自组装神经形态　　网络在 Ag-hBN平台中的自组织临界性

作者

Ankit Rao[1], Sooraj Sanjay[1], Majid Ahmadi[2], Anirudh Venugopalrao[1], Navakanta Bhat,[1] Bart Kooi[2,3], Srinivasan Raghavan[1], Pavan Nukala[1]*

所属机构

[1]纳米科学与工程中心，印度科学研究所，班加罗尔 560012, [2]泽尔尼克先进材料研究所，格罗宁根大学，格罗宁根，荷兰, [3]CogniGron中心，格罗宁根大学，格罗宁根，9747 AG，荷兰。通讯作者。* 电子邮件：pnukala@iisc.ac.in

关键词：六方氮化硼、雪崩动力学、自组织临界性、神经形态网络

摘要

具有类脑行为的网络和系统能够以极低的功耗，从内在含噪且非结构化的数据中分析信息。这些特性源于大脑及其神经元网络的临界特性和复杂互连结构。我们展示了一种由多层六方氮化硼（hBN）薄膜与银（Ag）电极接触构成的系统，该系统能够独特地承载两种不同的自组装网络，且这两种网络均处于自组织临界性（SOC）状态。该系统呈现高阻态（HRS）与低阻态（LRS）之间的双极性电阻开关。在高阻态下，银团簇（节点）插层于hBN的范德华间隙中，形成隧道结网络；而低阻态则包含银细丝网络。这两种状态下的时间雪崩动力学均表现出幂律标度、长程时间相关性和自组织临界性。通过以电压为控制参数，可以在这两种网络之间进行调节。我们首次在单一的、兼容互补金属氧化物半导体（CMOS）的二维材料平台中实现了不同的类神经元网络。

1. 引言

大脑在分类和模式识别等任务中展现出的高效计算能力，启发人们探索并实现新型计算架构，以满足能效计算和并行计算的需求。[1–3] 神经形态硬件架构（如交叉阵列忆阻器阵列）采用自下而上的方式组装，其中阵列的各个独立元件模拟神经系统模块化单元（即突触或神经元）的功能。[4–7] 利用这些高度有序的架构，很难再现生物大脑的复杂性；生物大脑是由~10^{11} 神经元和~10^{15} 突触（在人类中）构成的自组装网络。[8] 这些相互连接的神经元网络构成一个动力系统，在静息状态下表现出自组织临界性（SOC）。[9,10] 除神经元皮层外，在许多其他物理系统和现象中也观察到了SOC，例如地震[11]，磁相互作用[12], 铁弹性和铁电性

材料（巴克豪森噪声）[13,14]，和电荷密度波[15]。当一个处于临界点的自组织系统受到扰动时，会触发一系列称为雪崩的连续事件，换言之，系统会发出“爆裂噪声”。[16] 这类雪崩的时空动力学遵循幂律标度，具有长程时间相关性和标度不变行为。[17–20] 已有研究提出，处于SOC状态运行可使网络凭借大规模连接，高效地处理和传输信息。[21,22] 因此，一个值得探讨的问题是：能否构建与互补金属氧化物半导体兼容、由处于SOC状态的自组装材料网络构成的动力系统，并利用这些自顶向下神经形态架构（TDNA）进行计算？

在此背景下，近期研究开始探索由纳米线网络[23] 或纳米颗粒复合体[24] 构成的自组装纳米网络。然而，对于未来的神经形态计算应用而言，理想的自顶向下神经形态架构应构建在兼容互补金属氧化物半导体且可扩展至大面积的平台上。在此，我们展示了两种处于自组织临界性状态的不同类型网络，它们均构筑于稳健的二维材料平台上，即沉积在铜基底上的六方氮化硼，并以银作为顶电极。选择高质量六方氮化硼作为绝缘体，并结合快速扩散的银作为顶电极，使我们得以独特地稳定以下结构：a）由银插层物构成的渗流隧道结网络；b）银细丝网络。该二维材料平台还支持在不同器件架构中进行异质集成。[25]

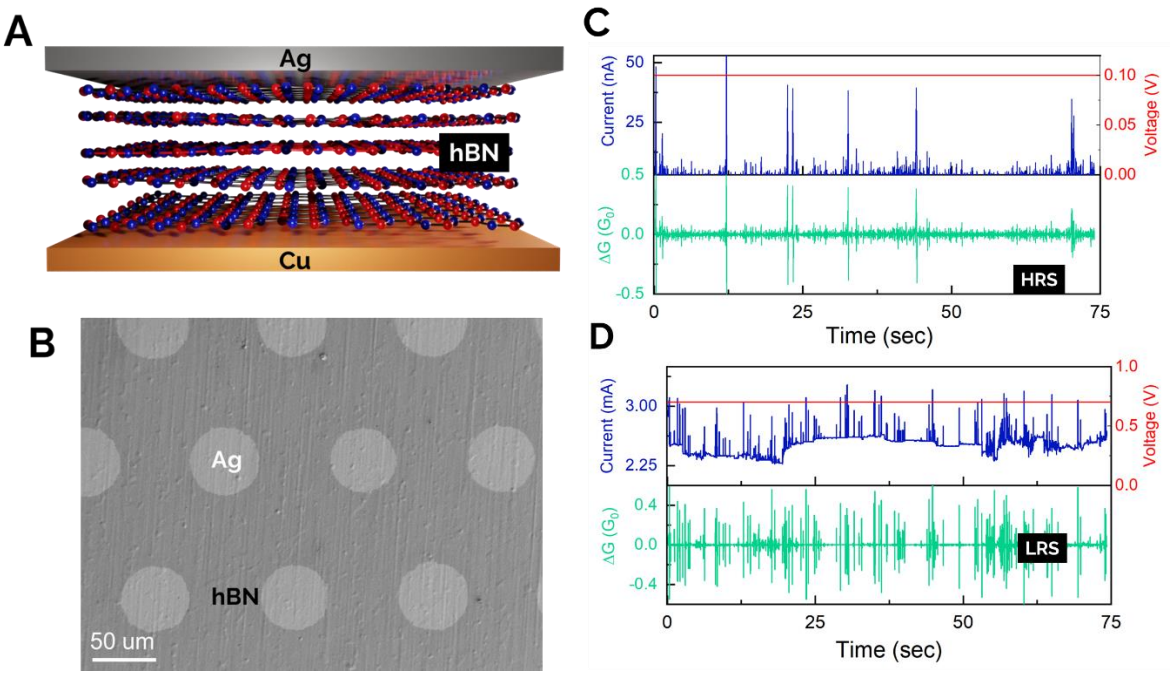


图 1. 银-六方氮化硼系统中的雪崩动力学。A）银-六方氮化硼-铜（MIM）器件示意图。电压施加于银，铜基底接地。B）器件顶视图的扫描电子显微镜图像。C）高阻态下以恒定电压（红色）采样时，具有代表性的电流数据（蓝色）随时间的变化，显示出随机尖峰事件；微分电导数据表示事件大小 ΔG（红色），以平均电导 G_0 的量子单位表示。观测到的电流水平单位为 nA。D）低阻态下具有代表性的电流和微分电导数据。观测到的电流水平单位为 mA。

2. 结果

2.1. Ag 网络的双态切换

大面积（最大可达 6 平方英寸）多层六方氮化硼（厚度为 ~10 nm）在铜上的生长采用化学气相沉积法完成，具体方法见方法部分，且此前已有报道。[26] 我们制备了金属-绝缘体-金属器件阵列（25x25），其中银（50 um）为顶电极，六方氮化硼为绝缘体，铜基底为底电极（图 1A、1B 和 S1A）。我们对 3 个不同样品进行了测量，每个样品测量 10 个器件，所有器件均表现出相似行为。铜接地，并向银电极施加电压。I-V 扫描显示，在初始成形步骤（图 S1C）之后，器件出现双极性双稳态电阻开关（图 S1B）。在所有这些器件中，高阻态向低阻态转变发生在 V_{set}= 0.9V（±0.15V），低阻态向高阻态转变发生在 V_{reset}= -0.6V（±0.1V）。为了表征高阻态和低阻态下的时空雪崩，我们进行了电压采样测量，即施加恒定偏置电压并测量瞬时电流。我们在 0.1 V 和 0.6 V 的小扰动电压下，对分别稳定于高阻态和低阻态的代表性器件进行了测试。高阻态下的电流响应（图 1C）呈现出幅值不一的不规则尖峰，范围为 5 nA 至 50 nA。低阻态下的响应也呈现不规则尖峰，但幅值大得多，范围为 2.2 mA 至 3 mA（图 1D）。这些尖峰的统计行为和相关性可通过表征它们的序参量来理解，例如电导变化 ΔG (G_o)（图 1C 和 1D）、事件间隔/尖峰间隔（IEI）以及 IEI 的自相关函数（ACF）。

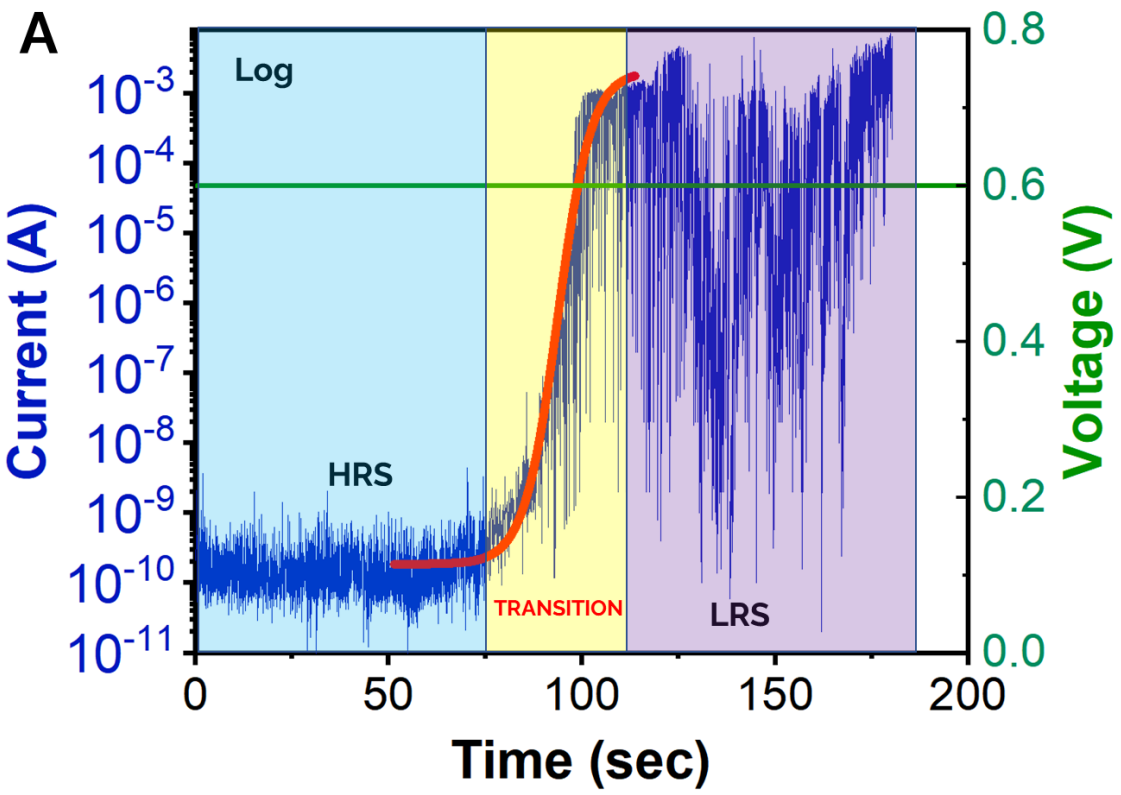


图 2. 银-六方氮化硼系统中基于扩散的状态转变。观测到的行为的对数坐标图。不同颜色表示器件的不同阶段：高阻态（蓝色）、从高阻态到低阻态的转变（黄色）、低阻态（紫色）。转变的 JMAK 模型拟合结果以红色实线表示。

在接近但低于 SET 电压的电压下，高阻态器件会在可测量的时间尺度内发生相变，转变为低阻态。例如，一个处于高阻态的典型器件在 0.6 V（V_{set}= 0.9V）下保持时，在高阻态下会出现持续至 70 秒的纳安级电流涨落，随后转变为低阻态，并在低阻态下出现毫安级电流涨落（图 2；线性刻度见图 S1D）。在转变区域，平均电流很好地符合 John-Avrami-Mehl-Kolmogorov 动力学，如公式（1）所示[27]，

$$i_T = at^{n-1}e^{(-bt^n)} \qquad (1)$$

其中，a 为常数，b 为复合参数，包含成核和生长的动力学速率；参数n 为 Avrami 指数，其中 $n = d + 1$，d 为系统维度。根据拟合结果，我们估算出 n~2 （图 S2A），这可能表明生长过程为一维，与通过长程扩散形成银细丝的过程相符。[28] 低阻态下随后出现的大幅电流涨落表明，导电细丝会间歇性地断裂并重新形成。

在高阻态和低阻态下观察到的脉冲发放率取决于采样率。当采样间隔为 10 ms 时，代表性器件测得的脉冲发放率在高阻态下为每秒 15–20 个尖峰，在低阻态下为每秒 25–30 个尖峰。此外，在高阻态和低阻态下，脉冲发放率均可随施加电压（0.05V 至 0.5V）调节（图 S2C）。这种速率编码使器件能够通过电压相关的尖峰速率信息进行编码，以用于随机器件应用。[29] 最后，对于制备为低阻态的器件，施加接近 RESET 电压（-0.6V）的负电压时，会如图 S2B 所示发生离散且突变的转变，进入高阻态，随后在高阻态下出现尖峰行为。请注意，在负偏压下，低阻态中不会出现尖峰行为。

2.2 长程时间相关性与雪崩动力学

为更好地理解雪崩动力学，我们将电流尖峰模式二值化：超过阈值的尖峰归类为事件，其余则归类为非事件。图 3A（高阻态）和图 3E（低阻态）顶部面板中的事件序列包含 100 s 内采集的数据，后续面板的时间尺度则分别放大了 5 倍和 20 倍。所有面板中的事件序列模式在定性上均呈现自相似性，且与采样率无关。图 1C 和 1D 中的开关活动（分别对应图 3A 和 3E 中二值化的子区段）表现出一系列事件突发，其 ΔG 值范围各异。这些突发表明，相关活动连续分布于整个网络，而非孤立的局部事件。为量化相关性和自相似性行为，我们考察事件大小（ΔG）、事件间隔（IEI）的分布，以及 IEI 的自相关函数（ACF）。

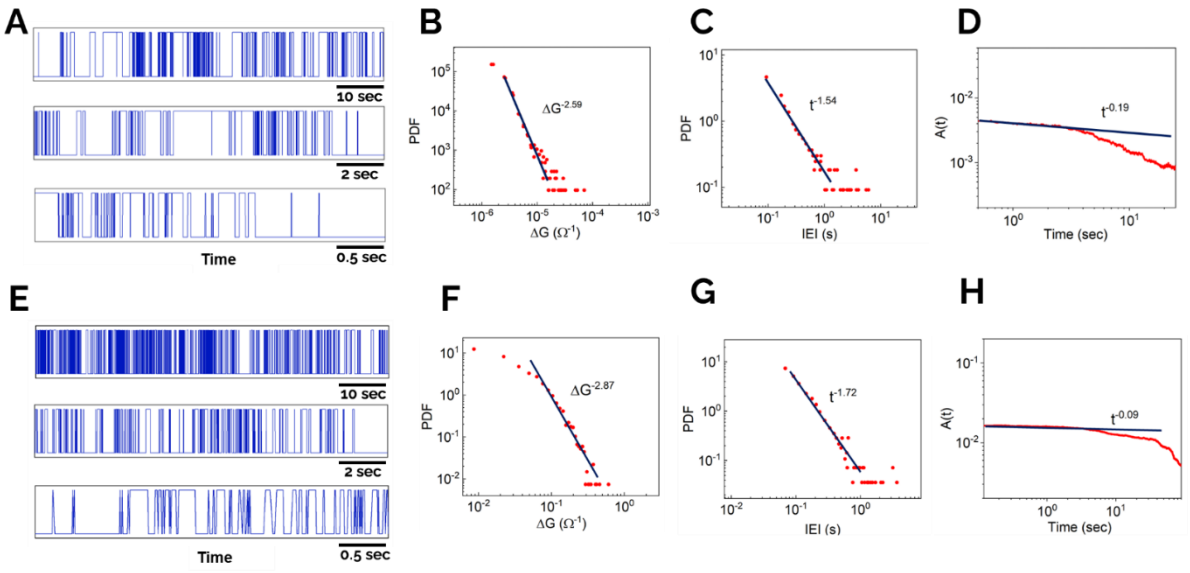


图 3. 长程时间相关性（LRTC）与幂律标度。图中（A 至 D）所示的分布图对应器件的高阻态，（E 至 H）对应低阻态。（A 和 E）展示了银-六方氮化硼-铜器件开关活动的二值化模式，并按不同时间尺度绘制。这些模式呈现出自相似的时间行为。（B 和 F）展示了器件电导变化（ΔG）的概率密度，对应高阻态（B）和低阻态（F）下的雪崩模式。（C 和 G）以概率分布函数（PDF）的形式展示了事件间隔（IEI）的幂律分布。（D 和 H）展示了高阻态和低阻态下 IEI 的自相关函数，两者均呈现缓慢的幂律衰减。

图 3B 和 3F 展示了高阻态和低阻态下事件大小的概率分布函数（PDF）。两种状态下的 P(ΔG) 均遵循幂律分布，跨越 3 个数量级，指数分别为 ~2.5±0.1（高阻态）和 ~2.8±0.1（低阻态）。事件间隔（IEI）的 PDF（图 3C 和 3G）也遵循幂律分布，其指数 γ 在函数 ($P(t) \sim t^{-\gamma}$) 中为：高阻态下 ~1.54±0.05，低阻态下为 1.72±0.05。这定量证明了事件具有自相似、无标度特性（定性上也可从图 1A 和 1E 中观察到）。自相似性是时间相关性的标志，这种相关性存在于来自大脑皮层的电生理信号中，并且是分形相关性的结果。[30] 高阻态下的 γ 与具有渗流隧道结网络的纳米颗粒系统中获得的数值相似；[19] 低阻态下的 γ 与纳米线网络中的数值相似。[23]这些数值也与神经元皮层中观察到的数值处于相近范围。[31,32] 高阻态和低阻态下的自相关函数（图 3D 和 3H）均表现出跨越多个数量级的缓慢幂律衰减。用于理解连续事件间相关性的另一个重要序参量是尖峰间隔（ISI_n），其定义为连续尖峰上升沿之间的时间。图 S4A（高阻态）和图 S4C（低阻态）显示，ISI_n 和 ISI_{n+1} 围绕平均 ISI 紧密分布。观察到的自相关函数和 ISI_n行为是事件之间存在长程时间相关性（LRTC）的结果。最后，与任何相关噪声的情况一样，事件功率谱随频率呈幂律关系，按 $1/f^{\beta}$ 变化。β 在我们选取的代表性器件中，高阻态下为 0.91（图 S4B），低阻态下为 0.82（图 S4D）。

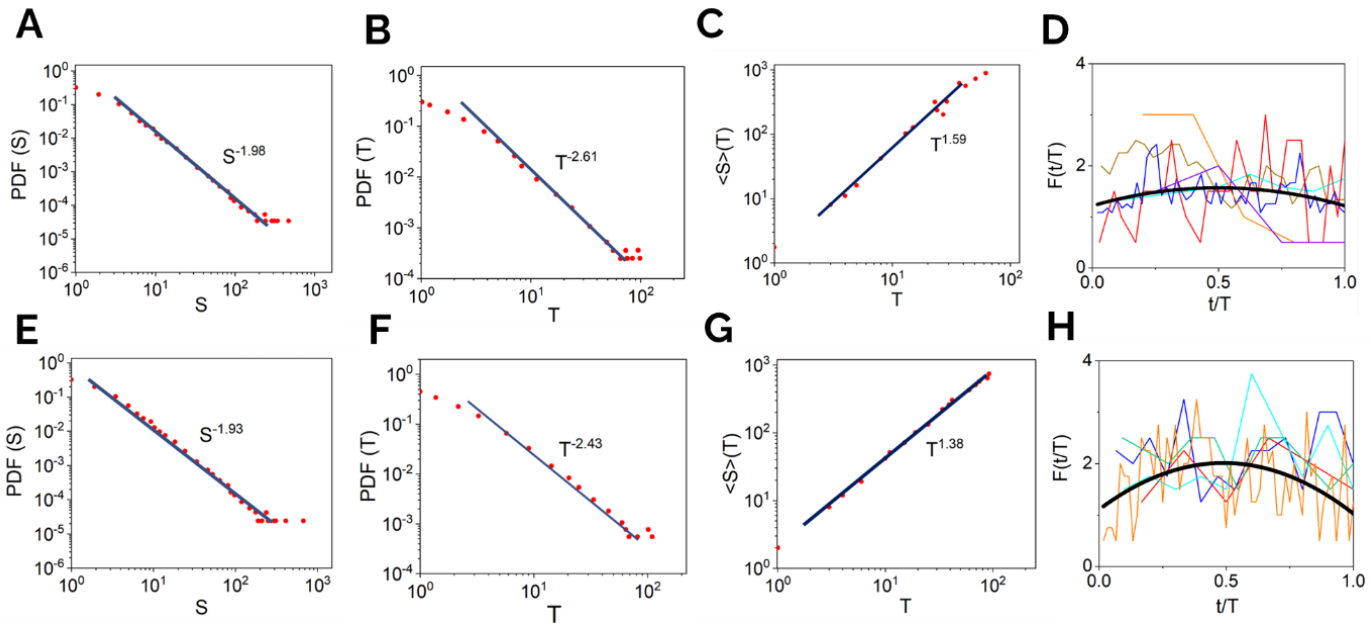


图4. 自组织临界性。A 至 D 中的分布图对应高阻态，E 至 H 中的分布图对应低阻态；低阻态在多个时间尺度上呈现自组织行为。(A 和 E) 两种情况下雪崩尺寸的概率分布函数 P(S) 均遵循幂律，指数值相近，分别为 τ ~1.95。(B 和 F) 两种状态下雪崩持续时间的分布 P(T) 也遵循幂律；采用线性分箱时，高阻态和低阻态的指数值分别为 α~2.6 和 α~2.45。(C 和 G) 单位时间箱内的平均雪崩尺寸 <S>(T) 也呈现幂律标度，高阻态和低阻态的指数 1/συz 分别为 ~ 1.5 和 συz ~ 1.4。(D 和 H) 不同雪崩持续时间 T 对应的平均雪崩形状（不同颜色）均收敛于普适抛物线标度函数（黑色实线）。所得指数值满足爆裂关系（式5），由此确立了临界雪崩动力学的存在。(D) 中的雪崩持续时间为 T=4 （紫色）、4（青绿色）、5（橙色）、12（棕色）、15（红色）、24（蓝色）；], 而 (H) 中为 T= 4 （红色）、5（绿色）、6（青绿色）、10（绿色）、32（橙色）]

2.3 自组织临界性观测

雪崩定义为两个空时间箱之间连续发生的一系列事件。
一次雪崩的大小 (S) 是其中事件的总数，雪崩持续时间 (T) 是时间箱的数量，而 (<S>(T)) 定义为持续时间为 T 的雪崩的平均大小。在临界系统中，S、T 和 <S>(T) 的概率分布函数分别遵循式 (2)、式 (3) 和式 (4) 所述的幂律标度。[33] 分布定义如下：

$$P(S) \sim S^{-\tau} \qquad (2)$$

$$P(T) \sim T^{-\alpha} \qquad (3)$$

$$< S > (T) \sim T^{1/\sigma\upsilon z} \qquad (4)$$

呈现自组织临界性（SOC）的系统，其雪崩活动的一个标志是：所得幂律指数符合式（5）所示的爆裂噪声关系。[34]

$$\frac{1}{\sigma\upsilon z} = \frac{\alpha-1}{\tau-1} \qquad (5)$$

式（5）可将处于自组织临界性（SOC）状态的系统与其他同样产生幂律和指数的随机游走过程区分开来。如图4所示，在高阻态和低阻态下，开关活动的 P(S)、P(T) 和 <S>(T) 均呈幂律依赖，其幂律指数分别为 τ、 α 和 1/συz。在高阻态下，τ ≈ 1.96±0.05（图4A）和 α≈2.61±0.05（图4B），根据式（5）可得 1/συz ≈ 1.67±0.1。这与通过 <S>(T)（图4C）独立估算得到的 1/συz ≈ 1.59±0.05 非常吻合。低阻态下也观察到类似的一致性：τ ≈ 1.93±0.05（图4F）和 α≈2.43±0.05（图4G），根据式（5）可得 1/συz ≈ 1.52±0.1，这也与通过 <S>(T)（图4H）得到的 1/συz ≈ 1.38±0.05 相符。表S1汇总了高阻态和低阻态下各种序参量的指数，并将其与神经元皮层及其他系统中相应的指数进行了比较。对爆裂噪声关系的这一验证证明，我们的系统在高阻态和低阻态下均处于自组织临界性（SOC）状态。

处于临界态的系统还有一个关键特征：雪崩的平均形状呈现普适标度或形状坍缩。[34] 普适标度形状的获得方法是：将雪崩持续时间按最大雪崩持续时间 T 归一化，并将雪崩大小按持续时间为相应值时的平均雪崩大小归一化，如方程（6）和（7）所述。[35]

$$s(t,T) \propto T^{\left(\frac{1}{\sigma\nu z}-1\right)} F\left(\frac{t}{T}\right) \quad (6)$$

$$< S > (T) = \int_0^T s(t,T)dt \quad (7)$$

这里，s（t，T）表示持续时间为 T 的雪崩中时刻 t 的平均尖峰数（s），而 F（$\frac{t}{T}$）表示以标度化持续时间（t/T）作图时的雪崩形状。我们对持续时间 T 不同的所有雪崩进行形状塌缩分析，观察到普适的抛物线标度，这一现象在神经元雪崩中也有报道。[35,36] 形状塌缩分析还独立估算出 1/συz，在高阻态下为 1.5±0.05（图4D），在低阻态下为 1.4±0.05（图4I）。这些数值与根据方程（5）得到的结果相近，并进一步独立验证了 1/συz。高阻态和低阻态下，指数 1/συz、 α 和 τ 随电压均无显著变化（图 S5）。通过爆裂关系估算、形状塌缩分析和方程（5）独立获得的 1/συz 高度一致，为银-六方氮化硼系统中高阻态和低阻态的自组织临界性提供了有力证据。

图5所示的截面透射电子显微镜分析有助于理解高阻态和低阻态的网络结构。我们采用聚焦离子束技术制备了代表性器件的横截面薄片，这些器件分别处于初始状态、高阻态（经过10个周期后）和低阻态（经过20个周期后）。图5A显示了初始状态器件的高分辨透射电子显微镜图像，其中高质量的结晶二维六方氮化硼层生长在铜基底上，并与银接触。在高阻态下，对选定区域进行的高角环形暗场扫描透射电子显微镜（图5D）和能量色散X射线光谱分析（图5F）显示，银插层物分散在六方氮化硼基体内部（另见图S6A-E）。高分辨透射电子显微镜数据及分析进一步显示，晶格间距从初始状态下的0.35 nm（图5B）增大至高阻态下的0.39 nm（图5C），这是银插入六方氮化硼基体所致。其他二维体系中也观察到了类似的插层膨胀现象。[37] 对低阻态器件进行的高角环形暗场扫描透射电子显微镜和能量色散X射线光谱分析显示，多个银细丝横跨六方氮化硼薄膜形成（细丝网络，图5F、5G及图S6 I-J）。

3. 讨论

下文提出的简单模型可以解释我们体系中的上述所有结果。高阻态和低阻态在物理上形成两种不同类型的网络，且二者都处于自组织临界性状态。值得指出的是，这种独特行为源于银（顶电极）中快速扩散物种与通过化学气相沉积生长的高质量、坚固六方氮化硼基体的共同作用。我们通过将六方氮化硼与忆阻器件常用的标准顶电极材料（如镍和金）接触，证实了这种结构的独特性；这两种材料均未表现出任何尖峰活动（图S7A和S7B）。

如图 S1C 所示，原始六方氮化硼在超过阈值电压后，通过形成银细丝进行电成形，进入低阻态。众所周知，银具有很强的扩散性；据报道，银转变为 Ag^{+}所需的电离势比金、铜和镍等其他金属低 2–2.5 eV。[38] 因此，银能够在相对较低的电化学势下电离，并凭借较小的离子尺寸穿过六方氮化硼基体迁移至铜电极。[39] 此处会形成纳米团簇，并逐渐生长为细丝。电成形后，器件会在低阻态与高阻态之间反复切换数次。

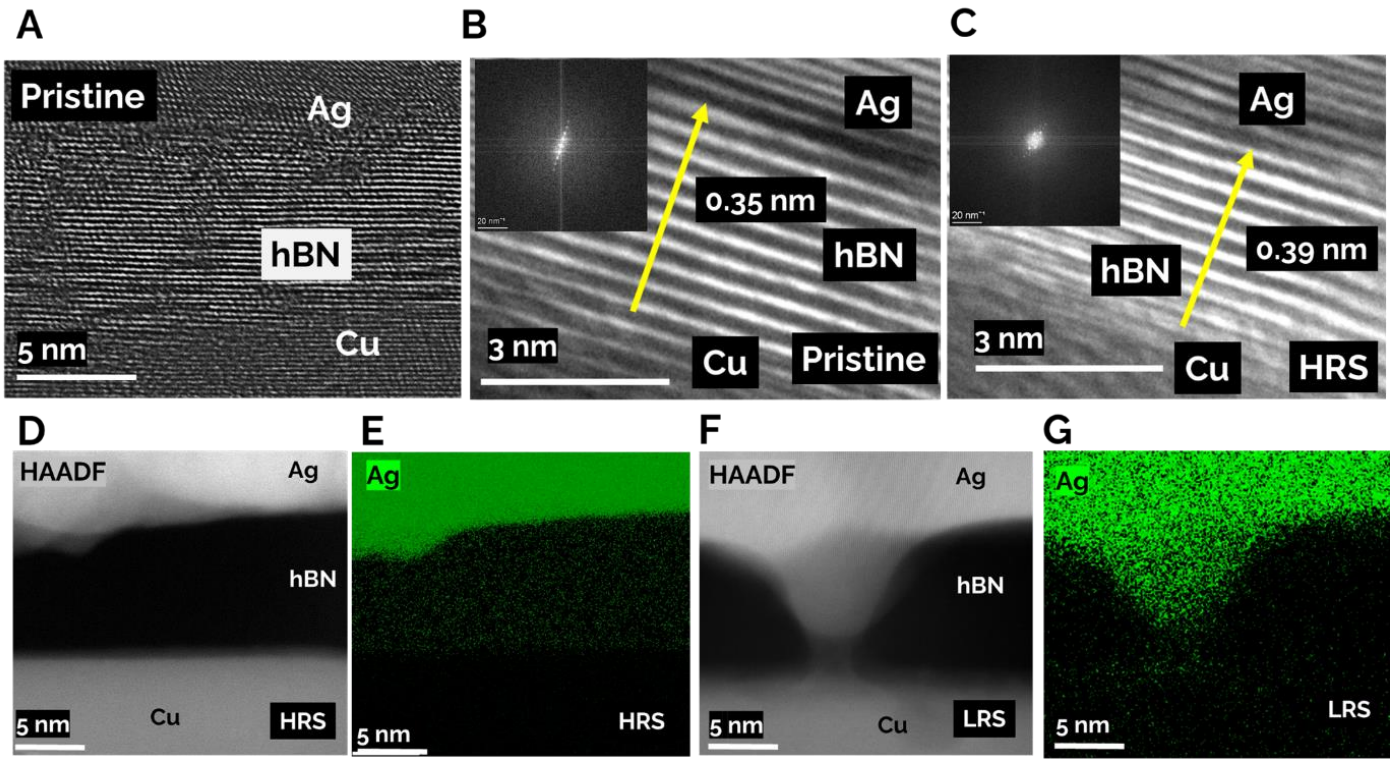


图5. 银-六方氮化硼系统的透射电子显微镜分析。A）与银接触的铜上生长的初始六方氮化硼的横截面高分辨透射电子显微镜（HRTEM）图像。B）初始状态下六方氮化硼堆叠结构的高分辨透射电子显微镜图像，显示晶面间距为0.35 nm。（插图）六方氮化硼区域的快速傅里叶变换图像，显示层状结构。C）经历多个循环并在高阻态下发生突跳后的区域高分辨透射电子显微镜图像，所得晶面间距为0.39 nm。（插图）六方氮化硼区域的快速傅里叶变换图像，因存在银颗粒而呈现环状图样，同时也显示层状结构图样。D）银-六方氮化硼-铜堆叠结构处于高阻态时的高角环形暗场扫描透射电子显微镜图像。E）该区域的能量色散X射线谱元素分布图显示存在银团簇，进一步证实银离子在六方氮化硼基体内迁移。F）低阻态下的高角环形暗场扫描透射电子显微镜图像显示，在持续循环至低阻态的过程中，银发生大规模扩散并形成银细丝。G）(F)所示区域中银的能量色散X射线谱元素分布图。

根据透射电子显微镜数据，高阻态中含有银纳米团簇，它们插入六方氮化硼基体的范德华间隙中（示意图见图6A）。六方氮化硼层具有较高的结晶质量（缺陷密度低），这意味着银的层内扩散速度可能很快，但由点缺陷、堆垛层错和晶界等缺陷介导的层间扩散过程较慢。这有利于层内团簇化，并形成稳定的银插层物网络（节点）。在其他二维体系中，银等物质的插层现象也已有充分报道。[37,40,41]

高阻态中的传导（比初始状态高两个数量级）主要由电子穿过这些节点隧穿实现，其中六方氮化硼作为层间节点之间的隧穿势垒，真空则作为层内节点之间的势垒。在这种由银节点构成的自组装隧穿网络中，施加微小扰动电压会引起簇/节点发生涨落，动态改变它们之间的间距，从而产生相关的纳安级隧穿电流涨落（图1C）。这些事件不受极性影响，在正、负偏置电压下都会发生（图1C，图S2B）。该网络会自组织至临界态，其特征是出现无标度雪崩，类似于处于临界坡度的沙堆；施加微小扰动后也会产生相应的雪崩，以维持临界坡度。

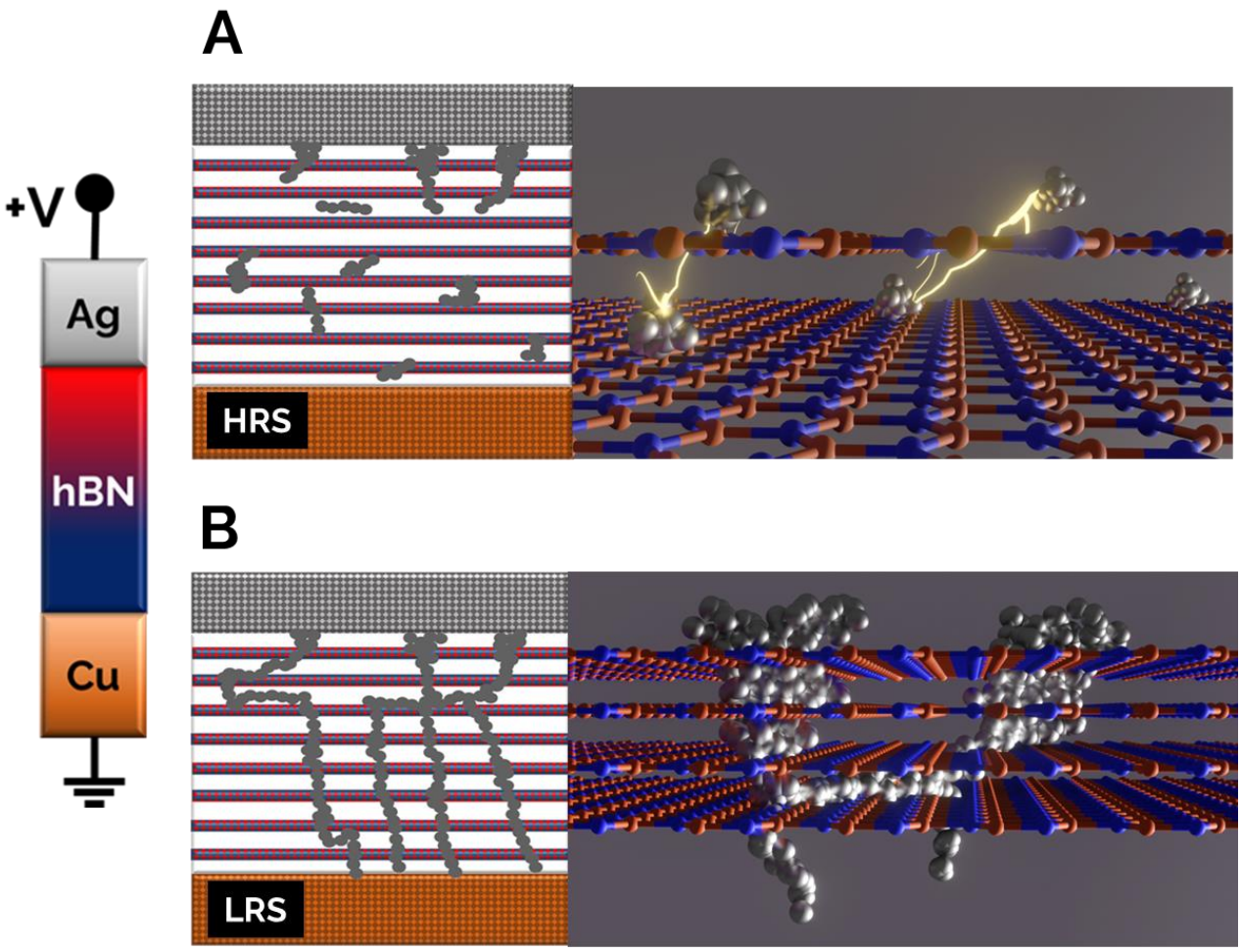


图6. 雪崩机制 A) 银作为受偏压的顶电极，铜基底作为底电极，即公共端子。器件在高阻态下经过循环并静置时的示意图，显示银（灰色）分散在六方氮化硼基体中。六方氮化硼层之间形成的银团簇之间的隧穿电流示意图。B) 器件在低阻态下经过循环并静置时的示意图，显示细丝网络的形成。六方氮化硼基体内形成的细丝网络的三维表示。

银的层间迁移在低电压下是一个较慢的过程，它决定了细丝形成过程，进而决定高阻态与低阻态之间的转变。提高电压可非线性地加快这一转变的动力学，这种现象在电阻式存储器中通常称为电压-时间困境。[42] 因此，将代表性器件在 0.6 V（V_{set}=0.9 V）电压下工作时，可记录到高阻态向低阻态的转变，其背景为电流涨落，如图2A所示。该动力学符合 JMAK 模型，且相变维数 ~1，有力地支持了细丝形成。由此，低阻态是由多根银细丝构成的网络，并通过高角环形暗场扫描透射电子显微镜直接成像（图5G、图S6 I、J）。施加超过阈值的负复位电压，会导致细丝发生电化学溶解，形成高阻态的银插层网络结构，并产生双极性忆阻开关。

在系统上施加较小的正电压时，低阻态会出现毫安级电流涨落。这可以解释为细丝断裂与修复事件相互竞争、连续发生的过程：焦耳热以及由此产生的随机表面离子扩散会导致细丝断裂，而电极处的离子迁移和氧化还原反应（电化学过程）则有助于细丝修复。这些事件还表现出长程时间相关性和无标度特性。然而，在此类细丝网络（低阻态）中施加负偏压时，电化学过程和焦耳热都会使细丝断裂，因此我们的器件没有表现出任何尖峰行为（图S2B）。我们还观察到，在施加长程脉冲刺激时会出现基于扩散的自稳定行为（图S3）。

隧穿网络（高阻态）和细丝网络（低阻态）都处于自组织临界态，表现出由各种序参量的临界指数表征的普适性行为。在高阻态下，τ、 α、1/συz的数值与表S1中纳米颗粒渗流隧穿网络所发现的数值相对应，这表明这些网络不仅属于同一普适类，其背后的决定机制也都是隧穿电流渗流路径的形成与解离。然而，在低阻态下，τ、 α 和1/συz的数值略有不同，可能表明其属于另一种普适类。所得指数的数值与本质上呈细丝状的纳米线网络中的数值相近。这两类网络中观察到的临界指数不同于众所周知的普适类，例如平均场、传播前沿以及不同维度下的短程模型；这些普适类已在磁巴克豪森噪声或电荷密度波等研究中得到确立。[13–15] 若要进一步探讨，则需要对这类网络进行严格建模。我们的工作提出了一个物理学中的基础问题：识别不同类型神经形态网络的各种普适类。我们认为，将普适类与其计算性能相关联，将是发展自顶向下神经形态架构的关键一步。

4. 结论

在本研究中，我们展示了一种独特且兼容互补金属氧化物半导体的二维材料平台，该平台包含两种不同普适类的类神经元网络（渗流隧道结网络和细丝网络），且二者均处于自组织临界性状态。借助六方氮化硼基体中银的场依赖迁移动力学，这些网络可通过电偏置在彼此之间转变。据我们所知，此类现象在任何二维材料平台中均属首次。我们的大面积化学气相沉积生长六方氮化硼平台具有显著优势：它可以转移到任意衬底上，包括硅，从而能够在大面积器件上实现集成系统。此外，这类二维材料平台还可通过异质层堆叠来构建新结构，以用于未来的神经形态计算。展望未来，我们设想将这些器件组成阵列（多电极阵列），以模拟类似神经元皮层中观测到的时空动力学，并实现类脑运算。利用这些平台进行计算时，储备池计算等方法将是一个良好的起点。[43,44]

5. 材料与方法

5.1 生长与器件制造

多层六方氮化硼在铜上的生长过程是在定制的热壁化学气相沉积反应器中进行的，所用前驱体为硼烷氨（Sigma Aldrich，97%，682098）。我们采用温度和压力可控的汽化器装置，以控制进入反应器的前驱体流量，从而生长多层六方氮化硼。通常使用一片尺寸为 1 cm x 6 cm、厚度为 25 μm 的铜箔（Alfa Aesar，99.8%，46986）。先将铜箔置于稀盐酸中清洗 5 分钟，以去除表面的氧化层，随后用去离子水冲洗。接着，分别在丙酮和异丙醇中清洗 5 分钟，以去除表面的有机污染物。随后立即将铜箔放入反应器的固定位置。之后，将反应器抽至基压，通入 200 sccm 的 H_2 吹扫 10 分钟，再升温至生长温度，通常为 1025°C 至 1050°C。生长过程的详细信息见先前的研究。借助模板掩模，在生长后的六方氮化硼-铜上热蒸镀银电极（50 um）。银-六方氮化硼-铜金属-绝缘体-金属叠层的电学测量如图 1B 所示。

5.2 测量

使用直流探针台（Agilent Device Analyzer B1500A）进行电学表征。电压施加于顶电极（银），铜底部接触电极保持在地电位。采用的主要测量方法是在 I-V-t（电流-电压-时间）采样模块中施加恒定直流电压。该方法可研究器件中局部开关的电流重构，从而产生尖峰，并据此分析雪崩动力学。测量采用多种采样率进行，如 100 us、1 ms，主要采用 10 ms 的采样间隔。较大的采样间隔可获取更大的数据集并延长采样时间，有助于避免幂律分布出现明显中断。所有采样间隔获得的数据在质量和数量上均相似，分析所得幂律指数也相近。因此，结果不受采样率影响。本研究展示了单个样品上十个器件的数据；另外 3 个样品和 30 个器件的数据及分析结果与所进行的直流和脉冲测量一致。使用蔡司 Zeiss Ultra 55 场发射扫描电子显微镜进行扫描电子显微镜观察。使用在 300 kV 下运行的双像差校正 Thermo Fisher Themis 显微镜进行透射电子显微镜观察。样品的截面透射电子显微镜样品采用 Helios G4-UX 聚焦离子束（FIB）制备。

5.3 分析

电学数据的分析采用了与神经科学和生物学研究中分析神经皮层多电极阵列测量数据相似的方法。数据分析程序借鉴自参考文献 [35], , 并作了少量修改。采用阈值法，根据电流信号超过阈值时电导值的变化来进行定义。阈值根据均值范围分析计算，以避免改变 IEI分布和自相关函数的显著性。采用最大似然估计（MLE）方法估计尖峰分布中的幂律指数。最大似然估计拟合算法用于估计分布的最佳拟合。根据 Kolmogorov-Smirnov（KS）检验计算分布的最大似然估计量，该检验用于识别幂律拟合的偏差。我们接受 KS统计量（p）不高于至少 20% 的幂律模型所得 KS统计量的拟合（p

数据，其低于至少 20% 的幂律模型所得的 KS统计量（p_t）（即，$p \geq p_t = 0.2$）。对于自相关函数，采用标准线性回归法求得指数。对于形状塌缩分析，采用最小二乘拟合进行多项式拟合，以求得使方差最小的曲率标度参数。

致谢

本研究部分工作在位于CeNSE、印度科学研究所班加罗尔分校的微纳表征设施（MNCF）和国家纳米制造中心（NNfC）完成，经NPMAS-DRDO、MCIT、电子和信息技术部及印度政府资助，并受益于工作人员的帮助与支持。P.N.感谢印度科学研究所提供的创业资助、印孚瑟斯青年研究者奖，以及DST启动研究资助（SRG/2021/000285）。作者感谢人力资源发展部（MHRD）通过NIEIN项目提供资助，并感谢电子和信息技术部（MeitY）及科学技术部（DST）通过NNetRA提供资助，以及DST纳米使命资助的纳米科学与技术卓越主题单位项目。A.R.感谢SERB-ITS旅行资助提供的差旅支持。作者感谢Beatriz Noheda教授（格罗宁根大学）、Mart Salverda（格罗宁根大学）和Ruben Hamming-Green（格罗宁根大学），感谢他们在制作TEM样品之前协助进行非原位电学测量。

参考文献

[1] D. R. Chialvo, 《自然物理》2010年，6，744。[2] V. Mnih, K. Kavukcuoglu, D. Silver, A. A. Rusu, J. Veness, M. G. Bellemare, A. Graves, M. Riedmiller, A. K. Fidjeland, G. Ostrovski, S. Petersen, C. Beattie, A. Sadik, I. Antonoglou, H. King, D. Kumaran, D. Wierstra, S. Legg, D. Hassabis, 《自然》2015年，518，529。[3] W. Schultz, P. Dayan, P. R. Montague, 《科学》（80-.）. 1997年，275，1593。[4] K.-H. Kim, S. Gaba, D. Wheeler, J. M. Cruz-Albrecht, T. Hussain, N. Srinivasa, W. Lu, 《纳米快报》2012年，12，389。[5] I. Sourikopoulos, S. Hedayat, C. Loyez, F. Danneville, V. Hoel, E. Mercier, A. Cappy，生理学前沿2017年，11，数字对象标识符 10.3389/fnins.2017.00123。[6] P. M. Sheridan, F. Cai, C. Du, W. Ma, Z. Zhang, W. D. Lu, 《自然·纳米技术》2017年，12，784。[7] C. Li, M. Hu, Y. Li, H. Jiang, N. Ge, E. Montgomery, J. Zhang, W. Song, N. Dávila, C. E. Graves, Z. Li, J. P. Strachan, P. Lin, Z. Wang, M. Barnell, Q. Wu, R. S. Williams, J. J. Yang, Q. Xia, 《自然·电子学》2018年，1，52。[8] T. Chavan, S. Dutta, N. R. Mohapatra, U. Ganguly, 《IEEE电子器件汇刊》2020年，67，2614。[9] P. Bak, C. Tang, K. Wiesenfeld, 《物理评论A》1988年，38，364。[10] J. M. Beggs, D. Plenz，神经科学杂志 2003年，23，11167。[11] A. Sornette, D. Sornette, 《欧洲物理快报》1989年，9，197。[12] J. S. Urbach, R. C. Madison, J. T. Markert，物理评论快报1995年，75，276。

[13] P. J. Cote, L. V. Meisel，物理评论快报 1991年，67，1334。[14] B. Casals, G. F. Nataf, E. K. H. Salje，自然·通讯 2021年，12，1。[15] C. R. Myers, J. P. Sethna，物理评论B 1993年，47，11171。[16] J. P. Sethna, K. A. Dahmen, C. R. Myers，《自然》2001年，410，242。[17] T. W. Boonstra, B. J. He, A. Daffertshofer，生理学前沿 2013年，4，数字对象标识符 10.3389/fphys.2013.00079。[18] J. M. Palva, A. Zhigalov, J. Hirvonen, O. Korhonen, K. Linkenkaer-Hansen, S. Palva，美国国家科学院院刊 2013年，110，3585。[19] J. B. Mallinson, S. Shirai, S. K. Acharya, S. K. Bose, E. Galli, S. A. Brown，科学进展 2019年，5，数字对象标识符 10.1126/sciadv.aaw8438。[20] D. Marković, C. Gros，物理学报告 2014年，536，41。[21] W. L. Shew, H. Yang, T. Petermann, R. Roy, D. Plenz，神经科学杂志 2009年，29，15595。[22] E. Bullmore, O. Sporns，自然综述：神经科学 2012年，13，336。[23] J. Hochstetter, R. Zhu, A. Loeffler, A. Diaz-Alvarez, T. Nakayama, Z. Kuncic，自然·通讯 2021年，12，数字对象标识符 10.1038/s41467-021-24260-z。[24] S. Shirai, S. K. Acharya, S. K. Bose, J. B. Mallinson, E. Galli, M. D. Pike, M. D. Arnold, S. A. Brown，网络神经科学 2020年，4，432。[25] M. C. Lemme, D. Akinwande, C. Huyghebaert, C. Stampfer，自然·通讯 2022年，13，2。[26] A. Rao, S. Raghavan，材料化学杂志C辑 2022年，10，10412。[27] J. Miao, B. Wang, C. V. Thompson，物理评论：材料 2020年，4，数字对象标识符 10.1103/PhysRevMaterials.4.043608。[28] B. J. Kooi，物理评论B 2004年，70，224108。[29] S. K. Acharya, E. Galli, J. B. Mallinson, S. K. Bose, F. Wagner, Z. E. Heywood, P. J. Bones, M. D. Arnold, S. A. Brown，ACS应用材料与界面 2021年，13，52861。[30] A. J. Mandell, K. A. Selz，统计物理学杂志 1993年，70，355。[31] M. Garofalo, T. Nieus, P. Massobrio, S. Martinoia，公共科学图书馆·综合 2009年，4，e6482。[32] P. Massobrio, V. Pasquale, S. Martinoia，科学报告 2015年，5，10578。[33] M. C. Kuntz, J. P. Sethna，物理评论B—凝聚态物质与材料物理 2000年，62，11699。[34] Z. Heywood, J. Mallinson, E. Galli, S. Acharya, S. Bose, M. Arnold, P. Bones, S. Brown, Neuromorphic Computing and Engineering 2022年，2，024009。[35] N. Marshall, N. M. Timme, N. Bennett, M. Ripp, E. Lautzenhiser, J. M. Beggs，生理学前沿 2016年，7，1。[36] N. Friedman, S. Ito, B. A. W. Brinkman, M. Shimono, R. E. L. DeVille, K. A. Dahmen, J. M. Beggs, T. C. Butler，物理评论快报 2012年，108，208102。

[37] N. Sheremetyeva, D. Niedzielski, D. Tristant, L. Liang, L. E. Kerstetter, S. E. Mohney, V. Meunier, 2D Materials 2021年, 8, 025031.[38] H. Häkkinen, M. Moseler, O. Kostko, N. Morgner, M. A. Hoffmann, B. v. Issendorff, 物理评论快报 2004年, 93, 093401.[39] F. I yikanat, H. Sahin, R. T. Senger, F. M. Peeters, APL Materials 2014年, 2, 数字对象标识符 10.1063/1.4893543.[40] M. J. Lee, S. H. Kim, S. Lee, C. Yoon, K. A. Min, H. Choi, S. Hong, S. Lee, J. G. Park, J. P. Ahn, B. H. Park, NPG Asia Materials 2020年, 12, 数字对象标识符 10.1038/s41427-020-00272-x.[41] G. Zhang, C. Liu, L. Guo, R. Liu, L. Miao, F. Dang, Advanced Energy Materials 2022年, 数字对象标识符 10.1002/aenm.202200791.[42] S. Menzel, U. Böttger, M. Wimmer, M. Salinga, Advanced Functional Materials 2015年, 25, 6306.[43] G. Milano, G. Pedretti, K. Montano, S. Ricci, S. Hashemkhani, L. Boarino, D. Ielmini, C. Ricciardi, Nature Materials 2022年, 21, 195.[44] A. Loeffler, R. Zhu, J. Hochstetter, A. Diaz-Alvarez, T. Nakayama, J. M. Shine, Z. Kuncic, Neuromorphic Computing and Engineering 2021年, 1, 014003.

补充信息

Ag-hBN平台中处于自组织临界性的自组装神经形态网络

Ankit Rao[1], Sooraj Sanjay[1], Majid Ahmadi[2], Anirudh Venugopalrao[1], Navakanta Bhat,[1] Bart Kooi[2,3], Srinivasan Raghavan[1], Pavan Nukala[1]*

作者单位

[1]印度科学研究所纳米科学与工程中心，班加罗尔 560012，[2]泽尔尼克先进材料研究所，格罗宁根大学，格罗宁根，荷兰，[3]格罗宁根大学 CogniGron中心，格罗宁根，9747 AG，荷兰。通讯作者。* 电子邮箱：pnukala@iisc.ac.in

本文件包括：

图S1至S7 表
S1

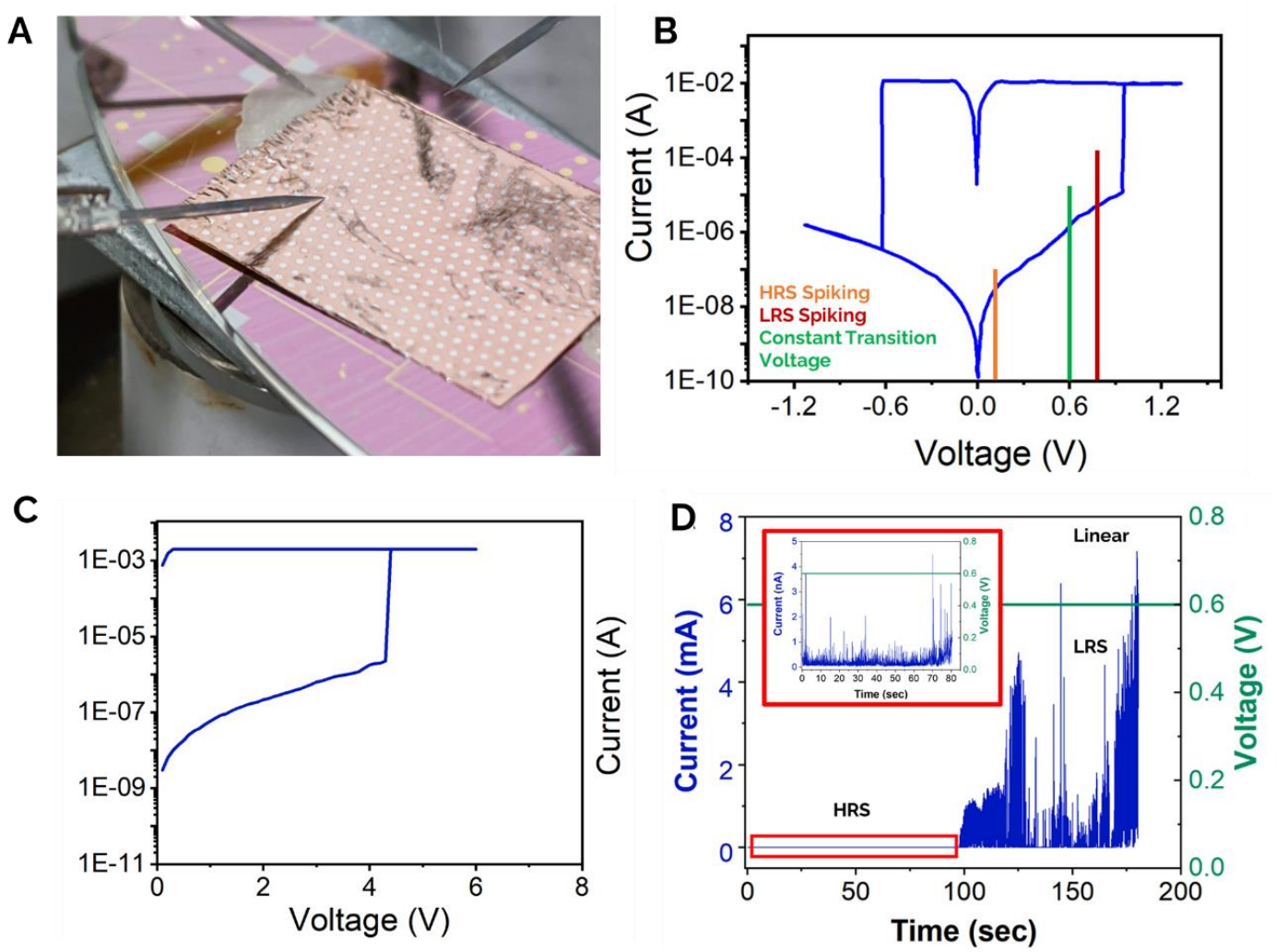


图 S1. A）大面积 Ag-hBN-Cu 器件。B）器件在 SET 电压（0.9V）和 RESET 电压（0.6V）下观察到的阻变行为。C）Ag-hBN 器件的电致成形过程，成形电压（V_f）为 ~4V。D）在恒定电压 0.6V 下的线性刻度电流-时间曲线。器件在恒定电场下因离子输运而从高阻态转变为低阻态的时间行为。（插图）按器件电流水平（单位：nA）缩放后观察到的高阻态图样。

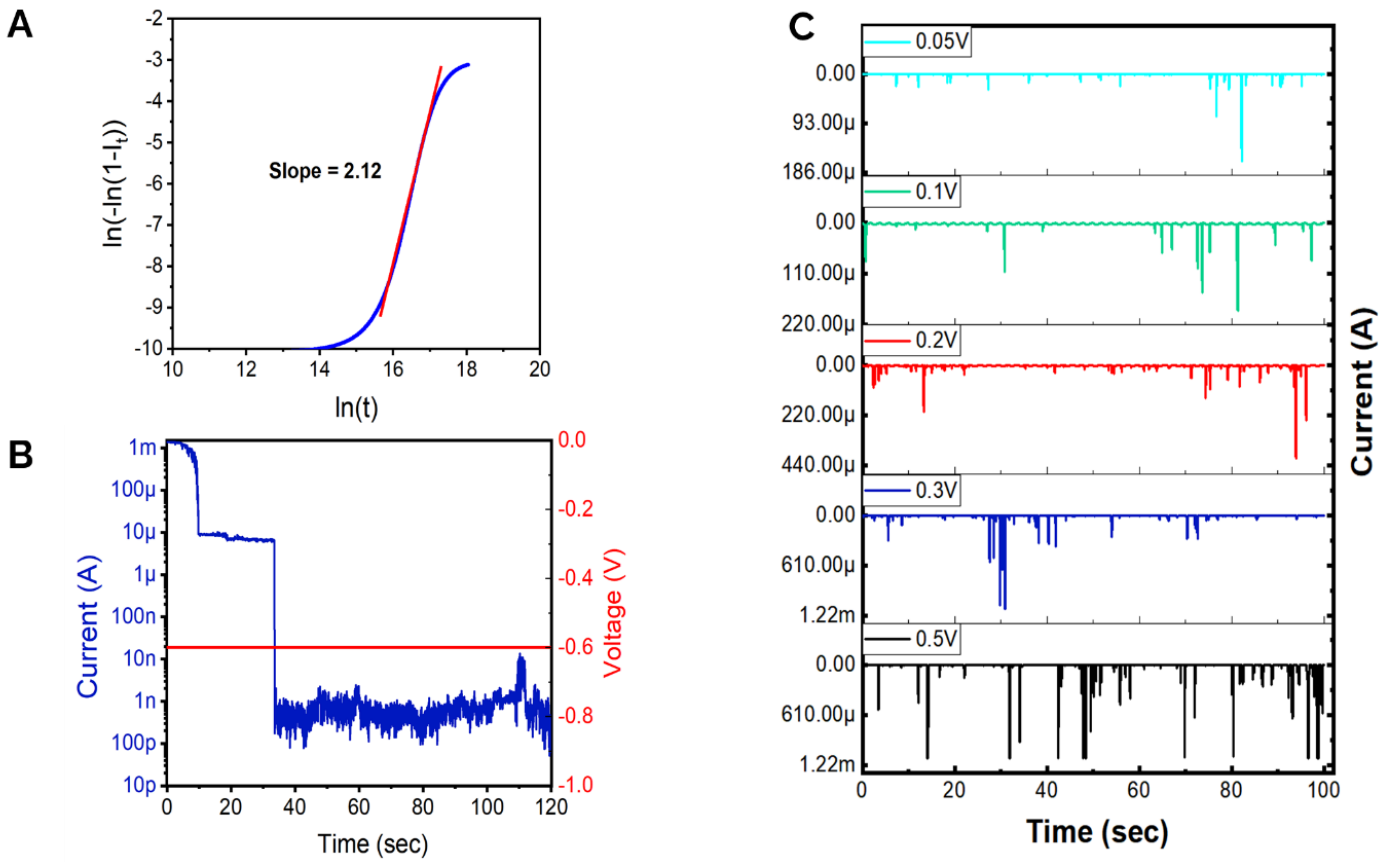


图 S2。A）根据 ln(-ln(1-x) 与 ln(t) 曲线确定 Avrami 指数。B）恒定负偏压（-0.6V）下的电流时间序列图，导致细丝断裂和反转现象。C）速率编码。将脉冲发放率控制为输入电压的函数。脉冲发放率可用于对特定输入电压的信息进行编码。

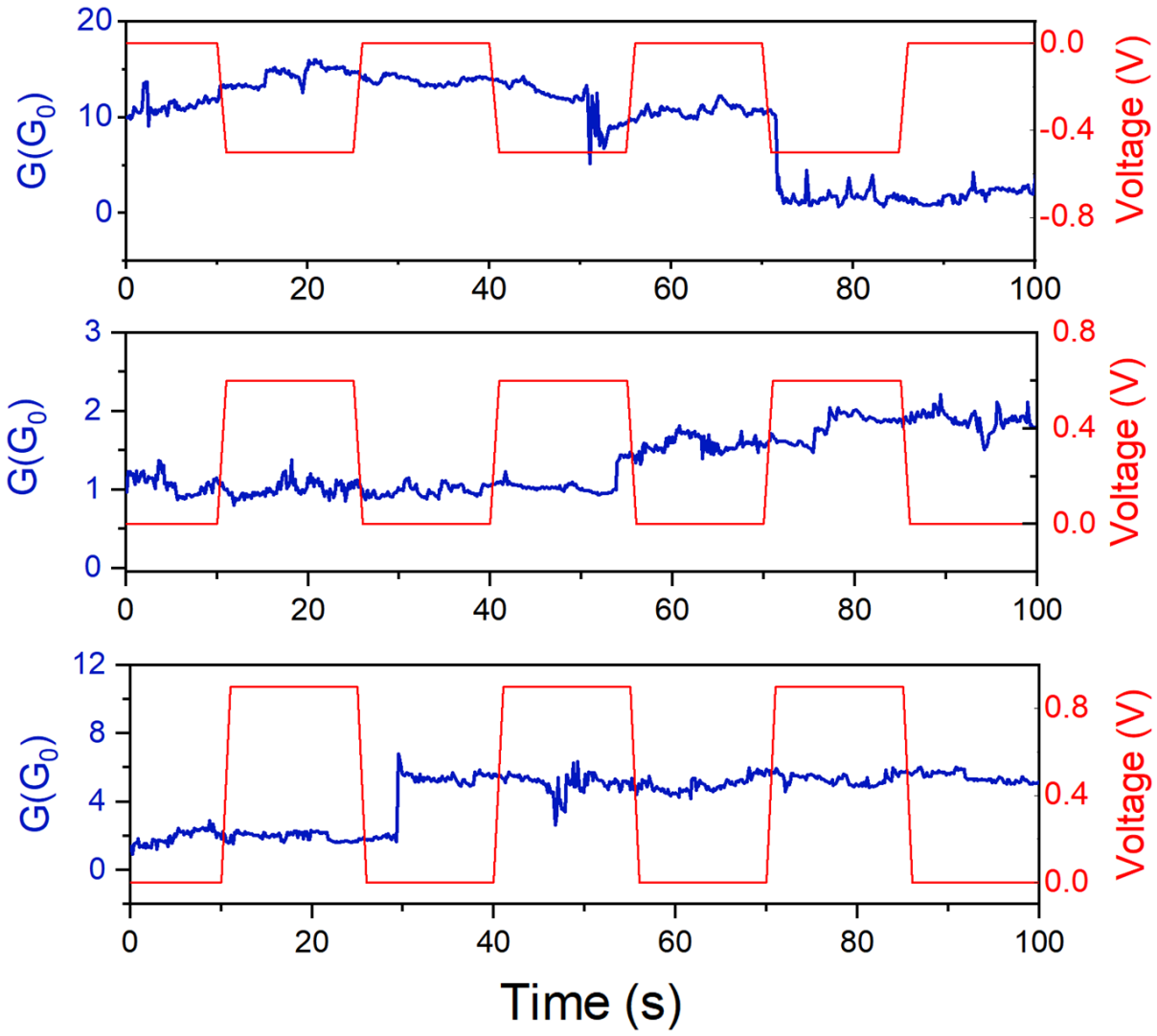


图 S3. 施加长程脉冲刺激时基于扩散的自稳定行为。（上图）在负电压刺激（-0.6V）下，当系统处于较高电导水平时，细丝趋于断裂，系统也随之回到较低电导水平。（中图）施加低于 SET 电压的电压（0.6V）脉冲，可使系统保持稳定构型，电导随时间仅发生微小变化。（下图）施加接近 SET 点的电压（0.8V）脉冲时，由于较高电场下的扩散，系统电导增加。

长程脉冲刺激

在低阻态下施加负电压脉冲（-0.6V）时，细丝趋于断裂，系统会从高电导水平切换并回到低电导水平。当器件处于高阻态时，施加低于 SET 电压的电压（0.6V）脉冲，可使系统保持稳定构型，同时观察到电导随时间仅发生微小变化。施加接近 SET 点的电压（0.8V）脉冲时，由于较高电场下的扩散，系统电导增加。

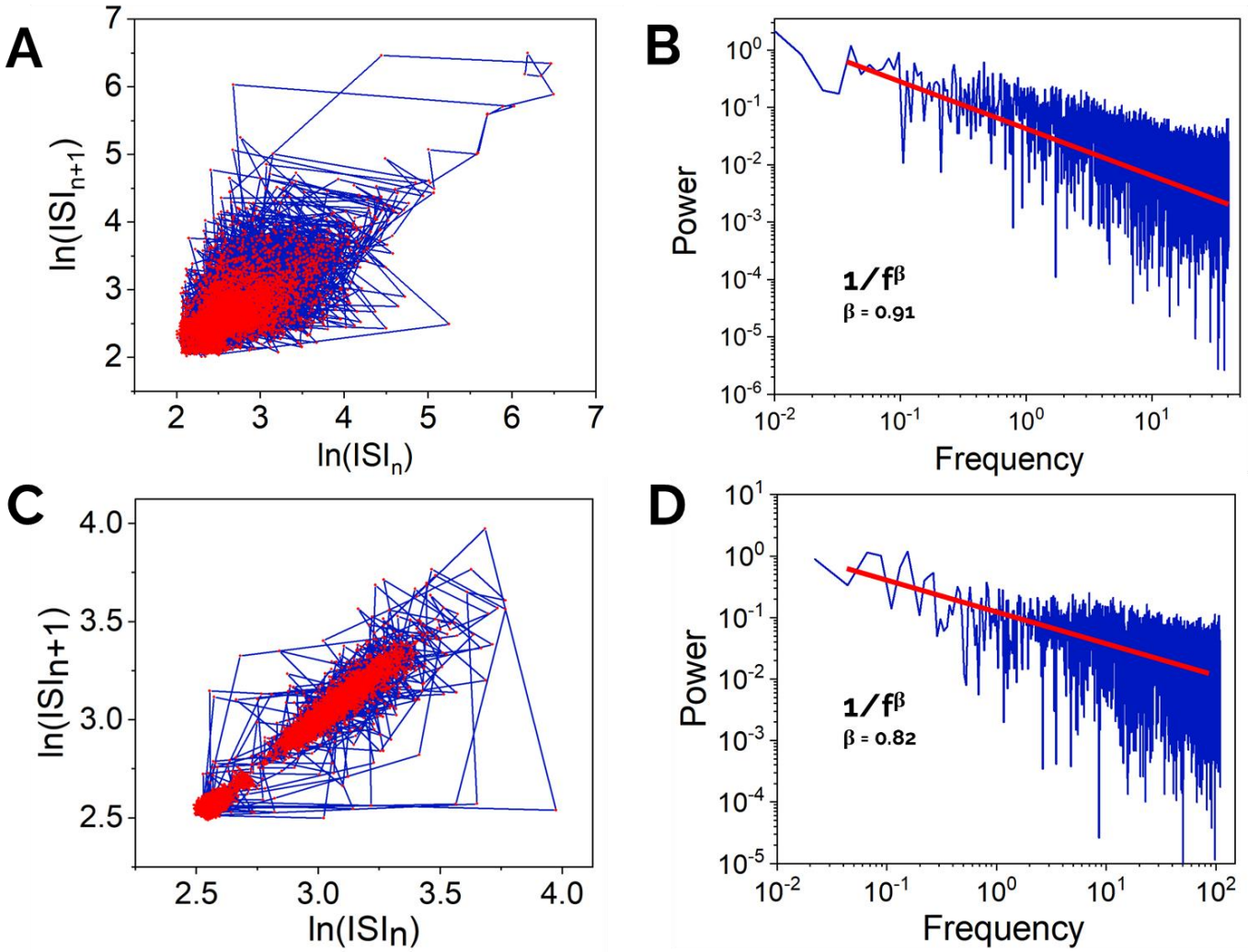


图 S4。（A 和 C）高阻态和低阻态情况下连续脉冲间隔（ISI_n）之间的相关性。（B 和 D）功率分布（A^2/Hz）随频率（Hz）变化的曲线，用于确定高阻态和低阻态的 1/f 噪声及 β指数值。

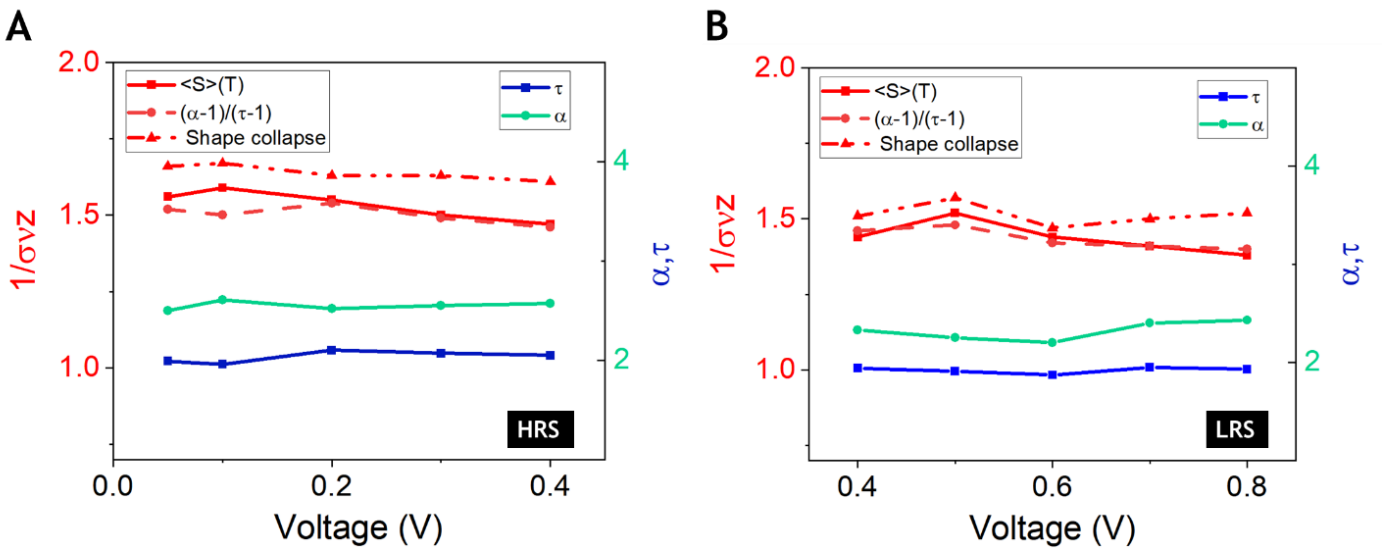


图 S5. 根据 <S>(T) 与 T、(α-1)/(τ-1) 以及形状塌缩分析，估算的 1/συz 随电压的变化。高阻态 (A) 和低阻态 (B) 的临界指数 (α, τ) 随电压的变化趋势。

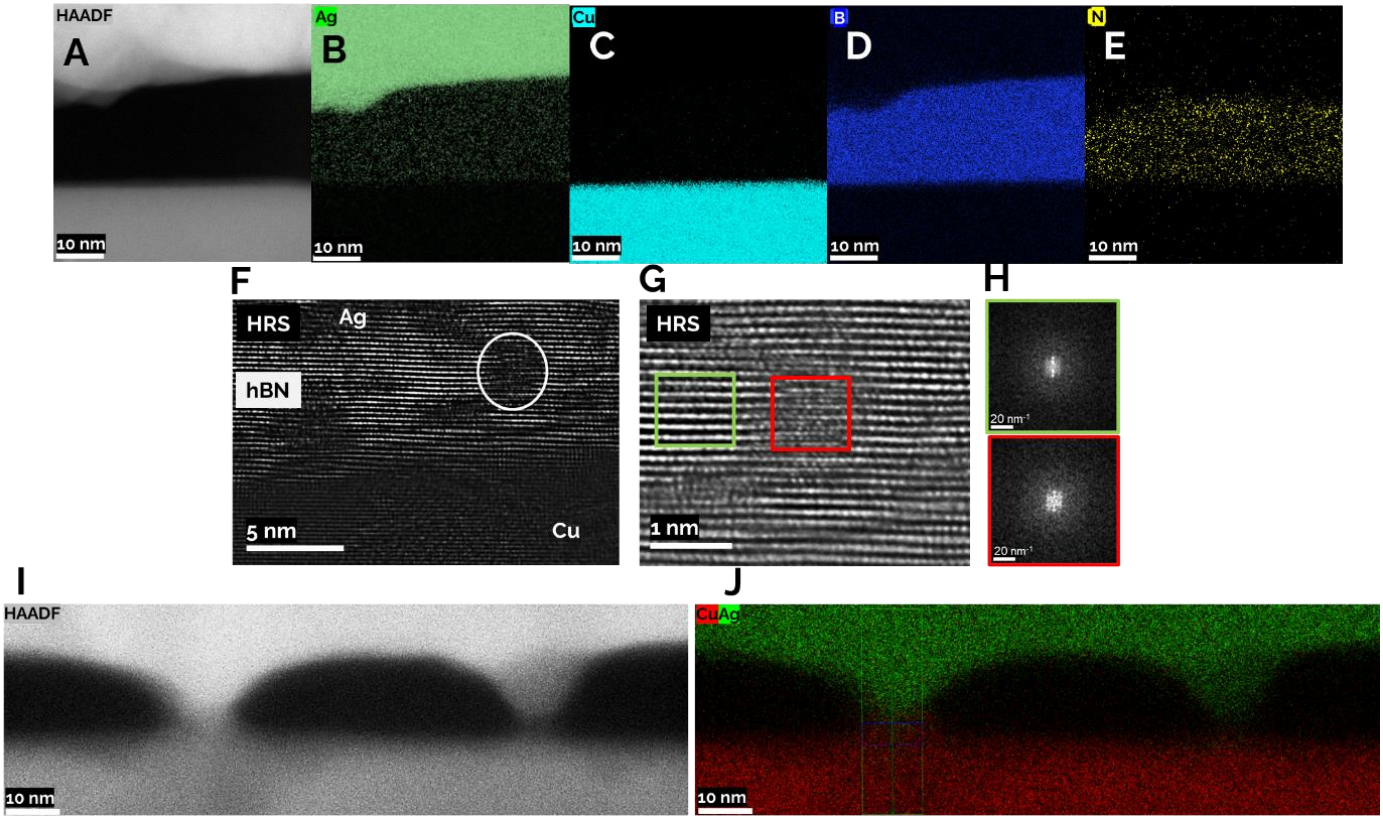


图 S6. (A 至 E) 高阻态下 Ag-hBN-Cu堆叠结构的高角环形暗场扫描透射电子显微镜能量色散X射线谱元素映射。(F) 同一样品经过 10 次开关循环并在高阻态下静置后的横截面高分辨透射电子显微镜图像。(G) F) 中放大显示的区域（白色区域），显示两个六方氮化硼层之间存在插层银平面团簇。(H) G) 中结构完整区域（绿色）和缺陷区域（红色）的快速傅里叶变换（FFT）证实，银插层导致结构结晶度发生变化。(I、J) 低阻态下 Ag-hBN-Cu 的高角环形暗场扫描透射电子显微镜（I）和能量色散X射线谱元素映射（J），显示银细丝的形成。

表 S1. 临界指数

	ΔG	**IEI**	**τ**	**α**	**$1/\sigma\upsilon z$**
HRS	2.59±0.05	1.54±0.05	1.98±0.1	2.61±0.1	1.59±0.03
LRS	2.87±0.05	1.72±0.05	1.93±0.1	2.43±0.1	1.38±0.03
纳米颗粒网络	2.59	1.93	2.05±0.1	2.66±0.1	1.55±0.03
纳米线网络	-	-	2±0.1	2.3±0.1	1.3±0.03
大鼠皮层	-	-	1.74	1.96	1.22
神经元的皮层	-	-	1.69	1.92	1.56

（*误差分析——此标准差用作原始拟合指数误差的度量，并根据参考文献36中介绍的程序进行估算）

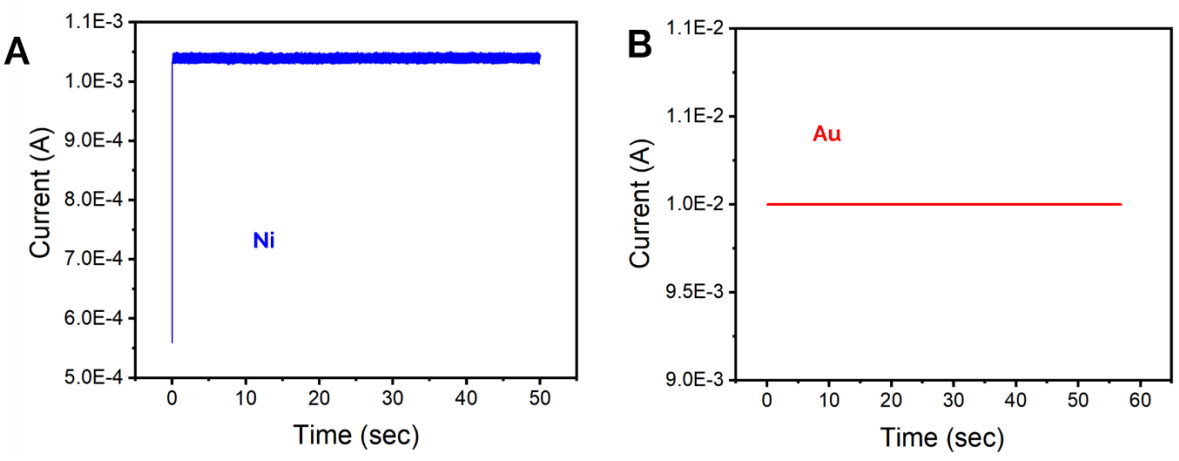


图 S7。A）以镍为顶电极，B）以金为顶电极。以镍和金为顶电极时，未观察到尖峰行为。