基于忆阻器模拟的突触可塑性的研究进展

张晨曦^{1,2,3†}, 陈艳^{1,2,3†}, 仪明东^{1,2,3*}, 朱颖^{1,2,3}, 李腾飞^{1,2,3}, 刘露涛^{1,2,3},
王来源^{1,2,3*}, 解令海^{1,2,3}, 黄维^{1,2,3,4,5*}

1. 有机电子与信息显示国家重点实验室培育基地, 南京210023
2. 南京邮电大学信息材料与纳米技术研究院, 南京210023
3. 江苏省国家先进材料协同创新中心, 南京210023
4. 南京工业大学先进材料研究院, 南京 211816
5. 江苏省柔性电子重点实验室先进生物与化学制造协同创新中心, 南京 211816

* 通信作者: E-mail: iammdyi@njupt.edu.cn, iamlaiyuanwang@126.com, iamwhuang@njupt.edu.cn

† 同等贡献

收稿日期: 2017-01-23; 接受日期: 2017-07-21; 网络出版日期: 2018-01-08

国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2014CB648300, 2015CB932200)、国家自然科学基金 (批准号: 61475074, 61204095)、江苏省自然科学基金 (批准号: BK20160088)、省级大学生创新训练计划 (批准号: SYB2016009)、国家自然科学基金优秀青年基金 (批准号: 21322402)、长江学者和创新团队 (批准号: IRT_15R37)、中国江苏省教育委员会自然科学基金 (批准号: 14KJB510027) 和江苏省高校优势学科建设工程 (PAPD) 资助项目

摘要 随着数据信息的迅速膨胀, 现代基于 von Neumann 架构的计算机正面临着严峻的挑战, 像人脑一样能够对信息进行学习、记忆和灵活处理的智能计算机是未来计算机发展的方向和目标. 人脑几乎控制着人类所有复杂的生命活动, 大脑神经元间的信息传递依赖于名为“突触”的结构, 其突出特点——突触可塑性是学习与记忆的重要分子基础, 因此突触仿生和突触可塑性模拟被认为是实现高效类脑人工神经网络的第一步. 忆阻器作为第 4 种基本电路元件, 拥有独特的类神经突触非线性电学传输特性, 它的出现和发展为实现这一目标提供了可能. 本文全面总结了近年来各科研小组使用不同的忆阻器件和各种实验方法成功模拟的突触可塑性, 包括按记忆时间长短分类的短时程可塑性 (双脉冲抑制、双脉冲易化、强直后增强) 和长时程可塑性, 以及放电时间依赖可塑性、放电速率依赖可塑性、经验学习、非联想性学习功能, 还有用多个忆阻器及其他基本元器件 (电阻、电感、电容、晶体管等) 复合模拟的联想性学习、突触缩放等复杂功能, 对比了不同器件的优缺点. 最后, 简述了当前忆阻器研究存在的问题和挑战, 并对忆阻器在突触仿生中的研究前景进行了展望.

关键词 忆阻器, 突触, 突触可塑性, 人工神经网络

引用格式: 张晨曦, 陈艳, 仪明东, 等. 基于忆阻器模拟的突触可塑性的研究进展. 中国科学: 信息科学, 2018, 48: 115–142, doi: 10.1360/N112017-00022
Zhang C X, Chen Y, Yi M D, et al. Recent progress in memristors for stimulating synaptic plasticity (in Chinese). Sci Sin Inform, 2018, 48: 115–142, doi: 10.1360/N112017-00022

1 引言

数据信息的迅速膨胀对计算机捕获、编码、运行的效率提出了越来越高的要求, 而传统计算机由于 von Neumann 架构瓶颈的限制, 已经逐渐难以满足这些要求. 尽管当前数字计算机具备了一定的运算速度和运算量, 可以模拟一些简单生物 (如老鼠) 的大脑功能, 但计算机系统的能量耗散将随所能模拟的动物智力层次的提高呈指数级增加^[1~4], 显然无法满足实际的需求. 使计算机像更高级动物大脑那样运作, 而又不会有大量的能量损失, 是未来计算机发展的迫切需求. 科学研究中, 跨学科跨领域的研究往往会给我们的问题带来一些意想不到的见解. 基于电子科学的研究, 蔡少棠于 1971 年从对称性角度在电路理论中提出假设^[5], 发现了“消失的电路元件”——忆阻器, 它的低功耗对设计和优化神经形态电路十分有利^[6]; 而在神经科学研究中, 神经系统的高效性关键在于大脑皮质神经元间巨大的连接网络 ($10^{14} \sim 10^{15}$), 它的大脑提供了高度并行的处理能力^[7]. 大脑神经元之间的信息传递依赖于名为“突触”的生物结构, 它是神经网络中信号传递与调控的基本单位^[8~11]. 根据海扁突触理论, 突触可塑性是学习与记忆的神经分子基础, 同时也被认为在大脑神经回路的形成中起到重要的作用. 研究人员发现, 突触和忆阻器有着十分相似的传输特性, 单个忆阻器便可能模拟一个突触的基本功能, 与传统使用的由多个晶体管和电容器相结合的互补金属氧化物半导体 (CMOS) 来模拟一个突触相比减少了很多能耗, 也降低了集成电路的复杂性^[4, 12~14]. 据此, 人们开始尝试使用忆阻器进行各种突触功能的仿真, 从而实现有效的神经形态计算^[15, 16], 并希望通过向内置了忆阻器件的神经形态计算机中纳入类似突触功能的相关机制, 制造出新一代的自适应超高密度智能机. 另一方面, 最新研究的纳米物理、纳米电子原理也有望使我们更好地理解突触功能背后复杂的分子和生理机制^[17]. 近几十年以来, 很多科研小组已经通过忆阻器件成功地模拟了突触的各种功能, 本文将会对突触功能和相关的模拟方法进行一个系统详细的总结.

2 突触和忆阻器的简介

大脑控制着学习、记忆、感知、情感等很多生命活动, 是非常强大的信息处理中心^[18]. 大脑与数字计算机相比, 有很大的区别. 首先, 它们是数据处理器的典型实例, 其数据处理单元, 即神经元, 可处理不同于数字系统的巨大的信息量; 其次, 它们是通过一个很庞大的神经元群来处理信息, 而不是单个神经元. 因此, 由于信息的编码和解码是以一种统计的方式实现的, 单个神经元出现的错误计算对包含了这个神经元的神经元群的总体性能影响不大, 换句话说, 它是容错计算的一个很好的例子; 第三, 哺乳动物大脑可以学习, 并且可以根据环境条件不同进行自我调整, 这是它区别于数字计算机的最重要的特点之一^[19]. 以上 3 个颇为显著的优势让神经形态工程学家为之做出了一次又一次的尝试, 希望可以在类脑芯片上实现类似的功能. 大脑的独特优势依赖于庞大的神经元群, 而神经元之间的信息传递依赖于突触这个结构, 大脑的学习和记忆等功能依赖于突触可塑性, 因此在介绍如何用忆阻系统模拟突触功能之前, 首先介绍一下突触的概念和神经元之间信息传递的过程.

2.1 突触及突触可塑性

突触是指神经元与神经元连接的部位, 包括突触前膜、突触间隙和突触后膜 3 部分. 根据神经信号通过突触的方式不同, 突触可以分为电突触和化学突触, 本文主要关注化学突触.

图 1^[17](a) 为连接两个神经元的突触, 突触前神经元通过其一个轴突释放一个突触前神经刺激信号 (动作电位) $V_{\text{mem-pre}}$ 到突触部位 (突触神经元的神经刺激信号是细胞膜外的膜电位 $V_{\text{pre}+}$ 相对于

图 1 (网络版彩图) 神经元间的连接示意图^[17]

Figure 1 (Color online) The connections between neurons. (a) A synapse is where a pre-synaptic neuron “connects” with a post-synaptic neuron; (b) detail of synaptic junction^[17] ©Copyright 2009 Nature Publishing Group

细胞内的膜电位 V_{pre^-} 定义的, $V_{mem-pre} = V_{pre^+} - V_{pre^-}$, $V_{mem-pos} = V_{pos^+} - V_{pos^-}$). 在一个脉冲过程中, 膜电位的改变 (大约几百毫伏) 导致多种选择分子膜通道打开或关闭, 从而选择性地使一些离子和分子物质通过膜, 而其他的物质则不能通过. 在这个过程中 (图 1(b)), 突触前神经元细胞中包含了神经递质的突触小泡与突触前膜融合, 并将神经递质释放到突触间隙, 神经递质被突触后膜选择性地收集从而改变突触后膜的离子通透性. 突触前神经刺激信号的积累 (来源于上述神经元和其他神经元的神经刺激信号总和) 最终将导致突触后神经元产生一个新的动作电位^[17].

每个突触的功能都被“突触权重”所衡量, 其决定了在一次神经元之间信号传递过程中, 神经刺激信号所释放的神经递质囊泡的数量和大小, 有时也被解释为突触间的连接强度^[20]. 本文将突触权重解释为突触的一种参数, 用来反映突触在神经元之间的一次信号传递过程中所发挥的作用, 它具有非易失性的特点, 但会随着突触前后神经元的活动而发生改变, 可以被输入突触的神经刺激信号连续的调节^[21, 22]. 突触的形态、功能、强度和效率发生较为持久的改变的特性或现象就称为“突触可塑性”, 并被认为在大脑短时记忆到长时记忆转变中发挥重要作用, 是生物系统学习和其他各种功能实现的基础^[4, 23~25].

突触可塑性的形式有很多种, 按记忆的时间长短可分为短时程可塑性 (short-term plasticity, STP) 和长时程可塑性 (long-term plasticity, LTP), 其中短时程可塑性包括双脉冲抑制 (paired-pulse depression, PPD)、双脉冲易化 (paired-pulse facilitation, PPF)、强直后增强 (post-tetanic potentiation, PTP), 此外还有一些其他的可塑性, 如: 放电速率依赖可塑性 (spiking-rate-dependent plasticity, SRDP)、放电时间依赖可塑性 (spiking-timing-dependent plasticity, STDP)、经验学习 (learning-experience)、非联想性学习 (nonassociative learning)、联想性学习 (associative learning)、突触缩放 (synaptic scaling) 等, 它们是突触进行神经信号处理、神经计算的基础, 在后文会逐一介绍.

在忆阻器出现之前, 也有很多科学家对突触可塑性的模拟进行尝试, 他们的共同点是都运用了很多不同的电路元件 (如电阻、电感、电容、晶体管等) 共同实现突触的功能, 因此会在一个 VLSI (超大规模集成电路) 芯片上占用很大的空间, 现在的 VLSI 芯片上所能承载这一类电子突触的数量将要比

实际人脑神经系统中的突触数量少很多. 与此相比, 可以在小于 $50\text{ nm} \times 50\text{ nm} \times 50\text{ nm}$ 的尺寸上实现突触功能模拟的器件——忆阻器就展现出了巨大的魅力.

2.2 忆阻器的典型特征

忆阻系统具有某种结构上的可修饰性, 可以通过阻态的改变来反映外场的加载历史, 具有“记忆”功能, 该特性也是忆阻系统的一个基本判据; 另外, 忆阻系统中阻态的变化所反映的状态量的变化很大程度上取决于掺杂离子的迁移随外部条件的变化, 不同条件下系统掺杂离子的迁移率以及其变化情况对系统的状态量的确定至关重要^[26]. 利用忆阻器模拟神经突触, 最基本的依据是它具有类似于神经突触传输特性的可塑性电学性质, 此外, 它的规格是纳米级的, 这使得在未来用它建立起一个类脑的大规模集成电路成为可能^[27~30]. 忆阻器的电阻转变行为通常可以分为两类: 一类具有突变的高低两种电阻状态, 另一类则呈现出电阻缓变行为, 器件存在多个电阻中间态并可以在施加电压时实现从高(低)阻态到低(高)阻态的逐渐转变. 在突触的神经网络模拟的仿生电路中, 经常利用后一种电阻转变现象. 按照忆阻器的理论模型, 认为电阻缓变型器件阻值可以随电压而发生变化, 并能够记住改变的状态. 也就是说某一刻的电阻值与曾经施加于器件的电压历史有关, 这与生物体中神经突触的原理有着很高的相似性: 神经突触实际上可以看做一个两端器件的结构^[27], 它具有独特的记忆传输特性, 神经元之间的连接强度决定着传递的效率, 可以动态地通过刺激信号或抑制信号的训练而改变, 并保持连续变化的状态, 故电阻缓变型器件能模拟突触工作.

3 突触功能和模拟方法

总的来说, 忆阻器通常采用两端器件的结构, 类似于电容器, 因此突触的前后两端可分别被映射为忆阻器件的两个电极, 在忆阻器件上施加脉冲电压可用来代替神经元的神经刺激信号, 而忆阻器的导电态则用来表示突触权重的变化(导电性增加和减小分别对应突触权重的增大和减小), 通过改变脉冲电压的形状、频率、持续时间等参数来模拟不同突触功能相应的神经刺激信号的特点, 从而得到相应的导电态的变化, 导电态的变化是非易失性的, 这种连续变化的器件的电阻态正对应于神经突触的可塑性^[31].

3.1 短时程可塑性和长时程可塑性 (STP/LTP) 及其相互转化

人脑的短时记忆 (short time memory, STM) 持续时间一般被认为从毫秒到数分钟不等, 它只能通过刺激被短暂的维持, 而长时记忆 (long time memory, LTM) 持续时间为几小时、几天、几周有时甚至可长达一生, 它不需要用随后的刺激来维持, 因为它已经在突触的结构上产生了一些变化^[32]. 与短时记忆和长时记忆相对应的短时程可塑性和长时程可塑性 (STP/LTP) 被认为是哺乳动物大脑中最主要的两种突触可塑性的形式, STP 对应于突触受刺激后的短暂增强神经连接, 大多数的 STP 是由短期或一些突发性活动引起的, 例如 STP 可以由 Ca^{2+} 在突触前神经元的瞬时积累造成, 这些 Ca^{2+} 的增加反过来又影响突触活动中神经递质的释放能力^[33], STP 往往对感觉输入的短时程适应、短时程行为改变、以及短时程记忆有重要作用, 并且被认为可以帮助大脑过滤掉一些不必要的信息^[34, 35]; 而 LTP 则是在短时记忆的基础上经过反复训练和有意义的连接形成的永久性记忆, 对应于突触权重持久的改变^[36, 37], 一般持续时间达到几天以上, 通过充分的训练, 可以实现 STP 到 LTP 的转化.

图 2 (网络版彩图) (a) LTP 和 (b) LTD 的示意图. 这里场兴奋性突触后电位的起始斜率 (fEPSP slope) 即代表突触权重, 图中所示为它关于时间的函数^[33]

Figure 2 (Color online) Examples of experiments illustrating (a) LTP and (b) LTD. Synaptic weight, defined as the initial slope of the field excitatory postsynaptic potential (fEPSP slope) is plotted as a function of time^[33] ©Copyright 2008 Nature Publishing Group

3.1.1 短时程可塑性 (STP)

STP 包括短时程增强和短时程抑制, 而这两种形式则是由突触的双脉冲易化 (PPF), 强直后增强 (PTP) 和双脉冲抑制 (PPD) 功能实现的. 短时程增强是指在神经递质释放概率低的突触类型中, 重复刺激突触前神经元而使突触后电流增大. 短时程抑制是指在神经递质释放概率高的突触类型中, 由于第一个脉冲引起大量神经递质释放导致随后相隔很短的脉冲刺激时神经递质释放不足, 因而使其突触电流减小.

当两个神经刺激信号之间相隔了很短的时间, 突触对第一个刺激信号的响应会增强或减弱突触对第二个刺激信号的响应^[38,39], 如果增强则为 PPF^[34, Figure 1], 如果减弱则为 PPD, 当两刺激信号间隔小于 20 ms 时, PPD 几乎在所有突触中都能被观察到, 通常将这种现象解释为具有电压依赖性的 Na^+ , Ca^{2+} 通道失活, 或者是由积累在突触前神经元的神经递质囊泡的暂时耗尽所造成的. 当两刺激间隔较长 (20 ~ 500 ms) 时, 表现出 PPF, 对这种现象的简单解释就是第一个刺激信号产生时细胞内残留的 Ca^{2+} 会导致第二次刺激时突触小泡的额外释放^[33]. 无论是 PPF 还是 PPD, 都与这个突触最近的活动有关, 而由于这种突触可塑性与神经递质的释放能力有关, 当这个突触第一次释放很多神经递质时, 它对第二个刺激的响应就有减弱的趋势^[40]; 而当它第一次释放的神经递质较少时, 它对第二个刺激的响应就有增强的趋势. 强直后增强 (PTP) 与 PPF 类似, 也是短时程增强的一种表现形式, 是指重复活动后突触的传递效率在一定时间内提高的现象, 被认为与一连串的神经过刺激过程中突触前膜处钙离子浓度的增加而导致的神经递质释放概率增加有关, 所不同的是, PPF 的持续时间为几十毫秒, 而 PTP 可持续几十秒到几分钟^[41].

3.1.2 长时程可塑性 (LTP)

长时程可塑性的实验支持最早是由 Bliss 和他的同事于 1973 年报道的^[36], 他们发现海马区兴奋性突触的连续刺激会导致突触传递效能的增强, 这种增强可以持续几小时甚至几天, 这个现象被定义为长时程增强 (LTP) (图 2^[33]). LTP 在过去的四十年中被人们广泛研究, 因为它被认为是理解记忆形成的细胞和分子机制的关键^[42,43]. 尽管人类对 LTP 的研究还远远不够, 但是可以明确的是, 海马区的 LTP 现象只是 LTP 多种形式中的一种, 而且在 LTP 出现的地方往往也会有长时程抑制 (LTD) 的存在.

图 3 (网络版彩图) (a) Ag/Si 忆阻器对脉冲的响应 (LTP/LTD). 通过施加连续增强 (抑制) 脉冲, 器件的电导会逐渐地增加 (降低). 每次脉冲刺激后, 在 1 V 的电压下测量其电导, 绘制出电流曲线. 正向脉冲 P, 3.2 V, 300 μ s; 负向脉冲 D, -2.8 V, 300 μ s; (b) 在 NiO_x 忆阻器中模拟的 PPF 的幅值与时间间隔的关系^[1]

Figure 3 (Color online) (a) Ag/Si Memristor response to programming pulses (LTP/LTD). The device conductance can be incrementally increased or decreased by consecutive potentiating or depressing pulses. The conductance was measured at 1 V after each pulse and the read current is plotted. P, 3.2 V, 300 μ s; D, -2.8 V, 300 μ s @Copyright 2010 American Chemical Society; (b) magnitude of the paired-pulse facilitation (PPF) of a NiO_x -based memristor as a function of the pulse interval^[1] @Copyright 2013 AIP Publishing LLC

3.1.3 STP 和 LTP 的模拟及其相互转化

总的来说, 模拟 STP 和 LTP 及它们之间的转化可以通过改变刺激的幅值、刺激重复的次数、刺激的频率 (时间间隔)、刺激持续的时间 (脉冲宽度) 等使得器件导电态变化较大, 固化导电态, 对应了突触权重的增强与稳定. 例如, 当外界输入信号增加时, 在离子迁移型忆阻器中, 离子迁移更加充分, 离子迁移距离更长, 范围更广; 在相变型忆阻器中, 相变比例加大, 相变更稳定; 在导电桥忆阻器中, 导电桥的形成更加完整, 在不同器件中, 虽然阻变机理有区别, 但它们均满足刺激响应规则, 即: 刺激越多, 阻值变化越大, 越稳定.

Jo 等^[1] 提出用连续的正向脉冲刺激一个 Ag/Si 忆阻器可以逐渐增加它的导电性, 类似于 LTP. 而如果施加的脉冲是负向的, 则会降低其导电性, 类似于 LTD (图 3(a)). LTP 和 LTD 已经用 Al/TiO_x/W 忆阻器^[44]、TiW/Ge₂Sb₂Te₅/TiW 忆阻器^[45]、Ag/polymer/Ta 忆阻器^[46]、 α -InGaZnO 忆阻器^[47] 成功模拟. STP 也在很多忆阻器中得以模拟, 如 Hu 等^[48] 在对 NiO_x 基忆阻器的测试中发现, 第二个脉冲刺激下产生的电流比第一个脉冲刺激下产生的电流大, 并且随着两次脉冲间隔的增加, 这种现象逐渐减弱 (图 3(b)), 这与生物突触中的 PPF 功能很相似. 2017 年, Wang 等^[49] 在 Pt/Ag/Pt 导电桥型忆阻器中也实现了 PPF 和 PPD 功能. 他们观察到施加初始电压脉冲时, 电场扩散将一些 Ag 颗粒“抽出”, 开始形成导电桥, 然而, 单个短脉冲不能激发足够的粒子在两电极间形成完整的导电路径, 如果随后的脉冲在颗粒被再吸收之前到达, 也就是说如果脉冲时间间隔短于扩散弛豫时间, 则更多的颗粒进入电极间的间隙, 导致器件电导的逐渐增加, 类似于生物突触中的 PPF 现象. 但随着电场向器件一端输送越来越多的颗粒, 另一端的颗粒数减少, 结果间隙中的颗粒数减少, 器件电导开始衰减, 这是由于过度刺激导致了器件电导的变化, 模拟了 PPD 现象.

人脑神经系统中, STP 到 LTP 可以通过充分的训练得到, 由各小组的研究可知, 在使用忆阻器模拟神经系统功能时, 可以通过减小刺激的时间间隔、增加重复刺激数目等来实现 STP 到 LTP 的转化.

图4 (网络版彩图) (a) Pd/WO_x/W 忆阻器的直流 I-V 曲线. 正向扫描电压 (1 ~ 5, +1.2 V, 2 V/s) 和负向扫描电压 (6 ~ 10, -1.2 V, 2 V/s) 分别连续增加和降低器件导电性; (b) 该忆阻器件中氧空位扩散的示意图^[20]

Figure 4 (Color online) (a) DC I-V curves of Pd/WO_x/W memristor studied here. Positive voltage sweeps (numbered 1 ~ 5, +1.2 V, 2 V/s) and negative voltage sweeps (6 ~ 10, -1.2 V, 2 V/s) increase and decrease the memristor conductance continuously, respectively; (b) schematic illustration of oxygen vacancy diffusion in the memristor device^[20] ©Copyright 2011 American Chemical Society

美国密歇根大学 Lu 小组^[20]以 Pd 作为顶电极, W 作为底电极, 400°C 下快速热退火 (RTA) 处理得到的 WO_x 薄膜作为中间层, 制备结构为 Pd/WO_x/W 的忆阻器件. 简单来说, 图 4(a) 中忆阻器电导的变化是由 WO_x 及底电极表面的氧空位重新分布引起的^[50, 51], 如图 4(b) 所示, 氧空位富集区域可有效形成导电通道, 忆阻器电导的增加可以通过氧空位的迁移形成新的平行通道 (增加总的导电区域面积) 来实现, 同样电导的减少也可通过氧空位的迁移破坏原有导电通道 (减少总的导电区域面积) 来实现. 除了场致氧空位迁移外, 该小组还引入了氧空位自发扩散的因素来解释图 5(a) 中滞回曲线的重叠部分 (当中间层的氧空位相对较少时, 氧空位的自发迁移将会导致导电通道被破坏, 使器件回到一个导电性较低的状态, 在实验中反映为高电导态的保留时间减少).

该小组对器件施加一段较短的脉冲电压, 每 3 秒记录一次器件上的电流, 得到了一条持续时间为 3 分钟的电流变化曲线^[20] (图 5(a)), 发现该曲线与人脑记忆的衰退曲线相吻合 (图 5(b)), 均在起初的一段时间 (τ) 内骤降, 而在以后的时间内减少速率缓慢. 说明该忆阻器被激发后电导自发的衰减可以很好地模拟记忆在人脑生成之后的逐渐遗忘过程. 图 5(c) 显示了在忆阻器顶电极施加的电压, 包括一个持续的 +0.3 V 的读电压 (减少外部因素对忆阻器导电性的干扰) 以及 5 个 +1.3 V, 持续时间 1 ms, 周期 200 ms 的脉冲电压, 从图 5(d) 可以看出, 随着脉冲电压的逐次施加, 器件电导先增加随后自发衰减, 然而当脉冲电压施加多次后, 尽管依然存在自发衰减, 但器件的电导总体提高了, 这是由于两个刺激的间隔时间较短, 不足以使忆阻器回到其初始状态, 第一个刺激的作用增强了第二次刺激的作用, 正是上文提到的双脉冲易化 (PPF) 和强直后增强 (PTP) 功能.

除了导电性提高之外, 在重复刺激作用下, 器件电导的维持时间也显著延长. 对初始状态相同的器件施加振幅、持续时间、脉冲时间间隔一定的一系列脉冲电压时, 可以观察到, 随着刺激数量 N 逐渐增加, 电流衰减的越来越慢 (图 6(a, b))^[20], 从图 6(c) 可以看到 τ 明显增加, 并且当 τ 较短, 大约几秒时, 对施加的刺激较为敏感, 而当 τ 较长, 约几分钟时, 则对施加的刺激不敏感, 这是由于重复刺激使得氧空位向电极与中间层的交界处迁移, 并且侧向的氧空位扩散达到平衡, 使得导电通道很难被破坏, 如图 6(d), 这与 STP 向 LTP 的转变有很大的相似之处^[52], 长时记忆的形成也是由于新的突触连

图 5 (网络版彩图) (a) 忆阻器电导保留曲线; (b) 人脑记忆的遗忘曲线 (纵坐标 probability of recall 即为人脑可以回忆起该事件的可能性, 与遗忘程度等效); (c) 向忆阻器施加的电压, 包括一个持续的 $+0.3\text{ V}$ 的读出电压, 和 5 个 $+1.3\text{ V}$, 持续时间 1 ms , 周期 200 ms 的脉冲电压; (d) 在图 (c) 电压作用下的电流变化^[20]

Figure 5 (Color online) (a) A retention curve of the memristor; (b) a forgetting curve of human memory; (c) the voltage profile applied to the memristor, consisting of five $+1.3\text{ V}$, 1 ms pulses and a constant $+0.3\text{ V}$ read voltage; (d) the corresponding current through the memristor data recorded continuously throughout the test^[20] @Copyright 2011 American Chemical Society

接不断形成, 使得突触间的传输通道越来越多并达到稳定, 长时记忆也会随着时间消逝, 但较短时记忆而言, 这种消逝要慢得多, 所以通过对忆阻器件施加重复刺激可以使得其内部结构发生变化从而很好地模拟短时记忆向长时记忆的转变。

除了重复刺激之外, 在对神经系统的研究中, 发现刺激速率 (刺激脉冲间的时间间隔) 对突触活动也有着重要的影响, 该小组也通过改变刺激间的时间间隔实现了对短时记忆向长时记忆转变的模拟: 对忆阻器件施加 10 个完全相同的刺激, 仅仅改变刺激间的时间间隔 (或是刺激的速度), 记录电流的变化. 由图 7(a)^[20] 可看出, 当刺激间间隔 10 s 时, 电流几乎没有增加, 而当刺激间隔为 15 ms 时, 电流发生显著的增加, 图 7(b) 显示的是电流差值 $\Delta I = \Delta I_k - \Delta I_i$ 的变化, 可以更加清楚地观察到刺激间的时间间隔对电导变化的影响——时间间隔越短, 电导增加越快, 也就是相同事件的刺激越频繁使得短时记忆更容易转化为长时记忆 (实则为 SRDP 功能)。

在使用忆阻器模拟 STP 向 LTP 转变的工作中, 也不乏导电桥忆阻器的例子. 2011 年, Ohno 等^[10] 就通过 Ag_2S 导电桥忆阻器模拟了这一过程. 图 8^[10] 中 Ag 原子桥形成前后分别代表了 STP 和 LTP, 对器件施加间隔较小 (频率较高) 的连续刺激可以有效地实现 STP 向 LTP 的转变。

而在第二年, Ohno 等^[53] 又在另外一种导电桥忆阻器—— Cu_2S 原子开关型忆阻器件中实现了这一模拟, 与 Ag_2S 不同的是, 这种器件不仅可以通过输入的电压脉冲调节其突触可塑性, 还受到空气 (或湿度) 和温度的影响, 与生物突触在温度提高时的行为很相似. Cu_2S 原子开关中, Cu_2S 固体电解质

图 6 (网络版彩图) (a),(b) 不同数目刺激下忆阻器记忆保持曲线 (点) 和用 SEF 拟合曲线 (实线); (c) 弛豫时间 (τ) 和电流 I_0 随刺激数数目 N 增长的变化曲线; (d) 施加了一定数目刺激后, 氧空位的分布和扩散示意图^[20]

Figure 6 (Color online) (a),(b) Memory retention data recorded after different numbers of identical stimuli (dots) and fitted curves using the SEF (solid lines); (c) characteristic relaxation time (τ) obtained and the current I_0 plotted with respect to the number of stimulations (N); (d) the distribution and diffusion of oxygen vacancy after the application of a number of stimulates^[20] ©Copyright 2011 American Chemical Society

在 Cu 上生长, 对电极 Pt 与 Cu 之间有纳米级的间隙 (图 9), 当施加一个电压使 Cu_2S 处于正偏压时, 原先均匀分布 Cu^+ 向 Cu_2S 下表面扩散. 依赖于施加的电压和热动力条件 (如温度), Cu^+ 沉淀并在表面形成 Cu 原子 (固体电化学反应: $\text{Cu}^+ + \text{e}^- \rightarrow \text{Cu}$), 随后, 沉淀的 Cu 在电极之间形成导电桥, 电导增加. 单原子桥引起的电导为 $G_0 = (2e^2)/h = 77.5 \mu\text{S}$ (e 为电子电荷, h 为普朗克常量), Cu_2S 原子开关电导的变化类似于突触连接强度的变化, 因此可用来模拟突触可塑性. 感觉记忆 (sensory memory, SM) 是指一种非常弱的记忆, 在 SM 状态, 仅在施加脉冲时有很少的沉淀出现, 电导增加很少 ($\ll G_0$). 在 STM 状态, 沉淀 Cu 原子的不稳定核生成了不稳定的原子桥, 因此还不能达到约为 G_0 的稳定电导. 在 LTM 状态, Cu^+ 在 Cu_2S 表面富集, 沉淀的 Cu 更加稳定, 形成了完整而稳定的原子桥, 达到了 G_0 的稳定电导.

图 7 (网络版彩图) (a) 逐个施加时间间隔不同的脉冲时忆阻器电流的变化; (b) 脉冲时间间隔不同时, 每个刺激后电流增加量 $\Delta I = \Delta I_k - \Delta I_i$ 与脉冲数目之间变化曲线^[20]

Figure 7 (Color online) (a) Current through the memristor recorded after each stimulation pulse, at different pulse interval conditions; (b) the current increase $\Delta I = \Delta I_k - \Delta I_i$ after every stimulus plotted against pulse number for different pulse interval conditions^[20] ©Copyright 2011 American Chemical Society

图 10 显示出了在真空中通过改变输入脉冲的幅值 V , 宽度 W 和间隔 T 来模拟不同的突触行为. 图 10(a) 和 (b) 均为 $V=150$ mV, $W=500$ ms, 而 T 分别 10 s 和 1 s. T 为 10 s 时, 在大多数脉冲输入时 (第一次脉冲输入时为 SM), 电导均达到了 G_0 , 但是在脉冲输入的间隔, 会发生自发的衰减, 代表 STM(a). T 为 1 s 时, 最后一次脉冲输入后, 达到了一个持续时间很长的高电导态 ($\leq G_0$ 维持了至少 20 s), 代表 LTM(b), 图 10(c) 和 (e) 改变了脉冲幅值, 对于 (c), $T=10$ s, $W=500$ ms, $V=100$ mV, 脉冲输入到第 6 次时, 观察到了 SM 态, 而第一次的 STM 是在第 8 次脉冲输入时观察到的, 对于 (e), $T=10$ s, $W=500$ ms, $V=100$ mV, 第一次 STM 是在第 5 次脉冲输入后观察到的, 而在 11 次脉冲输入后达到了更高的电导态. 脉冲宽度对电导态的影响则可以从 (d) 中看出, 当 $T=10$ s, $W=50$ ms, $V=100$ mV 时, 第一次的 STM 在 10 次脉冲输入后观察到, 但即使输入了 30 次脉冲, LTM 依然无法实现. (f) 为 (c) 中 STM 衰减过程中电导变化的拟合曲线.

总体来说 Cu_2S 突触中的 SM, STM, LTM 和 Ag_2S 突触很相似, 但是如上文所说, Ohno 等^[53] 还发现了空气 (或湿度) 和温度对 Cu_2S 突触的影响: 有空气时 (相对湿度约为 50%), 当施加的脉冲与图 10(a) 完全相同时, 出现了图 11 的情况, 也就是说与真空中相比, 每一次脉冲施加后, 电导的变化都显著提高了, 该小组将这个现象解释为在真空中 Cu 原子团簇主要被表面扩散和重掺入所限制, 而在空气中, 另外一些依赖于空气的因素会影响其稳定性 (比如氧气的化学吸收作用, 水可以使之形成铜的氧化物或氢氧化物团簇等).

温度对 Cu_2S 突触的影响则更为显著 (图 12), 将输入脉冲固定在 $T=1$ s, $W=500$ ms, $V=150$ mV, 在室温时 ($\approx 22^\circ\text{C}$), 一次刺激之后电导达到了最大值 G_0 , 随后立即衰减到了初始状态, 为 SM. 在 30°C 时, 一次刺激之后达到了 STM, 但是需要再加至少 3 次脉冲才可以形成 LTM. 而当温度为 40°C 时, 一次脉冲输入便足以达到 LTM. 并且在施加脉冲时, 电导在 22°C , 30°C , 40°C 分别为 G_0 , $3G_0$, $4G_0$, 说明在较高温度下, 可以只用较少的刺激就可以很快地形成 LTM, Ohno 等^[53] 认为在高温下 Cu 沉淀的速率可以被显著提高, 因为它随流过该突触的隧道电流呈指数形式增长. 该小组的这一工作为制备能够感知温度和空气的人工突触提供了可能.

SRDP 也是一种在很多突触类型中可以普遍观察到的突触功能, 反映了突触活动频率对突触长时程可塑性的影响, 在用忆阻器件模拟 SRDP 时普遍体现为刺激的频率越高, 电流变化越大, 也就意味

图 8 (网络版彩图) 在 Ag_2S 忆阻器中实现短时程可塑性 STP 到长时程可塑性 LTP 的转变 (和短时程记忆到长时程记忆) ^[10]

Figure 8 (Color online) Implementation of the transition from short-term plasticity to long-term plasticity (and transition from short-term memory to long-term memory) in a Ag_2S memristor. (a) Application of pulses causes the precipitation of Ag atoms from the Ag_2S electrode, resulting in the formation of an Ag atomic bridge between the Ag_2S electrode and a counter metal electrode. When the precipitated Ag atoms do not form a bridge, the memristor works as short-term plasticity (and short-term memory). After an atomic bridge is formed, it works as long-term plasticity (and long-term memory); (b) and (c) changes in the conductance of the inorganic synapse caused by the input pulses with different pulse intervals. Smaller interval can more effectively realize the transition from short-term plasticity to long-term plasticity ^[10]
©Copyright 2011 Nature Publishing Group

着突触权重变化越大. 2010 年, Alibart 等^[8] 首先用他们基于有机纳米晶体管的忆阻器件模拟了 SRDP 功能, 该器件的漏极电流是由载流子的捕获和脱离来决定的, 因此可通过改变脉冲的数量和频率来影响突触可塑性. Chang 等^[20] 也提出了除了脉冲的形状和数量对突触权重的改变有影响外, 脉冲之间的时间间隔也影响了突触权重改变的效能, 时间间隔越小, 突触权重增加越多. 2014 年, Li 小组^[16] 在基于 AgInSbTe (AIST) 硫化物的相变忆阻器中模拟了 SRDP 功能. 如图 13 所示, 所有刺激都是三角形电压脉冲, 上升时间为 $5 \mu\text{s}$, 下降时间为 $5 \mu\text{s}$, 突触前刺激的幅值为 1.2 V , 突触后刺激的电压幅值为 0.8 V . 突触后平均刺激频率从 10 kHz 调整到 83 kHz , 突触前平均刺激频率固定在 50 kHz . 如图 13(a) 所示, 如果突触后活动一直低于临界值 f_θ (50 kHz), 突触效能会降低, 当突触后激发水平超过阈值时, 突触权重将增加. AIST 器件是一种电压控制的忆阻器, 流过器件的总通量 (电压的时间积分) 决定电导变化. 在低突触后频率 ($< 50 \text{ kHz}$) 时, 总通量从底部电极流到顶部电极, 导致长时程抑制, 而高频 ($> 50 \text{ kHz}$) 会引起长时程增强.

2015 年, Liu 等^[54] 报道了上下电极分别为 Ta 和 Pt 的基于 $\text{EV}(\text{CLO}_4)_2/\text{BTPA-F}$ 有机氧化还原体系的忆阻器件, 如图 14(a) 所示, 并模拟了 SRDP 功能. 在这个器件中 BTPA-F 的共轭聚合物因其

图 9 (网络版彩图) Cu_2S 原子开关器件依赖于脉冲电压时间间隔 (T) 的感觉记忆 (SM)、短时程记忆 (STM)、长时程记忆 (LTM) 状态的原理图。单原子桥对应的电导为 $G_0 = 77.5 \mu\text{S}$ [53]

Figure 9 (Color online) Schematic illustration of a Cu_2S gap-type atomic switch in sensory memory (SM), short-term memory (STM), and long-term memory (LTM) states depending on the interval (T) of the input voltage pulse stimulation. The conductance (G) for a single atomic contact is given by $G_0 = 77.5 \mu\text{S}$ [53] @Copyright 2012 John Wiley and Sons

图 10 (网络版彩图) 室温下在真空中改变施加在 Cu_2S 突触上的脉冲电压的时间间隔 (T)、幅值 (V)、和宽度 (W) 引起的电导率 (G) 的变化 [53]

Figure 10 (Color online) Changes in the conductance (G) of a Cu_2S inorganic synapse in vacuum at room temperature depending on the interval (T), amplitude (V), and width (W) of the input voltage pulse stimulation. (a) $V=150 \text{ mV}$, $W=500 \text{ mS}$, $T=10 \text{ s}$; (b) $V=150 \text{ mV}$, $W=500 \text{ mS}$, $T=1 \text{ s}$; (c) $V=100 \text{ mV}$, $W=500 \text{ mS}$, $T=10 \text{ s}$; (d) $V=150 \text{ mV}$, $W=50 \text{ mS}$, $T=1 \text{ s}$; (e) $V=100 \text{ mV}$, $W=500 \text{ mS}$, $T=1 \text{ s}$; (f) the values of time constant (τ) extracted from the fits of the conductance decay curves shown in the dashed rectangular box in (c). An exponential function, $y = y_0 + Ae^{-t/\tau}$, was used to fit the conductance curves [53] @Copyright 2012 John Wiley and Sons

丰富的电化学氧化还原行为被广泛应用于当前的研究 [55, 56], 而乙基紫精二高氯酸盐 ($\text{EV}(\text{ClO}_4)_2$) 则作为 BTPA-F 氧化的对电极材料并提供高氯酸离子来稳定聚合物的带电形式 [57~59]. 这个三明治结构的器件表现出了依赖于加载历史的忆阻行为, 符合模拟生物突触兴奋和抑制的基本要求. Liu 等 [54] 将施加在 $\text{EV}(\text{ClO}_4)_2/\text{BTPA-F}$ 忆阻器上的电压脉冲数量固定为 10, 将频率从 1 到 20 Hz 改变 (或者说

图 11 (网络版彩图) 在空气中, 输入脉冲为 $V=150$ mV, $W=500$ mS, $T=10$ s 时电导的变化^[53]

Figure 11 (Color online) Change in conductance (G) under ambient conditions for voltage pulse of amplitude (V) 150 mV and width (W) 500 mS at an interval (T) of 10 s^[53] @Copyright 2012 John Wiley and Sons

图 12 (网络版彩图) 真空中 Cu_2S 突触的温度依赖性, $V=150$ mV, $W=500$ mS, $T=1$ s^[53]

Figure 12 (Color online) Temperature dependence of conductance (G) of a Cu_2S inorganic synapse in vacuum for input voltage pulses of amplitude = 150 mV, interval = 1 s, and width = 500 mS^[53] @Copyright 2012 John Wiley and Sons

图 13 (网络版彩图) 在 AIST 忆阻器件中实现的 SRDP 功能, 突触效能改变对突触后刺激频率的依赖性. 突触后刺激频率低于 f_θ (50 kHz) 时, 会产生抑制, 突触后刺激频率高于 f_θ (50 kHz) 时, 则会增强. 突触前刺激频率固定在 50 kHz^[16]

Figure 13 (Color online) Implementation of SRDP in the AIST memristor, dependence of synaptic modification on the frequency of the postsynaptic firing rate. For postsynaptic firing rates below f_θ (50 kHz), the synapse is depressed, while synaptic potentiation can be observed beyond f_θ . The presynaptic rate is fixed at 50 kHz^[16] @Copyright 2014 Nature Publishing Group

将脉冲时间间隔从 1 到 0.05 s 改变), 如图 14(b) 所示, 刺激突触的频率越高, 电流越大, 实现了 SRDP 功能. 为了定量地分析每种频率下的电流增量, 绘制出了电流变化和刺激次数的关系曲线, 如图 14(c) 所示, 当频率为 1 Hz 时, 随着刺激次数的增加, 电流没有明显的增加, 而当频率增加为 20 Hz 时, 电流增加了 30 多倍, 表明此时的器件相当于一个高通滤波器. 从理论上来说, 类似于上述的有机体系的固有性质改变可以被用于调节电阻状态并构建人工突触^[60]. 例如, 电荷转移和电化学氧化还原作用都已经被用于聚合物薄膜来连续地改变器件的阻值^[57, 61, 62]. 与无机材料制备的器件相比, 有机材料的优势是低成本, 易加工, 柔软可变形, 最重要的是可以通过分子设计改变其电学特性^[63, 64].

图 14 (网络版彩图) Liu 等用 Ta/EV(CLO₄)₂/BTPA-F/Pt 忆阻器件模拟 SRDP 功能^[54]

Figure 14 (Color online) SRDP of Ta/EV(CLO₄)₂/BTPA-F/Pt memristor. (a) Schematic illustration of the Ta/EV(CLO₄)₂/BTPA-F/Pt memristor and the biological synapse, (b) current and (c) current change (ΔI) with ten voltage pulse stimulations at different frequencies^[54] ©Copyright 2016 John Wiley and Sons

3.2 放电时间依赖可塑性 (STDP)

生物大脑存在着多种高级学习规则, STDP 就是其中一种, 通常来说, 是指刺激两个神经元时, 刺激突触前神经元的时间早于刺激突触后神经元的时间时, 可以得到突触后电流的增强; 当突触前神经元的刺激晚于突触后神经元的刺激时, 突触后电流将会受到抑制^[65~71], 另一方面, 当两个刺激间时间差值发生改变时也能够影响突触后电流的增强效果. 这一学习规则被认为是学习记忆的基本机制, 因此在人工神经网络的发展过程中一般都需要对 STDP 规则进行模拟.

在 STDP 规则中, 突触权重的变化 Δw 表示为关于突触前神经元神经刺激信号的产生时间 t_{pre} 与突触后神经元神经刺激信号产生时间 t_{pos} 之间时间差的功能, 明确地说, 可将 Δw 定义为 $\Delta w = \epsilon(\Delta T)$, $\Delta T = t_{pre} - t_{pos}$. 设想在两个神经元细胞之间有一个忆阻器代替突触, 忆阻器的电压为 $v_{MR} = V_{mem-pre} - V_{mem-pos}$, v_{th} 为阈值电压, 当 v_{MR} 超过 v_{th} 时忆阻行为开始发生, 图 15^[17] 反映了当 ΔT 为正或负值时, 忆阻电压的变化, 相当于突触权重 Δw 的变化, 当 $|\Delta T|$ 趋于零, 在 v_{MR} 中红的部分的峰值将会更高, 突触权重的变化将会更加显著.

从 Bi 和 Poo^[22,72] 的 STDP 实验数据中可以观察 (图 16), 当 ΔT 为正值时 (即突触前神经元的神经刺激信号在突触后神经元的神经刺激信号产生过程中起到了促进的作用), 突触权重增加, 即 $\Delta w > 0$ 并且随着 $|\Delta T|$ 的减小, 突触权重增加的越多, 说明突触前神经刺激信号所起到的作用越大; 当 ΔT 为负值时 (即突触前神经元的神经刺激信号对突触后神经元的神经刺激信号的产生起到了抑制的作用), 突触权重减小, 即 $\Delta w < 0$, 并且随着 $|\Delta T|$ 的减小, 突触权重减少的越多.

图 17(a) 为混合的 CMOS - 神经元/忆阻器 - 突触电路中^[1] 每个神经元神经刺激信号出现后忆阻器突触权重的变化. 当突触前神经元神经刺激信号在突触后神经元神经刺激信号之前 (后), 忆阻器

图 15 (网络版彩图) (a) 突触前神经元细胞膜电位在突触后神经元细胞膜电位前产生, $\Delta T > 0$, $v_{MR} > 0$; (b) 突触前神经元细胞膜电位在突触后神经元细胞膜电位后产生, $\Delta T < 0$, $v_{MR} < 0$ [17]

Figure 15 (Color online) (a) Pre- and post-synaptic membrane voltages for the situation of positive ΔT , result in positive v_{MR} ; (b) Pre- and post-synaptic membrane voltages for the situation of negative ΔT , result in negative v_{MR} [17] @Copyright 2009 Nature Publishing Group

图 16 (网络版彩图) Bi 和 Poo 的 STDP 实验曲线 [72]

Figure 16 (Color online) STDP experimental curve of Bi and Poo [72] @Copyright 2009 Nature Publishing Group

突触权重的增加 (减小). 此外, 突触权重相对于前后神经元神经刺激信号产生时间之差 Δt 的变化曲线可以很好符合指数衰减函数, 类似于生物突触系统 (图 17(b)), 证实了确实可以用忆阻器模拟突触的 STDP 功能.

当然, STDP 功能除了可以用离子迁移型忆阻器模拟外, 还可以在相变忆阻器中实现, 2013 年, Li 等 [73] 选用了已成熟应用于非易失性存储器的一种硫族化物——晶态 $\text{Ge}_2\text{Sb}_2\text{Te}_5$ (c-GST) 制备了本征忆阻器, 该器件可以在非晶态和晶态之间转变并具有很好的耐久度, 通过改变扫描电压的极性, 器件的电阻最高可达 $10 \text{ k}\Omega$, 最低可到 500Ω , 其忆阻特性来源于缺陷导致的电荷捕获和释放. 器件的阻值代表突触权重, 通过 30 ns 的增强/抑制电脉冲进行精确调制. Li 等 [73] 通过在突触前后神经元施加不同的电脉冲对, 在其电子突触中成功实现了以纳秒为数量级的 STDP 形式, 这些突触反应大约在 500 ns 的临界时间发生, 比人脑快 10^5 倍, 为实现超快神经形态计算系统提供了可能.

与上文中对 STDP 的模拟不同, Li 等 [73] 模拟了 4 种不同的 STDP 形式 (图 18), 这 4 种形式会分别出现于不同的情况下或人体不同的部位, 第 1 种是我们通常所说的 STDP 规则, 发生于兴奋与兴奋连接的时间窗口, 当突触前神经元的动作电位早于突触后神经元 ($\Delta t > 0$) 时, 会出现长时程

图 17 (网络版彩图) 忆阻器突触中 STDP 规则的示意图^[1]

Figure 17 (Color online) Demonstration of STDP in the memristor synapse. (a) The measured change of the memristor synaptic weight vs the relative timing Δt of the neuron spikes; (b) the measured change in excitatory postsynaptic current (EPSC) of hippocampal neurons vs the relative timing Δt of the neuron spikes^[1] @Copyright 2010 American Chemical Society

增强 LTP, 相反突触后神经元的动作电位早于突触前神经元 ($\Delta t < 0$) 时, 出现长时程抑制 LTD, 被称为反对称型 Hebbian 学习规则 (antisymmetric Hebbian learning rule) 中的 STDP; 第 2 种是发生在兴奋与抑制连接的时间窗口, LTP 和 LTD 可以由相反的方式引发, 称为反对称反 Hebbian 学习规则 (antisymmetric anti-Hebbian learning rule) 中的 STDP; 第 3 种是指突触的活动仅取决于 $|\Delta t|$ 的大小而不取决于 Δt 的正负, 也就是与前后突触神经元动作电位的顺序无关, 这被称为对称型 Hebbian 学习规则 (symmetric Hebbian learning rule) 中的 STDP, 发生于肌肉神经接点, 当 Δt 趋于 0 时会增强, Δt 远离 0 时会抑制; 而第 4 种则是指无论 Δt 为任何值, 突触活动均抑制, 称为对称反 Hebbian 学习规则 (symmetric anti-Hebbian learning rule) 中的 STDP.

用 Δw 表示突触权重变化的百分比, 即器件电导, 表示突触效能的长时程非易失性改变, 是时间间隔 Δt 的函数. 如图 18(a) 是一个典型的反对称 Hebbian 学习规则, $\Delta t > 0$ 时出现 LTP 现象, $\Delta t < 0$ 时出现 LTD 现象, 左上方插图显示了作用于突触前和突触后的电刺激形状. 刺激间隔为几纳秒时, 突触权重改变的最大量达到 3.26%, 并且随着 Δt 的增加, Δw 趋近于 0. 当应用脉冲刺激来驱动器件电阻变化时, 存在约 0.6 V 的阈值电压 V_θ , 所有 STDP 实验中突触前和突触后刺激的脉冲幅值均小于 0.6 V, 低于阈值, 这意味着单个突触前或突触后刺激不能改变权重, 当突触前和突触后刺激以相反的方向施加在器件上时, 器件的总电压的幅值可能超过阈值, 导致电阻变化. 影响阻值变化的有效通量应该是

$$\varphi(t) = \int V_E dt, \quad (1)$$

其中

$$V_E = \begin{cases} V_{\text{pre}} - V_{\text{post}} + V_\theta, & V_{\text{pre}} - V_{\text{post}} < -V_\theta, \\ 0, & -V_\theta \leq V_{\text{pre}} - V_{\text{post}} \leq V_\theta, \\ V_{\text{pre}} - V_{\text{post}} - V_\theta, & V_{\text{pre}} - V_{\text{post}} > V_\theta. \end{cases} \quad (2)$$

随着 Δt 的增加, 有效电压 V_E 和有效时间都会减小, 导致有效通量的减小, 所以引发的突触权

图 18 (网络版彩图) Li 等基于其硫化物相变忆阻器的纳秒级 STDP 功能模拟. 小红点是实验数据, 蓝色的线为拟合曲线, 插图为施加的突触前和突触后电刺激和拟合方程^[73]

Figure 18 (Color online) Implementation of STDP with nanosecond time windows in the chalcogenide synapse with the (a) antisymmetric Hebbian learning rule, (b) antisymmetric anti-Hebbian learning rule, (c) symmetric Hebbian learning rule, and (d) symmetric anti-Hebbian learning rule. The red dots indicate the experimental data and the blue lines are the fitted curves. The insets show the pre- and postsynaptic spike schemes and fitting functions^[73] @Copyright 2013 Nature Publishing Group

重的改变也会减小. 通过使用数学模型将其与指数函数拟合, 可以在计算神经科学中将 STDP 简化为

$$\Delta w = Ae^{-\Delta t/\tau} + \Delta w_0. \quad (3)$$

A 和 τ 分别是 STDP 函数的比例因子和时间常数, Δw 是一个常数, 表示突触变化的非联合性部分. 对于反对称 Hebbian 学习规则中的 LTP, $A = 4.56$ 和 $\tau = 114$ ns, 而在生物突触中时间常数为数十毫秒量级. 另外, 可以通过调制电刺激对形状来实现其他 3 个 STDP 形式. 例如, 反对称反 Hebbian 学习规则可以通过以反向的时序应用 Hebbian 学习规则中使用的刺激对来实现 (图 18(b)). 此外, 对称 Hebbian 学习规则 and 对称反 Hebbian 学习规则的学习功能可以表示为 Gauss 函数 (图 18(c) 和图 18(d))

$$\Delta w = A\exp(-\Delta t^2/\tau^2) + \Delta w_0. \quad (4)$$

3.3 经验学习 (learning-experience)

与人脑的经验学习 (learning-experience) 行为相似的“学习 - 遗忘 - 再学习”的过程也已经被研究小组用忆阻器件模拟. 人脑的记忆过程简单来说就是: 信息进入大脑, 形成短时记忆, 短时记忆被再次训练可使之加强, 不训练将会被遗忘, 而经过多次的巩固最终将转化为长时记忆, 即使不再加强也需要很长时间才能被忘记, 本文用示意图简单描述了该过程 (图 19). Liu 等^[54] 用他们的 $\text{EV}(\text{ClO}_4)_2$

图 19 (网络版彩图) 人脑记忆与遗忘功能示意图

Figure 19 (Color online) Demonstration of the memory and forgetting function of human brain

图 20 (网络版彩图) $\text{EV}(\text{ClO}_4)_2/\text{BTPA-F}$ 忆阻器件模拟“学习 - 遗忘 - 再学习”功能^[54]

Figure 20 (Color online) Demonstration of the “learning - forgetting - relearning” process of $\text{EV}(\text{ClO}_4)_2/\text{BTPA-F}$ memristor. (a) The 1st learning stage; (b) the 1st forgetting stage; (c) the 2nd learning stage; (d) the 2nd forgetting stage; (e) the 3rd learning stage^[54] ©Copyright 2016 John Wiley and Sons

/BTPA-F 忆阻器件实现了这一功能, 首先用 40 个连续的脉冲电压刺激该器件 (图 20(a)), 经过 5 分钟的自发衰减过程 (图 20(b)) 达到一个中间态, 随后仅仅施加 9 个脉冲刺激便使该器件的“突触权重”恢复到了第一次学习过程后的状态 (图 20(c)), 可以发现, 接下来的衰减过程使突触权重最终减少到了一个相对于第一次衰减来说较高的值, 并且衰减的速度也变得缓慢 (图 20(d)), 这说明对过去记忆过的信息的再学习可以明显地增加记忆的强度并减缓遗忘的速度, 再接着, 仅施加 4 个脉冲电压便再一次达到了第一次的状态 (图 20(e)), 据此可以猜想重复的训练可以让我们更容易将模糊的记忆重新唤醒, 从而实现类似于 STM 到 LTM 的转换的过程。

Wang 等^[47] 用他们的基于氧离子迁移机制 (电场会引起氧离子迁移从而导致氧离子浓度分布不同进而使得富氧层和缺氧层的厚度发生变化, 最终导致器件导电性的变化) 的 $\alpha\text{-InGaZnO}$ 忆阻器也模拟了经验学习功能 (图 21), 首先用一连串的刺激使“突触权重”增加, 代表“学习”过程, 然后停止刺激, 忆阻器导电性自发衰减代表“遗忘”过程, 最后对器件进行再刺激, 导电性重新升高, 代表了人脑重新学习, 记忆恢复的过程。

3.4 多个忆阻器和其他基本元器件复合模拟的复杂功能

除了单个忆阻器模拟的突触功能之外, 很多小组也使用了多个忆阻器和其他基本元器件 (电阻、电感、电容、晶体管等) 来构建类神经电路, 可模拟一些较为复杂的突触功能, 而在模拟同一种功能时, 相比于单个忆阻器来说有时可以达到更好的效果。比如 2010 年, Pershin 小组^[74] 用 3 个电子神经元和 2 个忆阻器突触构建了神经形态电路, 模拟了联想记忆功能; 2013 年, Pickett 小组^[75] 利用由 Mott 忆阻器和电容器等元器件组成的类神经电路模拟了稳态可塑性的突触缩放功能; 2016 年, Yang 等^[76] 将两个忆阻器反向串联构成一种新的突触电路, 通过理论分析和计算机仿真证明其具有实现 STDP 学

图 21 (网络版彩图) 器件 LTP/STP 和 “learning-experience” 行为和器件工作的动态模型. (a) 连续的刺激下, 突触权重几近线性增长, 模拟 “学习” (记忆) 过程; (b) 导电性的自发衰减, 也就是 STP 的弛豫过程, 类似于人脑记忆的 “遗忘曲线”; (c) 对器件的再刺激, 模拟 “再学习” 过程^[47]

Figure 21 (Color online) The LTP/STP and “learning-experience” behaviours and the dynamic model of device operation. (a) The nearly linear increase in the synaptic weight with consecutive stimuli; (b) the spontaneous decay of the conductivity, i.e., the relaxation process of STP, which is similar to the human-memory “forgetting curve”; (c) re-stimulation process, which is similar to the “relearning” process^[47] ©Copyright 2012 John Wiley and Sons

习规则的能力, 同时证明其忆阻值的变化是线性的, 与单个忆阻器相比, 图像信息的完整性保存良好, 可以更好地应用于图像的存储和输出。

3.4.1 联想性学习 (associative learning)

当一个人提起一位你所认识人的名字, 我们立马会记起他 (她) 的脸或者其他特征, 这是因为我们的大脑有一种被称为联想性学习的功能, 可以让我们将对应于某一事件的一些不同的记忆联系起来。联想性学习需要在刺激与反应之间存在关联, 非联想性学习又被叫做简单学习, 不需要在刺激和反应之间存在明显的关系^[77]。联想性学习这种基本的能力不仅仅局限于人类, 很多动物也具备这种特性, 比如 Pavlov^[78] 著名的经典条件反射实验中, 当狗在吃食物时口中会自动分泌唾液。如果狗在吃食物时伴随着铃声刺激, 反复多次后, 即使狗不吃食物, 听到铃声也会开始分泌唾液。这里食物作为非条件刺激, 分泌唾液为非条件反射, 铃声作为条件刺激, 最后只听到铃声分泌唾液作为条件反射。Pavlov 的实验表明原本不能产生反射的刺激, 由于经常伴随能够出现非条件反射的刺激出现, 在多次反复之后, 这种刺激也能产生反射 (条件反射), 即产生了联想。

Pershin 小组^[74] 用 3 个电子神经元和连接它们的两个忆阻器突触构建了一个神经形态电路 [75, Figure 1], 假设第一个突触前神经元 N_1 在一个特定的视觉刺激下活动 (例如看见食物), 第二个突触前神经元 N_2 在一个听觉刺激下活动 (例如铃声), 突触后神经元的输出信号代表着类似 “分泌唾液” 的活动。

实验开始于这样一个状态 [75, Figure 5]: 第一个突触连接很强 (S_1 阻值很小), 第二个突触连接很弱 (S_2 阻值很大), 在第一个 “探索期” (probing phase) ($t < 9$ s), 向 “看见食物” 的神经元和 “铃声” 神经元施加一组非重叠的刺激, 结果是只有当刺激施加在 “看见食物” 神经元时, “分泌唾液” 神

神经元得到响应, 而向“铃声”神经元施加刺激时没有响应. 这是由于 S_1 阻值很小, 由 N_1 输入而后通过 S_1 的脉冲电压高于 N_3 的阈值电压, 相反, S_2 阻值很大, 由 N_2 输入而后通过 S_2 的脉冲电压低于 N_3 的阈值电压. 这个时期没有忆阻器状态的改变, 因为 S_1 已经达到了它最小的阻值, 它的电阻已经不能继续下降了; 而 S_2 上的电压降还没有达到其转变电压. 在“学习期” (learning phase) ($9\text{ s} < t < 12\text{ s}$), 向两个突触前神经元同时施加刺激电压, 产生一连串脉冲, 来自两个神经元的脉冲不相关, 但是有时会发生重叠 (由于脉冲序列间隔大小的随机性). 在这一时期中, 有时来自“分泌唾液”神经元的向后传播的脉冲 (由于“看见食物”神经元的刺激) 与向前传播的来自“听到声音”神经元的脉冲会发生重叠, 产生了一个较高的电压, 当这个电压通过 S_2 时, 超过了 S_2 的转变电压, 使得 S_2 能够转变到一个较低的电阻, 此时通过 S_2 后到达 N_3 的电压已经超过了其阈值电压, 使其能够产生响应. 这相当于在两种输入刺激间建立了一种联系, 这个回路已经“学会”将“看见食物”和“听到铃声”两种信号联系起来了. 在第二个“探索期” ($t > 12\text{ s}$) 可以很明显看出建立起来的联系——任何一种刺激, 无论是来自于“看到食物”神经元还是“听到声音”神经元, 都可以使“分泌唾液”神经元产生响应, 成功地模拟了联想性学习的功能.

3.4.2 突触缩放 (synaptic scaling)

由于神经回路的复杂性, 如何保持其性能稳定几乎是贯穿神经回路发育和可塑性的各个方面的问题. 例如, 设置兴奋和抑制到适当的水平, 使神经活动可以沿着神经网络传播而不会消失或增长到难以控制的状态^[79]. 而另一种稳定性问题出现在可塑突触回路中, 与学习相关的适应性需要神经网络去检测事件之间的关联程度并将这些反映为突触强度或其他细胞特性的变化^[21], 这种调整的实例中包括长时程增强 (LTP) 和长时程抑制 (LTD)^[21,80], 它们会加强对突触后神经元的去极化有用的突触输入, 而不加强无用的突触输入, 从而增强了大脑中有用的回路. 但是, 被加强的突触在对突触后神经元的去极化过程中变得更有效, 并将在一个突触正反馈循环中继续被加强, 最终将导致神经元活动的饱和^[21,81,82]. 另外由于这种正反馈, 一些虽然在起初与突触后神经元关联性很小的突触前神经刺激信号却可以很容易引起突触后神经元的兴奋, 即使没有环境刺激的引发, 他们也可以被加强^[21]. 如果每个神经元可以感觉到自身的活性, 并且调整其突触权重的大小, 使自身的活动接近一些“设定值”, 那么它们在面对突触权重中基于关联性的变化或者是突触连接的变化时将会表现的很稳定^[81,83]. 十年前, 在新皮层神经元发现了这样一个机制, 被称为突触缩放, 人们观察到它可以全局性地调控所有神经元间的突触权重, 使其向着稳定的方向变化^[84]. 这一发现表明, 神经元的活动是受可以将其稳定在一些设定值的平衡反馈控制的, 目前有很多方式来建立这种负反馈系统, 但必须包括两点: 需要神经元对这个神经活动进行感知, 并且可以调节突触的性质来减小突触权重与设定值的差异^[85,86].

Pickett 小组^[75] 利用由 Mott 忆阻器和电容器等元器件组成的类神经电路 (如图 22) 模拟了稳态可塑性的突触缩放功能, Mott 绝缘体长期以来被认为表现为由电流控制的负微分电阻, 并且在用于制备忆阻器件时有阈值转换的性质 (这种现象是由一种绝缘体-金属的可逆转变造成的, 当有足够的电流通过器件来局部加热某些材料至温度达到其转变温度以上时, 会诱导产生桥来连接两个电极作为导电通道, 从而引发绝缘体-金属转变). 由于向器件中注入足够的能量来加热材料使其达到它的导电状态需要一定的时间, 因此它们被看做是一种电阻取决于激发历史的动态系统. 由之前的讨论可知, 突触的“突触缩放”功能的特点为阈值驱动放电, 具有一定的不应期 (适应期). 该小组内含 Mott 忆阻器的电路恰巧可以很好地模拟这些特性.

如图 22^[72] 所示高于阈值电压的输入 (0.3 V , $10\text{ }\mu\text{s}$) 使回路产生了 0.33 V 的输出电压, 而低于阈值电压的输入 (0.2 V , $10\text{ }\mu\text{s}$) 则仅仅生了 0.028 V 的输出电压, 模拟阈值转换特点. 而由于两条通路需

图 22 (网络版彩图) (a) Pickett 小组构造的类神经电路: 两个 Mott 忆阻器 M_1 和 M_2 , 两个平行电容器 (C_1 和 C_2) 及电压源和输出装置; (b) a —— 超过阈值的电压输入 0.3 V, b —— 输入电压 a 作用下的输出电压 0.33 V, c —— 低于阈值的电压输入 0.2 V, d —— 输入电压 c 作用下的输出电压 28 mV [75]

Figure 22 (Color online) (a) The neural circuits of Pickett: two Mott memristors M_1 and M_2 , with a characteristic parallel capacitance (C_1 and C_2 , respectively), voltage sources and output device, (b) a — super-threshold input 0.3 V, b — super-threshold output 0.33 V, c — sub-threshold input 0.2 V, d — sub-threshold output 28 mV [75] ©Copyright 2013 Nature Publishing Group

要在下一个动作电位产生之前完成一个充放电的循环, 因此在动作电位刚产生时会对外界扰动和噪声表现稳定状态, 这模拟了神经缩放的不应期特点.

3.5 非联想性学习 (nonassociative learning)

如上文所说, 联想性学习需要生物体将事件或刺激联系起来, 非联想性学习则不需要这种联系, 但非联想性学习也是大脑中一种非常重要的功能, 关系到生物体的自学习行为和对环境的适应行为, 属于复杂的神经形态功能. 值得一提的是, 近期, Yang 等^[87]报道了利用一个三端器件成功模拟非联想性学习的工作, 实现了用单个器件模拟复杂的功能, 为未来利用电子器件模拟更复杂的功能提供了新的思路.

非联想性学习包括习惯化和敏感化两种行为, 习惯化行为是指生物体对重复出现的弱刺激的响应逐渐减弱, 习惯化之后生物体的响应会随着时间自发地恢复, 当出现一个异常的刺激时生物体的响应也会恢复 (习惯解除), 这说明生物体即使产生了习惯, 当受到一个突发的刺激时还是有能力做出及时的反应; 敏感化行为则是指有害刺激或者是重复频率较快的刺激引起的响应增强, 它不仅推动了突触的易化, 也影响了神经调节物质 (如 5-HT) 的释放. 在敏感化行为中, 感觉神经元 (SN) 和运动神经元 (MN) 之间的中间神经元 (IN) 扮演着重要的角色, 它可以激发和释放神经调节物质从而改变突触权重并激发运动神经元对神经刺激作出响应.

Yang 等^[87]的忆阻器件是由结构为 W/HfO_x/Ti 的忆阻器和通过标准 0.13 μm 逻辑工艺制备的 NMOSFET 混合集成的, HfO_x 基忆阻器承担着 SN 和 MN 之间的突触的功能, 模拟传输信号的调制, NMOS 晶体管被当做 IN 来模拟神经调节物质的调节功能. 图 23^[87](b) 为 100 个连续的弱脉冲电压刺激 (图 23(a), 幅值 -1 V, 持续时间 1 ms, 脉冲间隔 30 ms) 下器件逐渐减弱的响应电流, 说明该人工突触可模拟生物体的习惯化行为 —— 对无害的, 不强烈的刺激逐渐熟悉, 不再做出相应的响应; 而当一个

图 23 (网络版彩图) (a),(b) Yang 等在其电子突触中模拟的习惯化行为. (a) 输入脉冲序列的幅值、时间间隔和持续时间; (b) 器件在该脉冲刺激下的响应电流. (c),(d) 习惯化行为的频率依赖性的模拟. (c) 为器件在不同脉冲时间间隔下响应电流的变化; (d) 为不同脉冲时间间隔下响应电流的增长 (ΔI) 随脉冲数量的变化关系^[87]

Figure 23 (Color online) (a),(b) The implementation of habituation. (a) Schematic of stimulus trains used for this measurement; (b) measured device current changes under the application of stimulus trains. (c),(d) The dependence of the habituation behavioural response on stimulation rate. (c) The variation of recorded currents after every 10 stimulation pulses at four different pulse interval; (d) current increase (ΔI) plotted against pulse number under different pulse interval conditions^[87] ©Copyright 2016 Royal Society of Chemistry

新的刺激 (幅值 +0.45 V, 持续时间 1 ms, 脉冲间隔 30 ms) 施加于这个已经习惯化的电子突触时, 又出现了一个增强的响应, 说明该电子突触在习惯化之后依然有产生响应的能力. 此外, 该小组还模拟了频率依赖性的习惯化行为, 如图 23(c) 和 (d), 可以看出, 脉冲的时间间隔越短, 响应电流的变化越大, 即习惯化行为越明显.

如上文所述, 在生物体中敏感化行为不仅基于突触的易化, 而且与 IN 释放的神经调节物质 (如 5-HT) 相关, 为了模拟敏感化行为, Yang 等^[87] 应用 NMOS 晶体管作为中间神经元来模拟神经调节物质的调节功能. 晶体管的栅极电压被设定为一系列不同的值, 从而提供不同的电流, 也就是说忆阻器的电导率不仅与脉冲刺激有关, 还依赖于栅极电压的值. 因此, 栅极电压对忆阻器电导率的调节作用类似于敏感化行为中神经调节物质 (5-HT) 的调节作用, 给晶体管施加一个大的栅极电压类似于激活 IN, 从而释放出高浓度的 5-HT, 而给晶体管施加一个低的阈值电压将模拟休眠的 IN, 从而很难释放出 5-HT 来激发运动神经元. 所以依赖于 5-HT 浓度的敏感化行为的程度可以被施加在 NMOS 上的栅极电压调制. 图 24^[87](a) 是用 NMOS 模拟 IN 的过程, 当栅极电压从 1.5 V 增加到 2.7 V 时 (刺激幅值 0.6 V, 刺激间隔 30 ms, 持续时间 1 ms), 可以明显的看到在电压为 1.5 V 时, 电流增长很少, 没有敏感化现象, 相反当电压增长到 2.7 V 时, 电流增长很显著, 说明电子突触易化, 表现出敏感化行为. 图 24(b) 显示出两种不同形式的敏感化行为——有害刺激下的敏感化和适中但频率较快刺激下的敏感化行为. 橘色的线表示第一种形式的敏感化行为, 幅值为 0.8 V 的脉冲刺激代表有害的刺激, 脉冲一施加, 立刻出现明显增加的响应. 绿色的线代表第二种敏感化行为, 在重复的脉冲序列 (0.5 V) 施加之

图 24 (网络版彩图) Yang 等在其电子突触中模拟的敏感化行为. (a) NMOS 晶体管的调节作用, 不同栅极电压下的电流用不同颜色表示; (b) 两种不同刺激形式下的电流变化 [87]

Figure 24 (Color online) The implementation of sensitization. (a) The modulatory effect of NMOS transistor, the current measured under every gate voltage was represented by different colours; (b) two forms of measured currents changed against the repetition of two different stimulation trains respectively [87] @Copyright 2016 Royal Society of Chemistry

后, 可以看到一个延迟的响应增强. 这两种形式均在前一部分增强, 后达到饱和, 说明其响应特性均在初期比较显著, 随着刺激过程的继续只会加固并达到饱和, 与生物现象非常一致.

因此在这个工作中, 只需要单个突触器件就可以达到生物体中需要多个突触才可以实现的非联想性学习行为, 在实现人工神经网络过程中可以有效地减小硬件的成本.

3.6 小结

上文中介绍了用离子迁移型忆阻器、相变忆阻器、导电桥忆阻器等不同机理的器件模拟的突触功能, 相比而言, 使用基于氧化物的离子型忆阻器模拟突触功能的例子较多, 这是由于它们能耗较低, 尺寸较小并具有和 CMOS 技术的兼容性, 与 CMOS 兼容是很有利的. 通过在 CMOS 电路中施加仿真的动作电位可以较容易地构造神经元, 可用于大规模的模拟工作 [88]. 近几年, 有研究者提出了“第二代迁移型忆阻器”——利用热耗散或者迁移率衰减的机制来模拟 STDP 功能, 其特点是重复度高和简易性, 但是它们的精确性和可模拟突触功能的多样性受到了限制 [49].

而在相变忆阻器中, 神经元膜电位的改变可以用硫化物材料的相变来表示, 这种非晶态至晶态的转变很快, 可以在纳秒级的时间内完成, 且器件的可测量性低至纳米尺度 [89], 可以用来制备高密度忆阻神经-突触阵列. 相变神经元运行的高速度、低能量两个特点在新兴应用中尤其重要, 例如事件依赖性的感觉信息的处理、低功耗感知决策和不确定条件下的概率推理 [90] 等. 但是与通用的基于放电刺激的神经元模型、CMOS 神经元电路和用于实现神经元网络的更高级的平台相比, 相变神经元的功能具有一定的局限性: 由于大多数随机性质直接来自结晶的物理性质, 故随机响应、神经元参数和膜电位动力学可以按最小电路要求进行调整的程度受到限制. 特别地, 高维度参数适应和平衡以及诸如(非线性)泄漏之类的比较快的复现动力学可能需要进一步的专用逻辑和电子部件. 而且, 由于器件的易变性和纳米尺度的物理效应, 极小技术节点上的实现可能会呈现出固定模式以及时间噪声的增加, 这对于必须严格控制随机性的算法可能是不利的 [91].

导电桥忆阻器中基于金属桥形成和消失的电阻转变机制表现出了比较独特的行为, 比如除了常规的忆阻操作之外, 还拥有量化电导的多态转变. 不像一些严格的非易失性电阻转变器件, 原子开关表现出时间依赖性的导电行为, 因而可以模拟短时程(易失性)记忆和长时程(非易失性)记忆 [53]. 其最大的优势是可以制备原子级别的器件, 大大缩小器件尺寸. 当然导电桥忆阻器也有一些缺点, 比如导电桥

I-V 曲线变化较为粗糙, 可以得到的中间态太少, 导电态不易控制等等.

尽管到目前为止还没有一个明确的结论, 但总的来说, 性能较好的忆阻器应具有以下优点: 首先, 简单的制备工艺, 这是未来制备基于忆阻器的高密度设备必不可少的条件; 第二, 较低的操作电压和操作电流, 这不仅可以减少能耗, 还可以防止器件的损坏; 第三, 优异的抗饱和及抗干扰特性, 良好的容错性; 第四, 器件应具备一定的稳定性和可靠性; 在选择忆阻器模拟具体的突触功能时, 还需考虑器件的电阻变化范围、变化平滑度等指标; 当然, 生物兼容性也是一个多功能, 应用广泛的忆阻器的先决条件.

4 结论与展望

忆阻器依靠其对于所加载历史的记忆功能展现出了许多应用前景: 高密度交叉存储阵列^[92,93], CMOS 电子的非易失性可重构逻辑单元^[94,95], 可编程模拟存储元件^[96], 自适应学习的神经形态突触设备^[96~98]等, 而在这其中, 我们认为忆阻器作为突触在自适应学习的神经网络中表现出巨大的魅力, 因为忆阻器的导电特性可以通过控制流经它的电荷流量来改变, 这与人脑突触有着很大的相似之处. 人脑神经系统依靠多种突触可塑性使得人类的记忆过程充满着无穷的魅力, 幸运的是这种生理过程在忆阻器中逐渐得到了重现: STP/LTP 及其转变, PPD, PPF, PTP, SRDP, STDP, learning-experience, associative learning, nonassociative learning, synaptic scaling 等突触可塑性都可以用本文所综述的不同的器件和方法来模拟, 这说明我们完全可以根据突触可塑性中的分子机制来尝试用忆阻器模拟生物突触信息传递的功能. 在未来可以将忆阻器与现有电路有效连接来增强现有电子系统的类脑特征, 从而促进新一代自适应超高密度智能机的产生, 甚至将忆阻器与其他功能的神经形态器件集成来制备功能全面的大脑芯片. 然而尽管忆阻器的优点近年来被越来越多的挖掘, 但是在研究中还存在很多问题, 例如: 忆阻器的阻变机理不够清楚, 阻变性能不够稳定^[99]. 在过去的一些工作中, 对于同一种器件结构, 不同的研究小组甚至提出了不同的阻变机理, 这种现象很有可能是由制备工艺的不同造成的, 给研究人员带来了很大的困惑, 因此未来还需要更多系统的工作来完整清晰地解释阻变机理^[100]; 第二, 对于非易失性存储, 对忆阻器电阻的转变速度的要求是非常严格的, 并不是所有的忆阻器件都可以达到这个要求, 而对于神经形态方面的应用, 需要发现更多的阻值连续转变的忆阻器^[101]; 另一个严峻的挑战是如何将拥有各种不同性质的忆阻器件集成为一个存储单元来达到实际应用的要求, 如何消除连续的转变周期中单个存储单元的参数变化, 及同一个芯片上不同存储单元之间的变化^[100]; 此外, 除了本文所提到的突触可塑性外, 还有很多重要的突触可塑性 (如突触再可塑性 (metaplasticity), 一种对突触活动的方向和大小有长期性影响的突触可塑性^[102,103]) 的机理还没有被完全了解清楚, 它们的模拟方法还有待研究. 如果上述的问题和挑战能够被克服, 相信忆阻器在未来会有广泛的应用.

参考文献

- 1 Jo S H, Chang T, Ebong I, et al. Nanoscale memristor device as synapse in neuromorphic systems. *Nano Lett*, 2010, 10: 1297–1301
- 2 Smith L S. Implementing neural models in silicon. In: *Handbook of Nature-Inspired and Innovative Computing*. Berlin: Springer, 2006, 433–475
- 3 Izhikevich E M, Edelman G M. Large-scale model of mammalian thalamocortical systems. *Proc Natl Acad Sci*, 2008, 105: 3593–3598
- 4 Indiveri G, Chicca E, Douglas R. A VLSI array of low-power spiking neurons and bistable synapses with spike-timing dependent plasticity. *IEEE Trans Neural Netw*, 2006, 17: 211–221
- 5 Chua L. Memristor-the missing circuit element. *IEEE Trans Circuit Theory*, 1971, 18: 507–519

- 6 Qi J, Li C, Huang T. Stability of delayed memristive neural networks with time-varying impulses. *Cogn Neurodyn*, 2014, 8: 429–436
- 7 Tang Y, Nyengaard J R, de Groot D M, et al. Total regional and global number of synapses in the human brain neocortex. *Synapse*, 2001, 41: 258–273
- 8 Alibart F, Pleutin S, Guérin D, et al. An organic nanoparticle transistor behaving as a biological spiking synapse. *Adv Funct Mater*, 2010, 20: 330–337
- 9 Lai Q X, Zhang L, Li Z Y, et al. Ionic/Electronic hybrid materials integrated in a synaptic transistor with signal processing and learning functions. *Adv Mater*, 2010, 22: 2448–2453
- 10 Ohno T, Hasegawa T, Tsuruoka T, et al. Short-term plasticity and long-term potentiation mimicked in single inorganic synapses. *Nat Mater*, 2011, 10: 591–595
- 11 Josberger E E, Deng Y X, Sun W, et al. Two-terminal protonic devices with synaptic-like short-term depression and device memory. *Adv Mater*, 2014, 26: 4986–4990
- 12 Rachmuth G, Poon C S. Transistor analogs of emergent ionic-neuronal dynamics. *Hfsp Journal*, 2008, 2: 156–166
- 13 Liu Y H, Zhu L Q, Feng P, et al. Freestanding artificial synapses based on laterally proton-coupled transistors on chitosan membranes. *Adv Mater*, 2015, 27: 5599–5604
- 14 Lont J B, Guggenbuhl W. Analog CMOS implementation of a multilayer perceptron with nonlinear synapses. *IEEE Trans Neural Netw*, 1992, 3: 457–465
- 15 He W, Huang K J, Ning N, et al. Enabling an integrated rate-temporal learning scheme on memristor. *Sci Rep*, 2014, 4: 4755
- 16 Li Y, Zhong Y P, Zhang J J, et al. Activity-dependent synaptic plasticity of a chalcogenide electronic synapse for neuromorphic systems. *Sci Rep*, 2014, 4: 4906
- 17 Linares-Barranco B, Serrano-Gotarredona T. Memristance can explain spike-time-dependent-plasticity in neural synapses. *Nat Precedings*, 2009, 1
- 18 Perea G, Navarrete M, Araque A. Tripartite synapses: astrocytes process and control synaptic information. *Trends Neurosci*, 2009, 32: 421–431
- 19 Kornijcuk V, Kavehei O, Lim H, et al. Multiprotocol-induced plasticity in artificial synapses. *Nanoscale*, 2014, 6: 15151–15160
- 20 Chang T, Jo S H, Lu W. Short-term memory to long-term memory transition in a nanoscale memristor. *ACS Nano*, 2011, 5: 7669–7676
- 21 Abbott L F, Nelson S B. Synaptic plasticity: taming the beast. *Nat Neurosci*, 2000, 3: 1178–1183
- 22 Bi G Q, Poo M M. Synaptic modifications in cultured hippocampal neurons: dependence on spike timing, synaptic strength, and postsynaptic cell type. *Neurosci*, 1998, 18: 10464–10472
- 23 Hebb D O. The organization of behavior: a neuropsychological approach. *American J Psychol*, 1949, 63: 633
- 24 Wixted J T, Ebbesen E B. On the form of forgetting. *Psychol Sci*, 1991, 2: 409–415
- 25 Douglas R, Mahowald M, Mead C. Neuromorphic analogue VLSI. *Annu Rev Neurosci*, 1995, 18: 255–281
- 26 Li H T. Study on material selection and behavior mechanism of membrane membrane. Dissertation for Master's Degree. Nanjing: Nanjing University, 2011 [李海涛. 氧化物薄膜忆阻器的材料选择与行为机制研究. 硕士学位论文. 南京: 南京大学, 2011]
- 27 Strukov D B, Snider G S, Stewart D R, et al. The missing memristor found. *Nature*, 2008, 453: 80–83
- 28 Cantley K D, Subramaniam A, Stiegler H J, et al. Hebbian learning in spiking neural networks with nanocrystalline silicon TFTs and memristive synapses. *IEEE Trans Nanotechnol*, 2011, 10: 1066–1073
- 29 Kim K H, Gaba S, Wheeler D, et al. A functional hybrid memristor crossbar-array/CMOS system for data storage and neuromorphic applications. *Nano Lett*, 2012, 12: 389–395
- 30 Chen L, Li C D, Wang X, et al. Associate learning and correcting in a memristive neural network. *Neural Comput Appl*, 2013, 22: 1071–1076
- 31 Guo X, Tan Z H, Yin X B, et al. Memristive ionic devices for information storage, logic operations and brain neural function. *Chin Sci Bull*, 2014, 59: 2926–2936 [郭新, 谈征华, 尹雪兵, 等. 用于信息存储, 逻辑运算和大脑神经功能模拟的忆阻型离子器件. *科学通报*, 2014, 59: 2926–2936]
- 32 Zhang C, Tai Y T, Shang J, et al. Synaptic plasticity and learning behaviours in flexible artificial synapse based on polymer/viologen system. *J Mater Chem*, 2016, 4: 3217–3223
- 33 Citri A, Malenka R C. Synaptic plasticity: multiple forms, functions, and mechanisms. *Neuropsychopharmacol*, 2008, 33: 18–41
- 34 Zucker R S. Short-term synaptic plasticity. *Annu Rev Neurosci*, 1989, 12: 13–31
- 35 Zucker R S. Calcium and activity-dependent synaptic plasticity. *Curr Opin Neurobiol*, 1999, 9: 305–313
- 36 Bliss T V, L Mo T. Long-lasting potentiation of synaptic transmission in the dentate area of the anaesthetized rabbit following stimulation of the perforant path. *J Psychol*, 1973, 232: 331–356
- 37 Larkman A U, Jack J J B. Synaptic plasticity: hippocampal LTP. *Curr Opin Neurobiol*, 1995, 5: 324–334

- 38 Katz B, Miledi R. The role of calcium in neuromuscular facilitation. *J Psychol*, 1968, 195: 481–492
- 39 Kandel E R. The molecular biology of memory storage: a dialogue between genes and synapses. *Science*, 2001, 294: 1030–1038
- 40 Dobrunz L E, Stevens C F. Heterogeneity of release probability, facilitation, and depletion at central synapses. *Neuron*, 1997, 18: 995–1008
- 41 Bao J X, Kandel E R, Hawkins R D. Involvement of pre- and postsynaptic mechanisms in posttetanic potentiation at Aplysia synapses. *Science*, 1997, 275: 969–973
- 42 Martin S, Grimwood P, Morris R. Synaptic plasticity and memory: an evaluation of the hypothesis. *Annu Rev Neurosci*, 2000, 23: 649–711
- 43 Whitlock J R, Heynen A J, Shuler M G, et al. Learning induces long-term potentiation in the hippocampus. *Science*, 2006, 313: 1093–1097
- 44 Seo K, Kim I, Jung S, et al. Analog memory and spike-timing-dependent plasticity characteristics of a nanoscale titanium oxide bilayer resistive switching device. *Nanotechnology*, 2011, 22: 223–254
- 45 Zhang J, Sun H, Li Y, et al. AgInSbTe memristor with gradual resistance tuning. *Appl Phys Lett*, 2013, 102: 183513
- 46 Li S, Zeng F, Chen C, et al. Synaptic plasticity and learning behaviours mimicked through Ag interface movement in an Ag/conducting polymer/Ta memristive system. *J Mater Chem*, 2013, 1: 5292–5298
- 47 Wang Z Q, Xu H Y, Li X H, et al. Synaptic learning and memory functions achieved using oxygen ion migration/diffusion in an amorphous InGaZnO memristor. *Adv Funct Mater*, 2012, 22: 2759–2765
- 48 Hu S, Liu Y, Chen T, et al. Emulating the paired-pulse facilitation of a biological synapse with a NiOx-based memristor. *Appl Phys Lett*, 2013, 102: 183510
- 49 Wang Z, Joshi S, Savel'ev S E, et al. Memristors with diffusive dynamics as synaptic emulators for neuromorphic computing. *Nat Mater*, 2017, 16: 101–108
- 50 Yang J J, Pickett M D, Li X M, et al. Memristive switching mechanism for metal/oxide/metal nanodevices. *Nat Nanotechnol*, 2008, 3: 429–433
- 51 Chang T, Jo S H, Kim K H, et al. Synaptic behaviors and modeling of a metal oxide memristive device. *Appl Phys A: Mater Sci Process*, 2011, 102: 857–863
- 52 Lamprecht R, LeDoux J. Structural plasticity and memory. *Nat Rev Neurosci*, 2004, 5: 45–54
- 53 Nayak A, Ohno T, Tsuruoka T, et al. Controlling the synaptic plasticity of a Cu2S gap-type atomic switch. *Adv Funct Mater*, 2012, 22: 3606–3613
- 54 Liu G, Wang C, Zhang W, et al. Organic biomimicking memristor for information storage and processing applications. *Adv Electron Mater*, 2016, 2: 1500298
- 55 Shirota Y. Photo and electroactive amorphous molecular materials molecular design, syntheses, reactions, properties, and applications. *J Mater Chem*, 2005, 15: 75–93
- 56 Song Y, Di C A, Yang X, et al. A cyclic triphenylamine dimer for organic field-effect transistors with high performance. *J Am Chem Soc*, 2006, 128: 15940–15941
- 57 Kumar R, Pillai R G, Pekas N, et al. Spatially resolved raman spectroelectrochemistry of solid-state polythiophene/viologen memory devices. *J Am Chem Soc*, 2012, 134: 14869–14876
- 58 Mortimer R J, Dyer A L, Reynolds J R. Electrochromic organic and polymeric materials for display applications. *Displays*, 2006, 27: 2–18
- 59 Han B, Li Z, Wandlowski T, et al. Potential-induced redox switching in viologen self-assembled monolayers: an ATR-SEIRAS approach. *J Phy Chem C*, 2007, 111: 18355–18363
- 60 Chen Y, Liu G, Wang C, et al. Polymer memristor for information storage and neuromorphic application. *Mater Horiz*, 2014, 1: 489–506
- 61 Erokhin V, Berzina T, Gorshkov K, et al. Stochastic hybrid 3D matrix: learning and adaptation of electrical properties. *J Mater Chem*, 2012, 22: 22881–22887
- 62 Wang C, Liu G, Chen Y, et al. Synthesis and nonvolatile memristive switching effect of a donor-acceptor structured oligomer. *J Mater Chem C*, 2015, 3: 664–673
- 63 Wen G, Ren Z, Sun D, et al. Synthesis of alternating copolysiloxane with terthiophene and perylenediimide derivative pendants for involatile WORM memory device. *Adv Funct Mater*, 2014, 24: 3446–3455
- 64 Sun D, Yang Z, Ren Z, et al. Oligosiloxane functionalized with pendant (1,3-Bis(9-carbazolyl)benzene) (mCP) for solution-processed organic electronics. *Chem Eur J*, 2014, 20: 16233–16241
- 65 Rao R P, Sejnowski T J. Spike-timing-dependent Hebbian plasticity as temporal difference learning. *Neural Comput*, 2001, 13: 2221–2237
- 66 Gerstner W, Ritz R, Hemmen J L V. Why spikes? Hebbian learning and retrieval of time-resolved excitation patterns. *Biol Cybern*, 1993, 69: 503–515
- 67 Saudargiene A, Porr B, Wörgötter F. How the shape of pre-and postsynaptic signals can influence STDP: a biophysical model. *Neural Comput*, 2004, 16: 595–625

- 68 Masquelier T, Guyonneau R, Thorpe S J. Spike timing dependent plasticity finds the start of repeating patterns in continuous spike trains. *Plos One*, 2008, 3: 1377
- 69 Masquelier T, Guyonneau R, Thorpe S J. Competitive STDP-based spike pattern learning. *Neural Comput*, 2009, 21: 1259–1276
- 70 Young J M, Waleńczyk W J, Wang C, et al. Cortical reorganization consistent with spike timing-but not correlation-dependent plasticity. *Nat Neurosci*, 2007, 10: 887–895
- 71 Finelli L A, Haney S, Bazhenov M, et al. Synaptic learning rules and sparse coding in a model sensory system. *Plos Comput Biol*, 2008, 4: 1000062
- 72 Bi G Q, Poo M M. Synaptic modification by correlated activity: Hebb's postulate revisited. *Annu Rev Neurosci*, 2001, 24: 139–166
- 73 Li Y, Zhong Y, Xu L, et al. Ultrafast synaptic events in a chalcogenide memristor. *Sci Rep*, 2013, 3: 1619
- 74 Pershin Y V, Diventra M. Experimental demonstration of associative memory with memristive neural networks. *Neural Netw*, 2010, 23: 881–886
- 75 Pickett M D, Medeiros-Ribeiro G, Williams R S. A scalable neuristor built with Mott memristors. *Nat Mater*, 2013, 12: 114–117
- 76 Yang J, Wang L D, Duan S K. An anti-series memristive synapse circuit design and its application. *Sci Sin Inform*, 2016, 46: 391–403 [杨玖, 王丽丹, 段书凯. 一种反向串联忆阻突触电路的设计及应用. *中国科学: 信息科学*, 2016, 46: 391–403]
- 77 Anderson J R. *Language, Memory and Thought*. Hillsdale: LEA, 1976
- 78 Pavlov I P, Anrep G V. *Conditioned Reflexes*. Mineola: Dover Publications, 2003
- 79 Turrigiano G G, Nelson S B. Homeostatic plasticity in the developing nervous system. *Nat Rev Neurosci*, 2004, 5: 97–107
- 80 Malenka R C, Bear M F. LTP and LTD: an embarrassment of riches. *Neuron*, 2004, 44: 21–25
- 81 Miller K D. Synaptic economics: competition and cooperation in synaptic plasticity. *Neuron*, 1996, 17: 371–374
- 82 Miller K D, Mackay D J C. The role of constraints in hebbian learning. *Neural Comput*, 1994, 6: 100–126
- 83 Sullivan T J, de Sa V R. Homeostatic synaptic scaling in self-organizing maps. *Neural Netw*, 2006, 19: 734–743
- 84 Turrigiano G G, Leslie K R, Desai N S, et al. Activity-dependent scaling of quantal amplitude in neocortical neurons. *Nature*, 1998, 391: 892–896
- 85 Davis G W. Homeostatic control of neural activity: from phenomenology to molecular design. *Annu Rev Neurosci*, 2006, 29: 307–323
- 86 Turrigiano G G. The self-tuning neuron: synaptic scaling of excitatory synapses. *Cell*, 2008, 135: 422–435
- 87 Yang X, Fang Y, Yu Z, et al. Nonassociative learning implementation by a single memristor-based multi-terminal synaptic device. *Nanoscale*, 2016, 8: 18897–18904
- 88 Yu S, Gao B, Fang Z, et al. A low energy oxide-based electronic synaptic device for neuromorphic visual systems with tolerance to device variation. *Adv Mater*, 2013, 25: 1774–1779
- 89 Xiong F, Liao A D, Esterada D, et al. Low-power switching of phase-change materials with carbon nanotube electrodes. *Science*, 2011, 332: 568–570
- 90 Pecevski D, Buesing L, Maass W. Probabilistic inference in general graphical models through sampling in stochastic networks of spiking neurons. *Plos Comput Biol*, 2011, 7: 1002294
- 91 Tuma T, Pantazi A, Le G M, et al. Stochastic phase-change neurons. *Nat Nanotechnol*, 2016, 11: 693–699
- 92 Jo S H, Kim K H, Lu W. High-density crossbar arrays based on a Si memristive system. *Nano Lett*, 2009, 9: 870–874
- 93 Kim K H, Kang B S, Lee M J, et al. Multilevel programmable oxide diode for cross-point memory by electrical-pulse-induced resistance change. *IEEE Electron Device Lett*, 2009, 30: 1036–1038
- 94 Xia Q, Robinett W, Cumbie M W, et al. Memristor-CMOS hybrid integrated circuits for reconfigurable logic. *Nano Lett*, 2009, 9: 3640–3645
- 95 Robinett W, Pickett M, Borghetti J, et al. A memristor-based nonvolatile latch circuit. *Nanotechnol*, 2010, 21: 235203
- 96 Pershin Y V, Ventra M D. Practical approach to programmable analog circuits with memristors. *IEEE Trans Circ Syst I: Regul Papers*, 2010, 57: 1857–1864
- 97 Berzina T, Smerieri A, Bernabò M, et al. Optimization of an organic memristor as an adaptive memory element. *J Appl Phys*, 2009, 105: 124515
- 98 Choi H, Jung H, Lee J, et al. An electrically modifiable synapse array of resistive switching memory. *Nanotechnol*, 2009, 20: 345201
- 99 Liu D Q, Cheng H F, Zhu X, et al. Progress in memristor and its resistance mechanism. *Acta Phys Sin*, 2014, 18: 8–20 [刘东青, 程海峰, 朱玄, 等. 忆阻器及其阻变机理研究进展. *物理学报*, 2014, 18: 8–20]
- 100 Pan F, Gao S, Chen C, et al. Recent progress in resistive random access memories: materials, switching mechanisms, and performance. *Mater Sci Eng R Rep*, 2014, 83: 51–59

- 101 Hu S, Wu S, Jia W, et al. Review of nanostructured resistive switching memristor and its applications. *Nano Sci Nano Technol Lett*, 2014, 6: 729–757
- 102 Abraham W C, Bear M F. Metaplasticity: the plasticity of synaptic plasticity. *Trends Neurosci*, 1996, 19: 126–130
- 103 Bear M F, Cooper L N, Ebner F F. A physiological-basis for a theory of synapse modification. *Science*, 1987, 237: 42–48

Recent progress in memristors for stimulating synaptic plasticity

Chenxi ZHANG^{1,2,3†}, Yan CHEN^{1,2,3†}, Mingdong YI^{1,2,3*}, Ying ZHU^{1,2,3}, Tengfei LI^{1,2,3}, Lutao LIU^{1,2,3}, Laiyuan WANG^{1,2,3*}, Linghai XIE^{1,2,3} & Wei HUANG^{1,2,3,4,5*}

1. Key Laboratory for Organic Electronics and Information Displays, Nanjing 210023, China;
2. Institute of Advanced Materials (IAM), Nanjing University of Posts & Telecommunications (NUPT), Nanjing 210023, China;
3. Jiangsu National Synergetic Innovation Center for Advanced Materials (SICAM), Nanjing 210023, China;
4. Institute of Advanced Materials (IAM), Nanjing Tech University (NanjingTech), Nanjing 211816, China;
5. Jiangsu National Key Laboratory of Flexible Electronics (KLOFE) & Synergetic Innovation Center for Advanced Materials (SICAM), Nanjing 211816, China

* Corresponding author. E-mail: iammdyi@njupt.edu.cn, iamlaiyuanwang@126.com, iamwhuang@njupt.edu.cn

† Equal contribution

Abstract With the rapid expansion of data information, modern computers based on the von Neumann architecture are facing severe challenges. Intelligent computers that can learn, store, and process information flexibly like a human brain will be the direction and goal of computers' development. Brain controls almost all the complex life activities of human beings, and information transmission between cerebral neurons relies on the structure called "synapse", whose outstanding property — synaptic plasticity— is thought to be an important molecular basis of learning and memory. Therefore, it is widely believed that emulation of synapse and synaptic plasticity is the first step to realize effective artificial neural networks. Owing to the birth and development of the fourth fundamental passive circuit elements, memristors, which have unique nonlinear synaptic electrical transmission characteristics, it is possible to achieve this goal. Thus, over the past few years, a great deal of efforts have been made in mimicking synapse functions through memristors. In this review, recent simulations of synaptic plasticity using different memristor devices and various methods are comprehensively summarized, including short-term plasticity (paired-pulse depression, paired-pulse facilitation, and post-tetanic potentiation), long-term plasticity, spiking-rate-dependent plasticity, spiking-timing-dependent plasticity, learning experience, associative memory, and synaptic scaling. Finally, the current problems faced in the research and the development prospects in this area are briefly discussed.

Keywords memristor, synapse, synaptic plasticity, artificial neural networks

Mingdong YI was born in 1979. He received his Ph.D. degree from Changchun Institute of Applied Chemistry, Chinese Academy of Sciences in 2008. He then became a postdoctoral fellow in the group of professor Tupei Chen at Nanyang Technological University, Singapore. He joined the Key Laboratory for Organic Electronics & Information Displays (KLOEID) and Institute of Advanced Materials (IAM),

Nanjing University of Posts & Telecommunications (NUPT) in 2010. His research interests include organic electronics such as memories and organic thin-film transistors.

Wei HUANG was born in 1965. He received his Ph.D. degree from Peking University in 1992. In 1993, he began his postdoctoral research in National University of Singapore. In 2001, he was appointed as a chair professor with Fudan University, where he founded and chaired the Institute of Advanced Materials. In 2006, he was appointed vice president of Nanjing University of Posts and Telecommunications. Now, he is

the president of Northwestern Polytechnical University. He was elected to the Chinese Academy of Sciences in 2011. His research interests include organic/plastic materials and devices, nanomaterials, and nanotechnology.