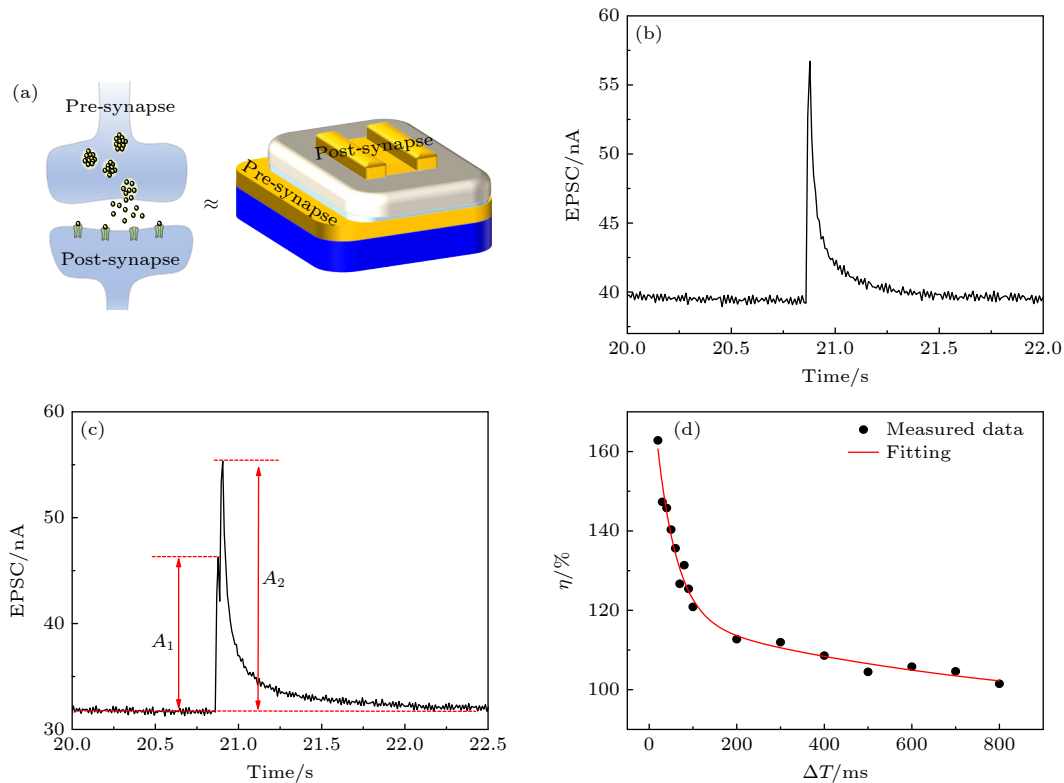


图 4 (a) 生物突触结构(左)及 ITO 神经形态晶体管(右)示意图; (b) 典型的 EPSC 响应, 读取电压 $V_{ds} = 0.5$ V, 前突触刺激为 (1 V, 10 ms); (c) 两个前突触刺激下的 EPSC 响应, 前突触刺激为 (1 V, 10 ms), 间隔时间 $\Delta t = 20$ ms; (d) η 随 Δt 的变化关系

Fig. 4. (a) Schematic diagram of a synapse (left) and ITO neuromorphic transistor (right); (b) typical EPSC response triggered with a presynaptic spike (1 V, 10 ms), $V_{ds} = 0.5$ V; (c) EPSC response triggered with paired presynaptic spikes (1 V, 10 ms), interval time $\Delta t = 20$ ms; (d) η as a function of Δt value.

响应强于第 1 个刺激诱发的突触响应. 基于 ESM 栅控 ITO 神经形态晶体管中的质子迁移现象, 同样可以模仿 PPF 行为. 图 4(c) 所示为两个前突触刺激下的 EPSC 响应, 前突触刺激的高度和宽度分别为 1 V 和 10 ms, 两个刺激的间隔时间 $\Delta t = 20$ ms, 读取电压 $V_{ds} = 0.5$ V 时, 测得第 1 个 EPSC 绝对值 $A_1 \approx 14.5$ nA, 第 2 个 EPSC 绝对值 $A_2 \approx 23.6$ nA, 因此双脉冲易化指数 (η : $A_2/A_1 \times 100\%$) 约为 162.8%. 图 4(d) 所示为 η 随 Δt 的关系, 可以看出, η 随着 Δt 值的增加逐渐减小. 当 $\Delta t = 20$ ms 时, η 约为 162.8%, 而当 $\Delta t = 800$ ms 时, η 下降到约 101.51%. η 曲线可以采用双相指数函数很好地进行拟合:

$$\eta = 1 + C_1 \exp(-\Delta t/\tau_1) + C_2 \exp(-\Delta t/\tau_2),$$

其中, C_1 和 C_2 为初始易化参数, τ_1 和 τ_2 为特征弛豫时间. 在这里, C_1 , C_2 , τ_1 和 τ_2 分别约为 92.6%, 66.6%, 809.7 ms 和 45.2 ms. 拟合所得的弛豫时间大小与生物神经突触中获得的相应数值类似 [37], 从而证实了 ESM 栅控晶体管在神经形态电子学器件应用中的潜力.

为了进一步探究 ESM 栅控 ITO 神经形态晶体管的仿生突触塑性, 本文还进一步研究了器件在不同前突触刺激强度下的 EPSC 响应. 如图 5(a)

所示, 施加的前突触刺激宽度均为 50 ms, 当前突触刺激强度从 0.2 V 增加到 1.5 V 时, EPSC 峰值电流从 0.15 μ A 增加到 2.19 μ A. 此处 EPSC 电流的递增在于较高前突触刺激强度下, ESM/ITO 沟道界面处积累的质子数的增加. 前文指出, 器件具有 PPF 行为, Δt 越小, 易化行为就越明显, 预示了器件的频率依赖响应特性. 图 5(b) 所示为 ESM 栅控神经形态晶体管对不同频率刺激序列的 EPSC 响应. 每个频率的刺激序列由 10 个刺激组成 (1 V, 10 ms). 当刺激序列的频率为 2.0 Hz 时, EPSC 的幅值保持基本稳定, 幅值约为 289 nA. 随着刺激序列频率的增加, EPSC 的幅值也逐渐增加. 当刺激序列频率为 50 Hz 时, 第 1 个 EPSC 绝对高度 (B_1) 为 285 nA, 而第 10 个 EPSC 绝对高度 (B_{10}) 为 541 nA. 因此, 该仿生神经形态器件也可以作为信息传递的高通动态滤波器, 图 5(c) 所示为高通滤波功能示意图, 当输入频率较低时, 经过滤波器后, 信息不能被通过; 而当输入频率较高时, 信息可以被进一步传播. 定义 B_{10}/B_1 作为 EPSC 幅值增益, 图 5(d) 所示为 EPSC 幅值增益与刺激频率的关系. 当频率为 2 Hz 时, 增益仅为 1.07, 而当频率为 50 Hz 时, 增益增加至 1.9. 上述结果表明 ESM 栅控 ITO 神经形态晶体管呈现了“高通”突触动态滤波功能.

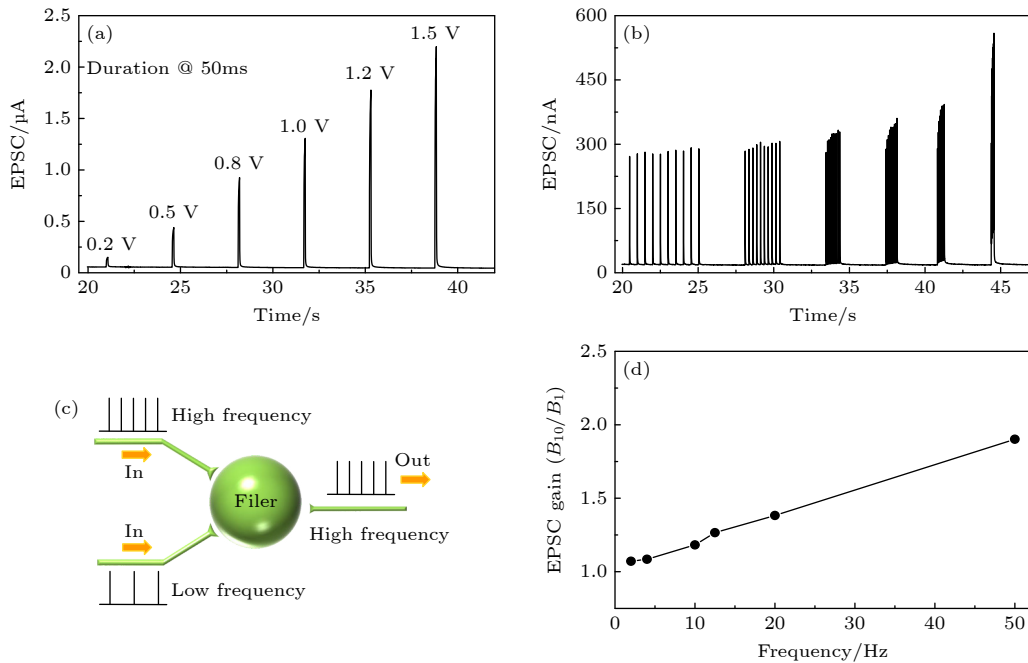


图 5 (a) 不同刺激强度下的 EPSC 响应; (b) 不同频率刺激序列下的 EPSC 响应; (c) 高通滤波功能示意图; (d) EPSC 幅值增益与刺激频率的关系.

Fig. 5. (a) EPSC responses under different presynaptic spike amplitude; (b) EPSC responses under spike trains with different frequency; (c) schematic diagram of high-pass filtering; (d) EPSC gain as a function of spike frequency.

突触塑性的根本是突触权重的不断变化, 因此, 利用神经形态器件去模拟突触各项功能的重要条件之一是突触权重的可调制特性, 即具有可变化的电导. 对神经形态晶体管而言, 通常在栅极处施加正脉冲或负脉冲以调控器件的电导. 图 6(a) 给出了施加在 ITO 神经形态晶体管上的刺激信号示意图. 图 6(b) 和图 6(c) 是在两组不同刺激条件下, 器件突触权重更新情况, 包含了 64 个权重增强行为 (P) 和 64 个权重减小行为 (D). 在图 6(b) 刺激条件下, 突触权重 P 过程的 $G_{\max-P}/G_{\min-P}$ 比值和突触权重 D 过程的 $G_{\max-D}/G_{\min-D}$ 比值分别约为 21.19 和 7.08. 在图 6(c) 刺激条件下, 突触权重 P 过程的 $G_{\max-P}/G_{\min-P}$ 比值和突触权重 D 过程的 $G_{\max-D}/G_{\min-D}$ 比值分别约为 18.6 和 70.9. 从上述结果可以看出, 图 6(b) 具有较好的突触权重更新行为. 采用图 6(b) 条件, 也进行了两次权重更新测试, 发现第 2 次测试得到的结果与第 1 次测试得到的结果具有很好的重复性, 说明器件具有很好的稳定性. 基于图 6(b) 的突触权重值, 采用多层感知机

(multilayer perceptron, MLP) 模拟器 [38] 评估了对 MNIST (Modified National Institute of Standards and Technology) 手写数字识别的精度. 如图 6(d) 显示了 1 个两层 MLP 模拟器的示意图, 由 400 个输入神经元、100 个隐藏神经元和 10 个输出神经元组成. 400 个输入神经元对应于 20×20 个像素的输入数字图像数据, 10 个输出神经元则对应了 0—9 这 10 个数字. 在 MNIST 手写数字数据库中包含 60000 个训练样本和 10000 个测试样本. MLP 模拟器在 MNIST 手写数字数据库的训练集中选取 8000 个样本进行训练. 训练结束后, 在测试集中进行数字识别测试. 图 6(e) 显示了 20×20 像素输入数字图像的 MNIST 识别精度. 随着训练次数的增加, 识别精度逐渐增加. 当经过 1 个训练后, 其识别准确率为 54.71%. 当经过 5 个训练后, 其识别准确率快速增加至 87.12%. 当经过 20 个训练后, 其识别准确率增加至 89.99%, 这一数值已经接近于最高识别准确率 ($\sim 92.59\%$), 与理想的最佳识别准确率 ($\sim 93.08\%$) 极为接近.

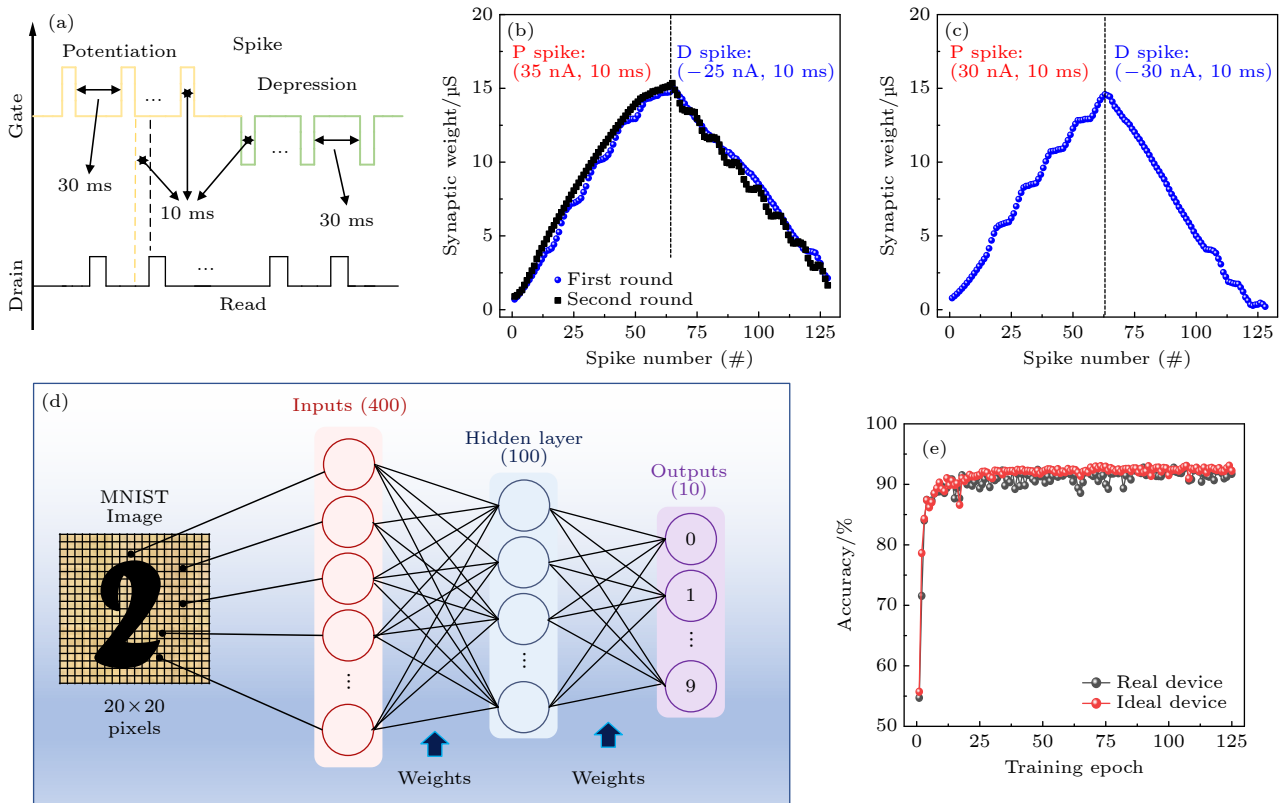


图 6 (a) 施加在 ITO 神经形态晶体管上的刺激信号示意图; (b), (c) 不同增强脉冲和抑制脉冲刺激下的权重更新结果; (d) 两层 MLP 模拟器的示意图, 由 400 个输入神经元、100 个隐藏神经元和 10 个输出神经元组成; (e) MNIST 识别精度

Fig. 6. (a) Schematic diagram of spike loaded on ITO neuromorphic transistor; (b) and (c) synaptic weight updating obtained under different potentiation/depression spikes; (d) schematic diagram of two-layer MLP simulator, consisting of 400 input neurons, 100 hidden neurons and 10 output neurons; (e) recognition accuracies for MNIST patterns.

本文识别精度与纳米纤维素栅控神经形态器件权重值上得到的识别精度接近^[39]. 上述结果表明, 本文研制的以 ESM 电解质作为栅介质的 ITO 神经形态晶体管在高精度的神经形态计算中具有极大潜力.

4 结 论

本文采用 ESM 电解质作为栅介质制作了 ITO 双电层晶体管. 其中 ESM 电解质具有高的室温质子电导率和高室温双电层电容, 在 50% 空气相对湿度下室温质子电导率约高达 6.4×10^{-3} S/cm, 双电层电容约高达 $2.8 \mu\text{F}/\text{cm}^2$, 表明 ESM 具有极强的界面双电层调控效应. 制作的底栅 ESM 栅控 ITO 薄膜晶体管在低电压下具有较好的电学性能, 如电流开关比约高达 2.5×10^6 , 电子场效应迁移率约为 $3.2 \text{ cm}^2/(\text{V} \cdot \text{s})$, 亚阈值摆幅仅为 213 mV/dec. 鉴于 ESM 独特的界面质子双电层调控效应, 器件呈现了典型的突触塑性行为, 包括 EPSC 和 PPF. 随着刺激强度的增强, 器件的 EPSC 逐渐增强. 并随着刺激频率的增强, 器件的 EPSC 增益逐渐增加, 表明器件在高通滤波方面的应用潜力. 另外还通过前突触刺激的施加, 实现了对器件突触权重增强和抑制的调控, 在此基础上采用 MLP 模拟器, 实现了对 MNIST 手写数据的识别, 最佳识别精度约达到 92.59%. 这些结果表明, ESM 栅控氧化物神经形态晶体管在低成本生物可降解神经形态系统方面具有一定的应用潜力.

参考文献

- [1] Abbott L F, Regehr W G 2004 *Nature* **431** 796
- [2] Poo M M, Du J L, Ip N Y, Xiong Z Q, Xu B, Tan T 2016 *Neuron* **92** 591
- [3] James C D, Aimone J B, Miner N E, Vineyard C M, Rothganger F H, Carlson K D, Mulder S A, Draelos T J, Faust A, Marinella M J, Naegle J H, Plimpton S J 2017 *Biol. Inspired Cognit. Archit.* **19** 49
- [4] Zidan M A, Strachan J P, Lu W D 2018 *Nat. Electron.* **1** 22
- [5] Jo S H, Chang T, Ebong I, Bhadviya B B, Mazumder P, Lu W 2010 *Nano Lett.* **10** 1297
- [6] Kim M K, Lee J S 2018 *ACS Nano* **12** 1680
- [7] Chen J B, Guo T T, Yang C Y, Xu J W, Gao L Y, Jia S J, Zhang P, Chen J T, Zhao Y, Wang J, Zhang X Q, Li Y 2023 *J. Phys. Chem. C* **127** 3307
- [8] Zhu L Q, Wan C J, Guo L Q, Shi Y, Wan Q 2014 *Nat. Commun.* **5** 3158
- [9] Ge C, Liu C X, Zhou Q L, Zhang Q H, Du J Y, Li J K, Wang C, Gu L, Yang G Z, Jin K J 2019 *Adv. Mater.* **31** 1900379
- [10] Park H L, Kim H, Lim D, Zhou H, Kim Y H, Lee Y, Park S, Lee T W 2020 *Adv. Mater.* **32** 1906899
- [11] Shao F, Feng P, Wan C J, Wan X, Yang Y, Shi Y, Wan Q 2017 *Adv. Electron. Mater.* **3** 1600509
- [12] He Y L, Nie S, Liu R, Jiang S S, Shi Y, Wan Q 2019 *Adv. Mater.* **31** 1900903
- [13] Feng G D, Jiang J, Li Y R, Xie D D, Tian B B, Wan Q 2021 *Adv. Funct. Mater.* **31** 2104327
- [14] Guo Y B, Zhu L Q, Long T Y, Yun D, Ren Z Y 2020 *J. Mater. Chem. C* **8** 2780
- [15] Fu Y M, Wan C J, Zhu L Q, Xiao H, Chen X D, Wan Q 2018 *Adv. Biosyst.* **2** 1700198
- [16] Wang X J, Zhu L, Chen C S, Mao H W, Zhu Y X, Zhu Y, Yang Y, Wan C J, Wan Q 2021 *Flexible. Printed Electron.* **6** 044008
- [17] Feng G D, Jiang J, Zhao Y H, Wang S T, Liu B, Yin K, Niu D M, Li X H, Chen Y Q, Duan H G 2020 *Adv. Mater.* **32** 1906171
- [18] Zhong G K, Zi M F, Ren C L, Xiao Q, Tang M K, Wei L Y, An F, Xie S H, Wang J B, Zhong X L, Huang M Q, Li J Y 2020 *Appl. Phys. Lett.* **117** 092903
- [19] Li L K, Wang X L, Pei J X, Liu W J, Wu X H, Zhang D W, Ding S J 2021 *Sci. China Mater.* **64** 1219
- [20] Sangwan V K, Lee H S, Bergeron H, Balla I, Beck M E, Chen K S, Hersam M C 2018 *Nature* **554** 500
- [21] Qiu W J, Sun J, Liu W R, Huang Y L, Chen Y, Yang J L, Gao Y L 2020 *Org. Electron.* **84** 105810
- [22] Ding G L, Yang B D, Chen R S, Mo W A, Zhou K, Liu Y, Shang G, Zhai Y B, Han S T, Zhou Y 2021 *Small* **17** 2103175
- [23] Li Y, Zhang C, Zhao X L, Tong Y H, Tang Q X, Liu Y C 2022 *ACS Appl. Electron. Mater.* **4** 316
- [24] Raais-Hosseini N, Park Y, Lee J S 2018 *Adv. Funct. Mater.* **28** 1800553
- [25] Guo L Q, Tao J, Zhu L Q, Xiao H, Gao W T, Yu F, Fu Y M 2018 *Org. Electron.* **61** 312
- [26] He Y L, Nie S, Liu R, Shi Y, Wan Q 2019 *IEEE Electron Device Lett.* **40** 139
- [27] Cai J C, Ren Z Y, Zhu L Q, Dai Y J, Zeng Y H, Guo W, Xiao H, Ye J C 2021 *J. Phys. D-Appl. Phys.* **54** 375102
- [28] Wen J, Zhu L Q, Qi H F, Ren Z Y, Wang F, Xiao H 2020 *Org. Electron.* **82** 105782
- [29] Jiang S H, Feng P, Yang Y, Du P F, Shi Y, Wan Q 2016 *IEEE Electron Device Lett.* **37** 287
- [30] Li Z Y, Zhu L Q, Guo L Q, Ren Z Y, Xiao H, Cai J C 2021 *ACS Appl. Mater. Interfaces* **13** 7784
- [31] Weymuth T, Jacob C R, Reiher M 2010 *J. Phys. Chem. B* **114** 10649
- [32] Bandekar J 1992 *Biochim. Biophys. Acta* **1120** 123
- [33] Dong Q, Su H L, Zhang D, Cao W, Wang N 2007 *Langmuir* **23** 8108
- [34] Kong J, Yu S 2007 *Acta Biochim. Biophys. Sin.* **39** 549
- [35] Arami M, Limaee N Y, Mahmoodi N M 2006 *Chemosphere* **65** 1999
- [36] Fu Y M, Zhu L Q, Wen J, Xiao H, Liu R 2017 *J. Appl. Phys.* **121** 205301
- [37] Mukhamedyarov M A, Grishin S N, Zefirov A L, Palotas A 2009 *Pflugers Arch. -Eur. J. Physiol* **458** 563
- [38] Chen P Y, Peng X C, Yu S M 2018 *IEEE Trans. Comput. - Aided Design Integr. Circuits Syst.* **37** 3067
- [39] Wang W S, Ren Z Y, Shi Z W, Xiao H, Zeng Y H, Zhu L Q 2022 *IEEE Electron Device Lett.* **43** 737

Egg shell membrane based electrolyte gated oxide neuromorphic transistor^{*}

Li Yan Chen Xin-Li Wang Wei-Sheng Shi Zhi-Wen Zhu Li-Qiang[†]

(School of Physical Science and Technology, Ningbo University, Ningbo 315211, China)

(Received 17 March 2023; revised manuscript received 24 May 2023)

Abstract

In recent years, the study of neuromorphic devices has received extensive attention. It is becoming an important branch of the development of artificial intelligence technology. At the same time, natural biomaterials have several priorities, such as biodegradability, good biocompatibility, and non-toxicity, and have important value in novel portable intelligent systems. The egg shell membrane (ESM) is a fiber scaffold composed of highly crosslinked collagen, glycoprotein and cysteine-rich eggshell membrane proteins. It has porous morphology, thermal stability, mechanical strength, etc. Therefore, these protein-based fiber membranes have several potential applications, including nanocatalysts, microbial fuel cells, and adsorption of toxic dyes. This study adopts ESM as electrolyte, exhibiting extremely high proton conductivity of about 6.4×10^{-3} S/cm and extremely high electric-double-layer (EDL) capacitance of about $2.8 \mu\text{F}/\text{cm}^2$ at room temperature. Thus, it has extremely strong interfacial EDL electrostatic modulation capability. Then, indium tin oxide EDL transistor is fabricated by using a single step masking processing and magnetron sputtering deposition technology. The device exhibits typical n-type output curves and transfer curves at low operating voltage. In addition, transfer curves are scanned twice. It is observed that the curves approach to each other quite well, indicating the good stabilities. Owing to the extremely strong proton gating effects, the device exhibits excellent electrical performances. Specifically, ON/OFF ratio, mobility and sub-threshold swing are estimated to be about 2.5×10^6 , about $3.2 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$, and about $213 \text{ mV}/\text{dec}$, respectively. With the unique interfacial EDL modulation activities of ESM, the transistor can mimic some important synaptic plasticity behaviors, such as excitatory postsynaptic current (EPSC) and paired pulse facilitation (PPF). With the increase of pre-synaptic spike amplitude, the EPSC value increases correspondingly. With the increase of pre-synaptic spike frequency, the EPSC grain increases, indicating the potentials in high-pass synaptic filtering. By loading 64 potentiation spikes and 64 depression spikes, multi-level synaptic weight can be updated, demonstrating potentiation activity and depression activity. Again, with the same potentiation spikes and depression spikes, synaptic weight value curves approach to each other quite well, indicating that the present ESM gated oxide neuromorphic transistor has good stability. Then, an artificial neural network is adopted to perform supervised learning with Modified National Institute of Standards and Technology (MNIST) database. For simulation, a two-layer multilayer perceptron (MLP) neural network with 400 input neurons, 100 hidden neurons and 10 output neurons is adopted. The best recognition accuracy is as high as 92.59%. The proposed ESM gated oxide neuromorphic transistors have certain potentials in low-cost biodegradable neuromorphic systems.

Keywords: egg shell membrane based electrolyte, oxide neuromorphic transistor, synaptic plasticity, pattern recognition

PACS: 73.40.Qv, 85.30.Tv, 87.18.Sn

DOI: 10.7498/aps.72.20230411

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 51972316, U22A2075) and the Ningbo Key Scientific and Technological Project, China (Grant No. 2021Z116).

[†] Corresponding author. E-mail: zhuliqiang@nbu.edu.cn



蛋壳膜电解质栅控氧化物神经形态晶体管

李岩 陈鑫力 王伟胜 石智文 竺立强

Egg shell membrane based electrolyte gated oxide neuromorphic transistor

Li Yan Chen Xin-Li Wang Wei-Sheng Shi Zhi-Wen Zhu Li-Qiang

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 72, 157302 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.20230411

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.72.20230411>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

基于层状多元金属氧化物的人造突触

Artificial synapses based on layered multi-component metal oxides

物理学报. 2022, 71(14): 148501 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220303>

氧化物基忆阻型神经突触器件

Oxide-based memristive neuromorphic synaptic devices

物理学报. 2019, 68(16): 168504 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20191262>

基于二维材料MXene的仿神经突触忆阻器的制备和长/短时程突触可塑性的实现

Fabrication of synaptic memristor based on two-dimensional material MXene and realization of both long-term and short-term plasticity

物理学报. 2019, 68(9): 098501 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20182306>

镨掺杂铟镓氧化物薄膜晶体管的低频噪声特性分析

Analysis of low frequency noise characteristics of praseodymium doped indium gallium oxide thin film transistor

物理学报. 2021, 70(16): 168501 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210368>

用于等离子体相干模式自动识别的谱聚类算法实现

Implementation of spectral clustering algorithm for automatic identification of plasma coherence patterns

物理学报. 2022, 71(15): 155202 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220367>

基于水热法制备三氧化钼纳米片的人工突触器件

Artificial synapse based on MoO₃ nanosheets prepared by hydrothermal synthesis

物理学报. 2020, 69(23): 238501 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200928>