arXiv:2303.04277v1 [physics.bio-ph] 7 Mar 2023

揭示双极锥形通道在神经形态离子电子学中的能力

T. M. Kamsma，[1,2] W. Q. Boon，[1] C. Spitoni，[2] 和 R. van Roij[1]乌得勒支大学理论物理研究所，*Princetonplein 5，3584 CC Utrecht*，荷兰[2]乌得勒支大学数学研究所，*Budapestlaan 6，3584 CD Utrecht*，荷兰（日期：2023年3月9日）

充满水性电解质的锥形通道已被提出作为离子电子神经形态电路的理想候选方案。这得益于一种用于描述通道内部动力学的新型解析模型[Kamsma 等人，arXiv:2301.06158, 2023], 、锥形通道相对易于制造，以及通过改变通道长度可实现的广泛记忆保持时间。在本研究中，我们证明，锥形通道的解析模型可推广至具有非均匀表面电荷分布的通道；我们预测，在双极性通道中，即尖端和基部带有异号表面电荷的通道中，这种分布会显著增强电流整流，并使忆阻特性更加明显。此外，我们还表明，在此前提出的一种离子电子电路中使用双极锥形通道，能够呈现神经元通信的典型特征，例如全或无动作电位和尖峰序列生成。然而，双极性通道允许电路参数处于其生物对应物的范围内，且其膜电位与哺乳动物生物动作电位高度吻合，进一步支持了其生物相容性的潜力。

I. 引言

离子电子学是一种令人振奋的新兴平台，旨在利用离子的传输来实现信号传递。与传统电子系统相比，控制受限几何结构中的离子传输具有独特优势，例如能够模拟生物过程，或与细胞和组织进行界面连接 [1–3]。其中一个尤为令人振奋的方向是神经形态（受大脑启发）离子电子电路 [1–6], ，其独特之处在于能够与生物过程高度相似，因为大脑中的信号传递也依赖于离子传输 [11, 12]。离子微流控忆阻器（记忆电阻器）是实现此类电路的一种有前景的候选方案 [7–10, 13–24]。忆阻器的动态特性使其成为生物突触——神经元之间连接——的人工模拟物 [25–29]。过去几年中，人们广泛研究了各种忆阻器，将其作为神经形态电路架构的组成部分 [51–53]。忆阻器不仅可模拟突触，神经元膜中负责信号传递的生物离子通道 [11, 30–43]本身也是忆阻器 [12, 25], ，为受大脑启发的电路带来了更多可能性。鉴于忆阻器有望助力开发能效更高的计算机 [44, 45] ，且具有生物相容性 [26, 46–50], ，近年来，忆阻器和神经形态电路架构的受欢迎程度大幅提升 [51–53]。然而，研究重点大多集中在需要以电子或空穴作为电荷载流子的忆阻器上 [45, 51–53], ，这限制了它们在全离子流体系统中的适用性。

然而，过去几年里，人们对微流控神经形态元件表现出了一些兴趣 [7–10, 13–23]。本研究特别关注的候选对象是含有水性电解质且带有均匀表面电荷的锥形通道，已知这类通道可充当离子电子微流控忆阻器 [13–23]。最近，有研究提出了一种解析模型，定量解释了这类通道中的瞬态浓度极化如何导致易失性电导记忆，并证明这些通道有望用于可通过实验实现的神经形态离子电子电路 [8]。锥形通道表现出忆阻行为的基础功能在于，它们在稳态下具有电流整流特性 [54–58]。尽管带有均匀表面电荷分布的锥形通道是研究离子电子学系统时相对简单且理想的模型系统 [55, 57, 59–72], ，但它们未必是电流整流性能最佳的通道 [73]。事实上，已知表面电荷分布随与尖端距离的变化而改变符号的锥形通道，其电流整流能力远强于带有均匀表面电荷的通道 [74]。因此，这些所谓的双极性锥形通道是推动离子电子（神经形态）系统领域发展的有前景的体系。

在本研究中，我们基于文献 [8, 55] 中的方法，提出了一种解析模型，可定量描述具有非均匀表面电荷分布的锥形通道的稳态和动态行为。我们的模型不含任何自由参数，能够定量预测静态和动态外加电压分别作用下的稳态和瞬态离子电荷电流。了解这些电流-电压关系及其对系统参数的依赖性，有助于有针对性地开发由此类通道构成的新型电路，并更便捷地探索其潜在应用。

近期，一些能够表现出神经元行为的全微流控电路已通过理论和数值方法得到探索。这些电路可由外加电流驱动，由人工离子通道、电池和一个电容器组成 [7, 8]。在文献 [7] 中，研究人员对一种电路进行了建模，其中的准二维纳米通道连接着水性电解质，并产生了一串电压尖峰，这是神经元通信的一个特征 [31–35]。在文献 [8],中，有人提出了一种实验上更易实现的电路，其中包含带均匀表面电荷的锥形通道；该电路也遵循动作电位所特有的全或无定律[11, 30, 31]。本文将展示，双极性锥形通道可用于文献 [8]中的电路，从而产生同样遵循全或无定律的动作电位和脉冲序列，且

其盐浓度和电池电势更符合生物学实际。此外，该电路在脉冲发放期间的膜电势与哺乳动物的典型数值相符，因此具有更好的生物相容性。

II. 双极锥形通道

为了研究具有非均匀表面电荷 eσ(x) 的锥形通道的稳态性质和电压驱动动力学，我们考虑一条长度为 L 的轴对称长锥形通道，其底部半径为 $R_b \ll L$（x = 0 处），尖端半径为 $R_t < R_b$（x = L 处），其中 x 为纵向坐标，如图 1(a) 示意图所示。通道半径表示为 $R(x) = R_b - x\Delta R/L$（$x \in [0,L]$,），中心轴位于径向坐标 r = 0，且 $\Delta R = R_b - R_t$。在通道表面，即 r = R(x) 处，我们假设存在非均匀表面电荷分布 eσ(x)：通道底部和中部带正表面电荷，尖端带负表面电荷，电荷沿通道线性增加，描述如下

$$\sigma(x) = \sigma_0 + \sigma' \frac{x}{L}, \tag{1}$$

在本文中，我们始终设定 $\sigma' = -3\sigma_0/2$ with $e\sigma_0 = 0.1$ enm^{-2}，从而形成双极性（BP）通道。除非另有说明，我们将通道尺寸设为：长度 $L = 10\,\mu m$、底部半径 $R_b = 200$ nm 和尖端半径 R_t =50 nm，由此得到的通道几何结构与先前实验实现的结构相似 [75]。该通道连接两个体相储液池，池中装有不可压缩水溶性1:1电解质，其质量密度为 $\rho_m = 10^3\,kg\cdot m^{-3}$，黏度为 $\eta = 1.01\,mPa\cdot s$，电介电常数为 $\varepsilon = 0.71\,nF\cdot m^{-1}$。电解质中含有带一价电荷 ±e 的离子，其中 e 为质子电荷，扩散系数为 $D_\pm = D = 2\,\mu m^2 ms^{-1}$，这是微流控通道中稀氯化钾的典型值 [76] [77, 78]。在两个储液池的远端，我们施加固定的离子浓度 $\rho_\pm = \rho_b = 2mM$，使平衡时的古伊-查普曼表面电势 $\psi_0(x) = (2k_BT/e)\sinh^{-1}[2\pi\lambda_B\lambda_D\sigma(x)]$ 在底部为 $\psi_0(0) \approx 92$ mV，在尖端为 $\psi_0(L) \approx -61$ mV。这里引入比耶鲁姆长度 $\lambda_B = e^2/(4\pi\varepsilon k_BT)$ 和德拜长度 $\lambda_D = 1/\sqrt{8\pi\lambda_B\rho_b}$。形成的电双层（EDL）以 $\lambda_D \approx 6.8nm$ 的厚度屏蔽表面电荷。两个储液池的远端均保持在恒定且相等的压力 P =P_0。在与底部相连的储液池远端施加电势 V (t)，而另一个储液池的远端接地。该系统中关注的物理量包括电势分布 Ψ(x, r,t) 和离子浓度分布

$\rho_\pm(x, r, t)$，一种电渗流，其速度场为$\mathbf{u}(x, r, t)$，离子通量为$\mathbf{j}_\pm(x, r, t)$，其中$\mathbf{j}_+ - \mathbf{j}_-$为电荷通量，$\mathbf{j}_+ + \mathbf{j}_-$为盐通量，压力分布为$P(x, r, t)$。

上述物理量可以用一组耦合方程来描述。首先，离子通量$\mathbf{j}_\pm$ 和浓度分布 $\rho_\pm$ 满足连续性方程

$$\frac{\partial \rho_\pm}{\partial t} + \nabla\cdot\mathbf{j}_\pm = 0, \tag{2}$$

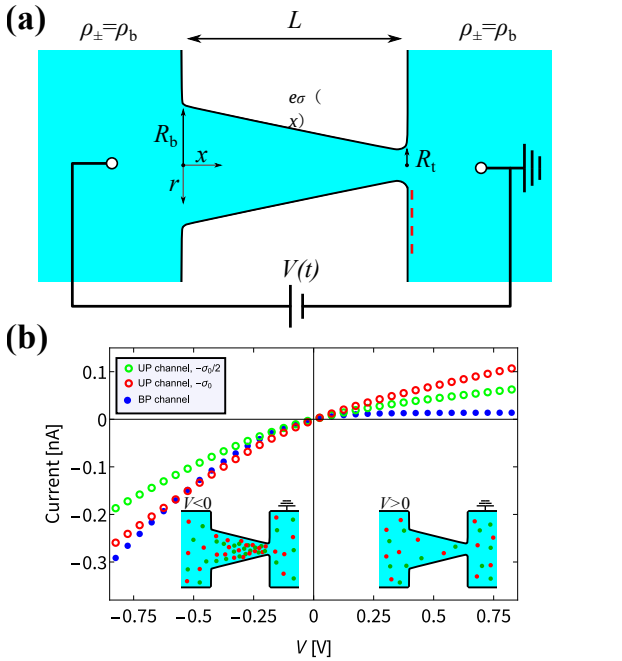

图 1. (a) 方位角对称双极（BP）锥形通道示意图（未按比例绘制），通道长度为 L，底部半径为 R_b，尖端半径为 $R_t < R_b$，连接两个盛有 1:1 水溶液电解质的体相储液池，其体相浓度为 ρ_b。通道壁带有表面电荷密度 eσ(x)，其中 $\sigma(x) = \sigma_0 + \sigma' xL$。这里 $\sigma' = -3\sigma_0/2$，且 $e\sigma_0 = 0.1\ enm^{-2}$，因此底部的表面电荷为正（eσ(0) = eσ$_0$），尖端的表面电荷为负（eσ(L) = −eσ$_0$/2）。在通道两端施加可能随时间变化的电势差 V (t)，驱动离子电流 I(t) = g(V (t),t)V (t)，其中 g(V (t),t) 是本文计算的通道电导。(b) 完整有限元计算 PNPS方程 (2)–(5) 得出的稳态电流 I 随静态电势 V 变化的关系：双极（BP）通道（蓝色）以及其他方面完全相同、表面电荷均匀分布的单极（UP）通道，其表面电荷分别为 $-\sigma_0/2$（绿色）和 $-\sigma_0$（红色）。在通道两端施加正（负）电压会导致离子耗尽（离子富集），如 (b) 的插图所示，这正是锥形通道稳态二极管行为的成因 [55]。

以及能斯特–普朗克方程，

$$\mathbf{j}_\pm = -D_\pm\left(\nabla\rho_\pm \pm \rho_\pm\frac{e\nabla\Psi}{k_BT}\right) + \mathbf{u}\rho_\pm, \tag{3}$$

其中，这三项分别表示菲克扩散、欧姆传导和斯托克斯对流。流体流动 $\mathbf{u}(x, r, t)$ 满足力平衡，其描述由不可压缩流体的斯托克斯方程给出

$$\rho_m\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} = \eta\nabla^2\mathbf{u} - \nabla P - e\rho_e\nabla\Psi; \qquad \nabla\cdot\mathbf{u} = 0, \tag{4}$$

其中，$-e\rho_e\nabla\Psi$ 为电体力，其取决于离子空间电荷密度 $\rho_e = \rho_+ - \rho_-$。该空间电荷密度会影响电势 Ψ(x,r,t)，而电势满足泊松方程

$$\nabla^2\Psi = -\frac{e}{\varepsilon}\rho_e, \tag{5}$$

其中，$\Psi(-\infty,r,t)=V(t)$，且 $\Psi(\infty,r,t)=0$。式（2）–（5）构成泊松–能斯特–普朗克–斯托克斯系统的方程。为使该系统封闭，我们在通道壁上施加以下边界条件：无滑移条件 $\mathbf{u}=0$、阻挡条件 $\mathbf{n}\cdot\mathbf{j}_{\pm}=0$，以及高斯定律 $\mathbf{n}\cdot\nabla\Psi(x,R(x),t)=e\sigma(x)/\varepsilon$，其中 $\mathbf{n}$ 为通道壁的法向量。

在图1(b)中，我们展示了通过有限元（FE）计算得到的稳态电流-电压（I-V）曲线，不仅包括所研究的双极性通道（蓝色），还包括均匀且单极性的（UP）表面电荷密度 $-e\sigma_0/2$（绿色）和 $-e\sigma_0$（红色）通道。施加在通道两端的电势 V 会导致离子的耗尽或富集；对于我们的参数，$V<0$ 会导致盐积累，而 $V>0$ 会使通道中的盐耗尽，如图1(b)的插图所示，从而改变通道电导。这种浓度极化导致了锥形通道中的离子电流整流 [55]。显然，双极性通道表现出显著更强的电流整流：在电压 $V=\pm 0.8$ V 下，电流 $I(V)$ 与 $ICR=|I(-0.8\,\mathrm{V})/I(0.8\,\mathrm{V})|$ 的比值，对于双极性通道（蓝色）可高达 $ICR\approx 21$；而对于表面电荷分别为 $-\sigma_0/2$（绿色）和 $-\sigma_0$（红色）的 UP 通道，该比值则分别低至 $ICR\approx 3$ 和 2.4。

III. 双极性通道的解析近似

对于此处关注的系统，无法在稳态下对完整的 PNPS方程（2）–（5）进行解析求解。然而，通过采用几项合理的假设，我们可以对其进行简化，从而得到一些闭式解析描述 [55]。假设德拜长度相较于通道半径较小，即 $\lambda_D \ll R(x)$，则可近似认为，对于所有距离表面至少数个 λ_D 的径向位置，盐浓度 $\rho_+(x,r)+\rho_-(x,r)=\rho_s(x,r)\approx\rho_s(x)$ 与电势 $\Psi(x,r)\approx\Psi(x)$ 均不随径向位置变化。在此假设下，如参考文献 [55], 所示，可对薄层平均电场 $-\partial_x\Psi(x)$ 和总盐通量 $j_s(x,r)=j_+(x,r)+j_-(x,r)$ 进行径向积分，从而得到截面平均电场的表达式

$$-\partial_x\overline{\Psi}(x)=\frac{V}{L}\frac{R_b R_t}{R^2(x)}, \tag{6}$$

以及穿过通道的总盐通量 $J_x(x)=2\pi\int_{R(x)}^{0} \mathrm{d}r\, r\mathbf{j}_s(x,r)\cdot\hat{\mathbf{x}}$

$$J_x(x)=-D\left(\pi R^2(x)\partial_x\overline{\rho}_s(x)+2\pi\sigma(x)\frac{eV}{k_B T}\frac{R_t R_b}{R(x)L}\right) + Q(V)\overline{\rho}_s(x), \tag{7}$$

电渗流体体积流量 $Q(V)=-\pi R_t R_b\varepsilon\psi_{\mathrm{eff}}V/(\eta L)$，其表达式与 UP 通道的流体流动表达式类似，[55] 区别仅在于表面电势项 ψ_{eff}。对于 BP通道，非均匀表面电荷如何决定电渗流并不显而易见。对于我们的标准参数集，我们取 $\psi_{\mathrm{eff}}\approx -25\mathrm{mV}$ 作为拟合参数，我们将在第 IV 节进一步讨论。式（7）分别表示盐通量的扩散、传导和对流分量。在稳态下，条件 $\partial_x J(x)=0$ 必须成立，因此对于给定的 $\sigma(x)$、$R(x)$ 和 $Q(V)$，可得到一个关于未知的径向平均盐浓度分布函数 $\rho_s(x)$ 的微分方程。在参考文献 [55] 中，该微分方程针对具有均匀表面电荷的锥形通道求解，边界条件为 $\rho_s(0)=\rho_s(L)=2\rho_b$。此处我们考虑表面电荷分布由式（1）给出的情形。通过对给定静态电势 V 求解 $\partial_x J(x)=0$，可得到径向平均盐浓度的如下表达式

$$\overline{\rho}_s(x,V)=2\rho_b-\frac{1}{\mathrm{Pe}/V}\frac{2e(\sigma_0\Delta R+\sigma' R_b)}{k_B T R_t^2} \left(\frac{R_b(1-x/L)}{R(x)}-\frac{e^{-\mathrm{Pe}\frac{(1-x/L)R_t}{R(x)}}-1}{e^{-\mathrm{Pe}\frac{R_t}{R_b}}-1}\right), \tag{8}$$

其中 $\mathrm{Pe}=Q(V)L/(\pi D R_t^2)$ 是窄端处的佩克莱数。请注意，对于仅由电压驱动流动、没有压力驱动贡献的情况，$Q(V)=-\pi R_t R_b\varepsilon\psi_{\mathrm{eff}}V/(\eta L)$ 与 V 成正比，因此式 (8) 中出现的比值 Pe/V 与静态势 V 无关。在第 IV 节中我们将看到，对于我们的情况，$\psi_{\mathrm{eff}}<0$ 负外加电压（$V<0$）会使通道中的离子浓度增加（从而提高电导率），而正电势（$V>0$）则会导致离子耗尽和电导率降低；随着 $|V|$ 增大，离子积累和耗尽的影响也会增强。对于 $V>0$，我们将看到，式 (8) 预测的浓度分布甚至可能变为负值，这显然是不符合物理实际的结果，源于式 (8) 所依据的 $\lambda_D \ll R(x)$ 假设失效。不过，我们将在第 IV 节讨论如何仍能确保在较宽电压范围内，电流-电压关系保持良好的一致性。

有趣的是，式（8）表明，只要满足 $\sigma'\neq 0$，它也能解释并预测圆柱形通道中的电流整流现象 [79–81]，因为在这种情况下，即使对于 $\Delta R=0$，式（8）中仍存在非平凡的源项。因此，我们目前的工作提出，应统一对携带均匀或非均匀表面电荷的圆柱形通道和锥形通道中非线性传输的理论。此外，我们注意到，式（8）似乎表明，双极整流机制与锥形整流机制可能相互抵消，甚至在 $\sigma_0\Delta R=-\sigma' R_b$ 时不再产生电流整流（对于我们的线性表面电荷密度分布，这意味着 $\sigma_t/\sigma_b=R_t/R_b$，其中 σ_t 和 σ_b 分别表示尖端和基部处的表面电荷）。这一统一理论的探索将留待未来开展；本文将聚焦于一个范围更受限的参数集，以研究第 V 节中的离子电子神经形态电路。

锥形通道的静态电导可通过将浓度分布视为厚度为 $\mathrm{d}x$、横截面积为 $\pi R^2(x)$ 的一系列电阻薄层来求得。根据公式（6），电场与 $R^2(x)$ 的倒数成正比，因此每个薄层对电阻的贡献为

$(g_0\rho_s(x)/(2\rho_b))^{-1}\,\mathrm{d}x$，其中均匀通道的电导为 $g_0=(\pi R_t R_b/L)(2\rho_b e^2 D/k_B T)$ [55, 82],，从而得到静态通道电导率

$$g_\infty(V)=g_0\frac{L}{2\rho_b\int_0^L(\overline{\rho}_s(x,V))^{-1}\,\mathrm{d}x}. \tag{9}$$

为了考虑在较高正电压下出现不符合物理规律的负浓度分布的可能性，在对式（9）进行实际（数值）计算时，我们用 $\max\,[0.2\rho_b,\rho_s(x,V)]$ 替换 $\rho_s(x,V)$，这样便通过不允许浓度分布降至体相盐浓度 $2\rho_b$ 的 10% 以下，有效地将表面电导率纳入考虑。这种临时采用的截断当然还可以改进，不过对于我们使用并将在下文讨论的系统参数，截断的具体细节影响有限。此时稳态电流为

$$I(V)=g_\infty(V)V. \tag{10}$$

正如我们将在第 IV 节中展示的，式（10）预测，锥形通道会因离子耗尽（从而电导率较低）而在 $V>0$ 时呈现二极管特性，并因离子积累（从而电导率较高）而在 $V<0$ 时呈现二极管特性。

Ref. [8] 指出，离子积累和耗尽过程并非瞬时发生，而是在扩散时间尺度上进行。为从PNPS方程（2）—（5）推导该过程的时间尺度表达式，进而求得 BP 锥形通道的典型记忆保持时间 τ，我们采用相同的方法。我们考虑两个量：离子总数 $N=\pi\int_0^L R^2(x)\rho_s(x)\mathrm{d}x$，以及流入通道的净盐通量 $J_x(0)-J_x(L)$。根据方程（8），电压 $V=0$ 附近发生小幅电压扰动 V' 时，N 的变化为

$$\left.\frac{\partial N}{\partial V}\right|_{V=0}V'=\frac{\pi}{6}L\frac{e(\Delta R\sigma_0+R_b\sigma')}{k_B T}V'\equiv\alpha V', \tag{11}$$

其中，$\alpha<0$ 对于我们的双极性通道的标准参数集，这与负（正）电势 V' 下电导增强（减弱）的情况相符。

在 $V=0$ 下，浓度分布处于平衡状态，因此对于小幅电压扰动 V'，我们可以假设 $\bar{\rho}_s(x)=2\rho_b$。在此假设下，方程（7）中的第一项和第三项消失。于是，流入通道的净盐通量 $J_x(0)-J_x(L)$ 由剩余的导电项决定

$$J_x(0)-J_x(L)=2\pi\frac{D}{L}\frac{e(\Delta R\sigma_0+R_b\sigma')}{k_B T}V'\equiv\gamma V', \tag{12}$$

其中 $\gamma<0$ 适用于我们所选取的参数。因此，离子耗尽或积累所需的典型时间，也就是典型的记忆保持时间尺度，可近似表示为 $\tau=\alpha/\gamma$。由此得到的纯扩散时间尺度或许会令人惊讶：

$$\tau=\frac{L^2}{12D}, \tag{13}$$

与 UP 通道的表达式相同 [8],，该表达式值得注意的是包含了公式（7）中的导电项，通过这些项公式（13）由此得到，与参考文献 [8] 中的结果不同。对于我们的标准参数集，我们得到 $\tau\approx 4.17\mathrm{ms}$。假设 $\partial_t g(V(t),t)\propto g_\infty(V(t))-g(V(t),t)$，这一假设此前已被证明有效 [8, 9, 83],，我们便可将给定外加电压 $V(t)$ 下的时变电导 $g(V(t),t)$ 描述为

$$\frac{\partial g(V(t),t)}{\partial t}=\frac{g_\infty(V(t))-g(V(t),t)}{\tau}, \tag{14}$$

电流 $I(t)$ 为

$$I(t)=g(V(t),t)V(t). \tag{15}$$

尽管方程 (9) 需要通过数值方法求解，我们仍将方程 (8)、(10) 和 (15) 分别称为电压依赖的盐浓度分布、稳态电流和时变电流的解析近似（AA）。在第 IV 节中，我们将通过对 PNPS 方程 (2)-(5) 进行完整的有限元计算，验证这三个方程。

IV. 有限元验证

在第 III 节中，我们推导了电压依赖的盐浓度分布、稳态电流和时变电流的解析近似。在此，我们将通过对基础 PNPS 方程 (2)-(5) 进行完整的有限元计算，验证这些结果。本节中，我们将始终采用标准参数集，并改变外加电压。首先，在图 2(a) 中，对于一系列正、负静态电压 V，我们将方程 (8) 预测的径向平均浓度分布（实线）与有限元计算结果（圆圈）进行比较。对于 $V<0$，我们观察到离子积累，且解析近似与有限元计算结果几乎无法区分，吻合极佳。对于 $V>0$，两者仍具有合理的定性一致性，但定量差异已清晰可见，在较高正电压下尤其明显。有限元计算得到的最高电压（$V=200$ mV，紫色圆圈）下的浓度分布显示，在 $x/L\simeq 0.75$ 处，盐已耗尽至体相浓度的约 30%；当然，此处有限元计算得到的浓度仍严格为正。相比之下，对应的解析近似分布（紫色曲线）低于体相浓度的 10%（由水平线标示），事实上，在 $x/L\simeq 0.75$ 附近甚至变为负值。正如前文所述，高 V 下局部盐浓度极低，导致德拜长度较小的解析近似假设 λ_D（相对于 R_t）失效；我们通过在方程 (9) 中以 $\max\,[0.2\rho_b,\rho_s(x,V)]$ 替换 ρ_s，以一种临时的方式解决了这一问题。

在图 2(b) 中，我们通过公式 (9) 和 (10)（红色）将静态电势 V 下的浓度分布转换为稳态电流-电压关系 $I(V)$，并将其与有限元计算（蓝色）得到的 $I(V)$ 进行比较。两者吻合良好；尤其值得注意的是，两种方法都得到了非常相似的强二极管效应，电流的定量结果也相近。尽管前面提到 AA 在此电压范围内的准确性有所下降，但对于较大的正电势，两者似乎仍然吻合。

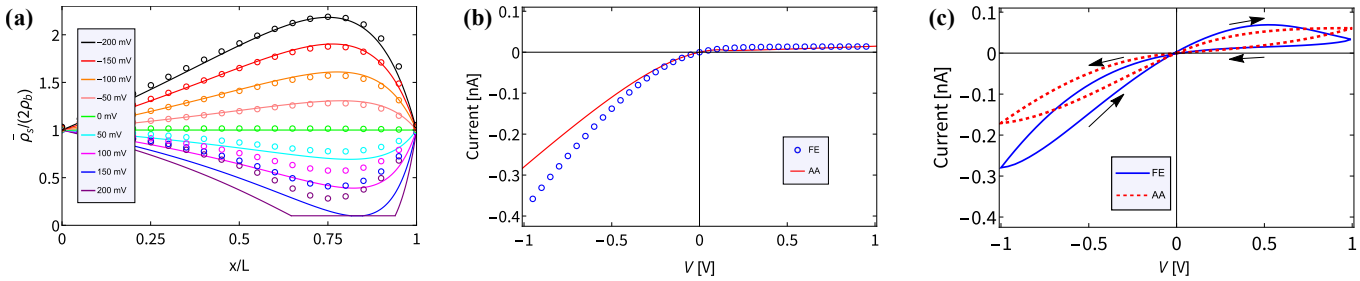

图 2. 对双极锥形通道（见正文）的标准参数集，比较完整 PNPS 方程 (2)-(5) 的有限元计算（FE）与方程 (8)、(10) 和 (15) 的解析近似（AA）。**(a)** 根据方程 (8) 得到的径向平均盐浓度分布（实线）与有限元计算得到的结果（圆圈），对应不同的静态电势$V \in [-200, 200]$ mV，颜色表示其数值。**(b)** 解析近似方程 (10)（红色）和有限元计算（蓝色）预测的稳态电流-电压关系，呈现出强烈的（二极管式）电流整流。**(c)** 施加振幅为 ± 1 V、频率为$f = 45$ Hz 的周期性三角波电势$V(t)$时的电流-电压图，显示出清晰的钳位滞回环。

我们认为，I-V 关系仍然吻合良好，是因为对于较大的静态电势，通道局部几乎完全耗尽盐这一预测，确实与有限元计算结果相符。因此，在公式 (9) 中用 $\max[0.2\rho_b, \bar{\rho}_s(x,V)]$ 替换 $\rho_s(x,V)$，至少对于这组参数而言，能够有效地体现这种耗尽，并确保 I-V 关系在比预期更宽的电压范围内保持吻合。我们指出，我们在第 V 节提出的电路依赖于范围为 ± 0.2V 的电势，因此工作电压处于 AA 的有效范围内。

最后，在图 2(c) 中，我们绘制了施加振幅为 ± 1 V、频率为$f = 45$ Hz 的周期性三角波电势$V(t)$时的电流-电压关系$I(t)$-$V(t)$，这与以下预测相符：$\tau f \approx 0.19$ 会产生最显著的记忆效应 [8]。我们将根据方程 (15) 确定的时变电流（红色）与有限元计算结果（蓝色）进行比较。两种情况下都出现了类似的钳位滞回环，这是忆阻器的标志 [84]。我们注意到，与类似 UP 通道的滞回环相比，该滞回环的开口明显更大 [8], ，这表明 BP通道更强的电流整流会带来更强的忆阻效应。

在第 V 节讨论 BP 锥形通道的离子电子电路之前（这些电路本质上仅涉及电流-电压关系的 AA 近似），我们先考察对于不同静态V，径向平均电场 $-\partial_x \psi(x)$ 和流体流动 $Q(V)$ 在多大程度上能由针对 BP 通道的 AA 准确描述。在 AA 中，$-\partial_x \psi(x)$ 由式 (6) 给出；在当前参数范围 [55] 内，该式对 UP 锥形通道的描述与结果吻合良好。在图3(a)中，我们将式 (6)（实线）预测的不同静态电势V 下的电场与有限元计算结果（圆圈）进行比较。对于负电势和中等大小的正电势，结果吻合良好，这与我们在图 2(a) 中发现的一致；然而，在较大的正静态电压$V \gtrsim 0.2$ V 下，结果明显不符。与前述情况相同，我们认为这是由于较高正电势下离子强烈耗尽所致，这种情况通常出现在$x \approx 2L/3$附近。由此产生的 EDL 重叠，加上纵向依赖性的 $\sigma(x)$ 会导致纵向变化的离子电荷密度在局部积聚，从而在耗尽最强的位置$x \approx 2L/3$附近形成一个峰值，使电场不再无散。在 BP 通道中，由于表面电荷非均匀性，EDL 内必然存在纵向电场；上述解释正是基于这一点。具有相似参数的 UP 通道中则不存在这种纵向电场，因为其表面电荷均匀。此外，UP 通道中的盐耗尽要弱得多，因此假设 $\lambda_D \ll R(x)$ 在更宽的电压范围 [8, 55] 内仍然成立。这或许可以解释为何在图3(a)的$V = 300$mV 条件下，$-\partial_x \psi(x)$ 的峰值并未在参数范围相似的 UP 通道中出现 [55]。

所报告结果所依据的式（8）取决于流体体积流量 $Q(V) = -\pi R_t R_b \varepsilon \psi_{eff} V/(\eta L)$，我们在图3(b)中将其与有限元计算结果进行比较（红色为前者，蓝色为后者）。流体流动 Q(V) 与表面电势 ψ_{eff} 之间的关系并不直观。在 UP 通道中，$Q(V) \propto \psi_0$ 与（均匀）表面电势 ψ_0 [55], 相关，但在双极性通道中，这种关系并不明显，因为表面电势$\psi_0(x)$并不均匀。图3(b)显示，将$\psi_{eff} = -25$ mV作为拟合参数，并依据 Q(V) 的线性区间（即 V $\lesssim 0.4$ V）进行拟合，可得到与有限元计算（蓝色）相当吻合的结果（红色）；其电压范围与电场结果吻合良好的范围大致相同。值得注意的是，根据图3(b)，当正电势较强、V $\gtrsim 0.4$ V 时，双极性通道表现为流体二极管。特别值得注意的是，尖端极性（此处为负）决定了电渗流的方向：V 为正时流动方向为正，V 为负时则为负，尽管通道的大部分区域带有正表面电荷。此外，$\psi_{eff} = -25$ mV 的大小似乎也与尖端的平均表面电势相近，即 $\int_{2/3L} \psi_0(x)dx/(L/3) \approx -34$ mV。尖端极性是否能普遍预测电渗流的强度和方向，以及在其他参数配置下是否也会出现流体二极管行为，仍需对参数空间进行更全面的研究。我们将这一问题留待后续研究；此处则转而聚焦于标准参数集，以便继续

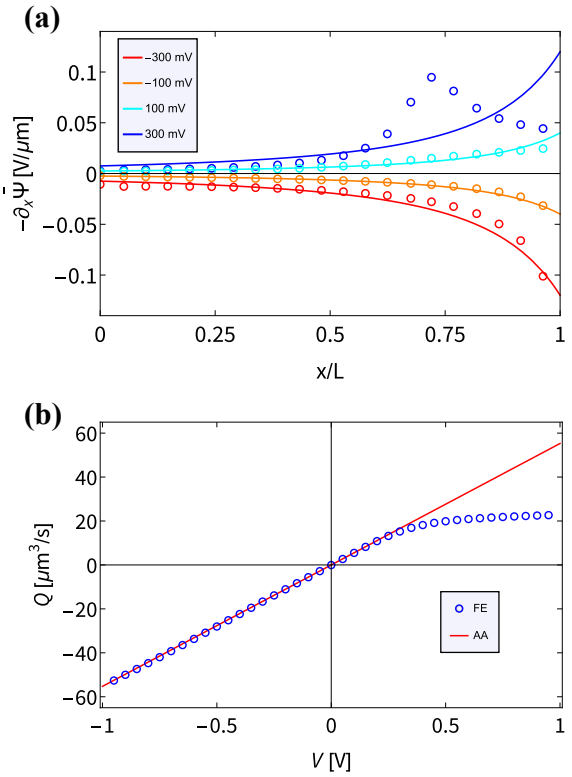

图3. **(a)** 由公式（6）预测的通道内稳态电场 $-\partial_x\Psi(x)$（实线），以及通过 PNPS 方程（2）—（5）的有限元计算，在通道中心轴上测得的电场（圆圈）；计算结果对应不同的静态施加电势 V。**(b)** 稳态流体体积流量 $Q(V)$ 随静态电势 V 变化的关系：根据 $Q(V) = -\pi R_t R_b \varepsilon \psi_{\rm eff} V/(\eta L)$ 预测的结果，其中 $\psi_{\rm eff} = -25\,{\rm mV}$ 是 $Q(V)$ 的线性区间（$V \lesssim 0.4$ V）拟合参数（红色）；以及有限元计算确定的结果（蓝色）。

研究第 V 节中的离子电子神经形态电路。

本节最后总结指出，尽管在相对较大的正电势下，盐浓度分布、电场分布和流体体积流量均存在偏差，但如图2(b)和图2(c)所示，这些偏差对整体$I(V)$关系的影响似乎有限，而这正是离子电子电路领域最为关注的内容。此外，第 V 节所述的离子电子电路工作在这样的电压范围内：解析近似所预测的电场和流体流动与有限元计算结果基本一致。

V。神经形态微流控电路 UIT

接下来，我们将研究 BP 通道在离子电子电路中的应用，具体而言，我们关注的是类脑电路。在生物系统中，神经元信号传递过程依赖于各种离子种类穿过神经元细胞膜进行传输。当受到强度和持续时间足够的刺激时，便会启动一个过程，由于离子传输受到调节，最终导致膜上出现电压尖峰这种传输通过生物离子通道进行。此类电压尖峰称为动作电位（AP），并遵循典型的全或无定律，这意味着对于低于临界阈值[11, 30, 31]的刺激，膜完全不会产生尖峰。神经元还能够产生一系列 AP，称为尖峰序列，这在神经元通信中发挥着至关重要的作用 [31–35]。受 Hodgkin-Huxley（HH）电路 [36–43], 的启发（这类电路将神经元细胞膜视作电路 [36], ），研究者提出了一些离子电子 HH 电路，用以再现神经元尖峰特征 [7, 8], ；其中，文献 [8] 中的电路采用了 UP 锥形通道。由于本文关注的 BP通道相比 UP 通道表现出更显著的忆阻特性，我们期望通过考虑实验上更易获取且更接近其生物对应物的参数，改进文献 [8]所述的电路。

为了重现生物神经元以及参考文献 [8], 中的离子电子电路所呈现的全或无动作电位和尖峰序列，我们考虑参考文献 [8], 中所示的电路架构（见图4(a)），并以电导为g_+、g_- 和g_s 的双极性通道替换 UP 通道，同时采用一组新的电路参数。为了区分这些通道的响应时间，我们将通道长度设为$L_\pm = 1\ \mu$m 和$L_s = 15\ \mu$m。根据公式（13），这对应于两个快速通道的 $\tau_\pm \approx 0.042$ ms 时间尺度，而慢速通道的时间尺度为 $\tau_s \approx 9.4$ ms $\gg \tau_\pm$。与锥形通道串联的电池，其电势对于两个快速通道为$E_\pm = \pm 114$ mV，对于慢速通道为$E_s = -180$ mV。这些电池相当于神经元膜两侧由浓度梯度产生的能斯特电势；值得注意的是，这些电池电势处于典型哺乳动物能斯特电势的范围内 [11]。此外，$\rho_b = 2$mM 的体相浓度接近典型的哺乳动物细胞外 K^+浓度 [11]。在通道两端并联一个电容器，其电容为$C = 0.05$pF，也接近典型的生物学数值；这是因为该电容对应于面积为 $\sim 2-5\ \mu$m^2[85–91], 的哺乳动物神经元膜的电容，其尺寸与通道表面积相近。

图4(a)所示电路中的电势$V_m(t)$等效于神经元膜上的膜电位 [36]，并对施加的刺激电流$I(t)$作出响应。该电流作为控制参数，决定是否发生脉冲发放。根据基尔霍夫定律，可得$V_m(t)$的时间演化

$$C\frac{{\rm d}V_{\rm m}(t)}{{\rm d}t} = I(t) - \sum_{i\in\{+,-,{\rm s}\}} g_i(V_i(t),t)\,(V_{\rm m}(t) - E_i)\,, \qquad (16)$$

其中，电导 $g_i(V_i(t),t)$ 均按照公式（14）演化，并对应相应的 τ_i。$g_{i,\infty}(V_i)$ 的电压自变量 V_i 为 $V_-(t) = V_m(t) - E_-$、$V_+(t) = -V_m(t) + E_+$ 和 $V_s(t) = -V_m(t) + E_s$；如图4(a)所示，电势符号不同对应通道的不同取向。公式（13）、（14）和（16）构成一个封闭方程组，我们通过数值方法求解该方程组，初始条件为 $V(0) = -0.1$ V 和 $g_i(0) = g0,_i$。

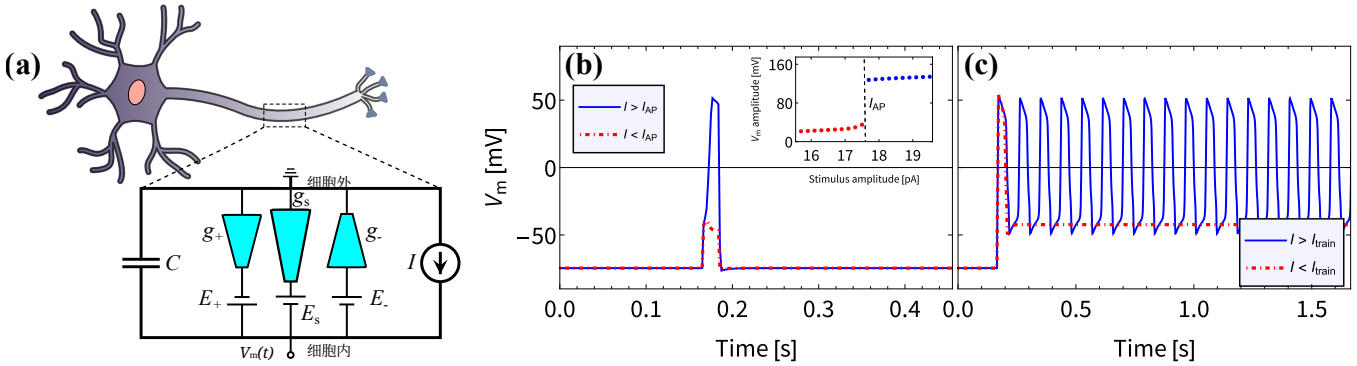

图4. **(a)** 参考文献 [8], 中提出的电路示意图，但此处采用三个双极性通道而非三个单极性通道；这些通道分别与单个电池串联，并与一个电容器并联。通过施加刺激电流$I(t)$，可以驱动电容器两端的电势差$V_m(t)$。**(b)** 施加持续时间为20 ms、强度分别为17.5 pA和17.6 pA的亚临界（红色）和超临界（蓝色）电流脉冲$I(t)$后产生的膜电位$V_m(t)$，该结果由公式（16）确定，显示出全或无的动作电位；如插图所示，当$I_{AP} = 17.5$ pA左右时，尖峰幅度发生跃变。**(c)** 施加强度分别为18 pA和18.1 pA的亚临界（红色）和超临界（蓝色）持续电流$I(t)$后产生的膜电位$V_m(t)$；当$I(t) > I_{train} = 18$ pA时，会出现尖峰序列。动作电位（AP）前后膜电位的幅值与哺乳动物动作电位相近 [31]。

图4(b)和图4(c)显示，我们重现了参考文献 [8], 中所述的相同神经元行为，表现为全或无动作电位（图4(b)）和尖峰序列（图4(c)）。值得注意的是，动作电位前及动作电位期间的膜电位范围为 ~ -70 mV 至 ~ 50 mV，因此其幅值与哺乳动物动作电位 [31]相近。与参考文献 [8]，中采用 UP 通道的电路相比，该电路使用了生物学上更相关的电池电势 E_i 和体相浓度 ρ_b；这一点，加上上述结果，或将成为未来应用中将此类离子电子电路与生物系统集成的关键。

VI. 结论与展望

总之，我们提出了一种理论近似，用于描述充有水性电解质且带有非均匀表面电荷的锥形通道中，电压依赖的稳态电流及其动态导电特性。具体而言，我们研究的通道底部和中部带正表面电荷，尖端带负表面电荷，因而形成双极性通道。与参数相同、带均匀表面电荷的单极性锥形通道相比，该通道的电流整流能力显著增强。对于负值及中等幅度的正静态电势$V \lesssim 0.2$ V，我们发现，盐浓度分布和时变电流的解析近似与 PNPS 方程 (2)-(5) 的有限元计算结果吻合良好，为进一步研究这些通道在（神经形态）离子电子电路中的应用奠定了坚实基础。尽管稳态和时变电流-电压关系在较大电势下也显示出良好的一致性，但当$V \gtrsim 0.2$ V 时，与有限元计算相比，我们确实观察到盐浓度分布和电场分布存在一些定性偏差结果。除此之外，对于较大的静态电势$V \gtrsim 0.4$ V，我们观察到流体体积流量与施加电势之间呈非线性关系，此时双极性通道表现为流体二极管。我们推测，这是因为双极性通道在较大电势下会出现严重的盐耗尽，这意味着作为方程 (8) 基础的小德拜长度假设 $\lambda_D \ll R(x)$ 的准确性会逐渐降低。尽管当前解析模型无法准确预测微观尺度的盐浓度分布和电场分布，但总体而言，稳态和时变电导仍与计算结果吻合良好，这表明我们提出的解析近似是探索双极性通道在离子电子电路中应用的有效工具。

通过将文献 [8, 55] 中的解析方法扩展至双极性锥形通道，我们证明了该方法具有可推广性，并有望用于预测更广泛几何形状和表面电荷分布下的电流整流等特性。推导所得方程表明，本文提出的模型或可直接用于预测双极性圆柱形通道中的电流整流，而不仅限于锥形几何结构；此前已有实验对此进行了验证 [79–81]。此外，由于我们的模型允许表面电荷沿纵轴以任意线性方式增加，因此，除本文所关注的参数集之外，我们的方法还有助于为离子电子学系统确定优化的表面电荷值、分布和几何形状。这些发现表明，该解析方法在离子电子学领域具有普适性、实用价值和应用潜力。

除了对优化和理解单个通道特性的启示外，这项工作还凸显了这种解析近似方法在探索离子电子电路方面的潜力。通过用双极性通道对霍奇金-赫胥黎电路建模，我们能够

展示一种依赖电池电势和盐浓度的系统，其数值与生物对应物相当；该系统能够产生全或无的动作电位和脉冲序列，其电压膜与生物系统中观察到的数值非常相似。这表明，进一步沿此方向开展研究，或有助于开发性能更优的先进离子电子器件。

致谢

本研究是 D-ITP 联盟项目的一部分。该项目由荷兰科学研究组织（NWO）发起，并由荷兰教育、文化与科学部（OCW）资助。T.M.K. 完成了计算；T.M.K. 和 W.Q.B. 构思了本研究；在 C.S. 和 R.v.R. 的指导下，T.M.K. 和 W.Q.B. 发展了相关理论。

[1] S. H. Han, M.-A. Oh, and T. D. Chung,《化学物理评论》3, 031302 (2022). [2] C. Yang, K. Hu, D. Wang, Y. Zubi, S. T. Lee, P. Puthongkham, M. V. Mirkin, and B. J. Venton,《分析化学》91, 4618 (2019). [3] K. Hu, D. Wang, M. Zhou, J. H. Bae, Y. Yu, H. Xin, and M. V. Mirkin,《分析化学》91, 12935 (2019). [4] A. Noy and S. B. Darling,《科学》379, 143 (2023). [5] C. Li, T. Xiong, P. Yu, J. Fei, and L. Mao,《ACS应用生物材料》4, 71 (2020). [6] B. Xie, T. Xiong, W. Li, T. Gao, J. Zong, Y. Liu, and P. Yu,《化学——亚洲期刊》17, e202200682 (2022). [7] P. Robin, N. Kavokine, and L. Bocquet,《科学》373, 687 (2021). [8] T. Kamsma, W. Boon, T. ter Rele, C. Spitoni, and R. van Roij, arXiv 预印本 arXiv:2301.06158 (2023). [9] P. Robin, T. Emmerich, A. Ismail, A. Niguès, Y. You, G.-H. Nam, A. Keerthi, A. Siria, A. Geim, B. Radha, 等, 《科学》379, 161 (2023). [10] T. Xiong, C. Li, X. He, B. Xie, J. Zong, Y. Jiang, W. Ma, F. Wu, J. Fei, P. Yu, 等, 《科学》379, 156 (2023). [11] L. Squire, D. Berg, F. Bloom, S. du Lac, A. Ghosh, N. Spitzer,《基础神经科学》，第3版（学术出版社，2008年），第11章。[12] M. P. Sah, H. Kim, and L. O. Chua,《IEEE电路与系统杂志》14, 12 (2014). [13] D. Wang, M. Kvetny, J. Liu, W. Brown, Y. Li, and G. Wang,《美国化学会志》134, 3651 (2012). [14] Y. Li, D. Wang, M. M. Kvetny, W. Brown, J. Liu, and G. Wang,《化学科学》6, 588 (2015). [15] D. Wang, J. Liu, M. Kvetny, Y. Li, W. Brown, and G. Wang,《化学科学》5, 1827 (2014). [16] D. Wang and G. Wang,《电分析化学杂志》779, 39 (2016). [17] D. Wang, W. Brown, Y. Li, M. Kvetny, J. Liu, and G. Wang,《分析化学》89, 11811 (2017). [18] Q. Sheng, Y. Xie, J. Li, X. Wang, and J. Xue,《化学通讯》53, 6125 (2017). [19] W. Brown, Y. Li, R. Yang, D. Wang, M. Kvetny, H. Zheng, and G. Wang,《化学科学》11, 5950 (2020). [20] W. Brown, M. Kvetny, R. Yang, and G. Wang,《物理化学杂志C》126, 10872 (2022). [21] W. Brown, M. Kvetny, R. Yang, and G. Wang,《物理化学杂志C》125, 3269 (2021). [22] D. Wang, W. Brown, Y. Li, M. Kvetny, J. Liu, and G. Wang,《化学电化学》5, 3089 (2018). [23] P. Ramirez, J. J. Perez-Grau, J. Cervera, S. Nasir, M. Ali, W. Ensinger, and S. Mafe, Applied Physics Letters 118, 181903 (2021). [24] G. Sun, Z. Slouka, and H.-C. Chang,《Small》11, 5206 (2015). [25] L. Chua,《纳米技术》24, 383001 (2013). [26] Y. van De Burgt、A. Melianas、S. T. Keene、G. Malliaras 和 A. Salleo，《Nature Electronics》1，386（2018年）。[27] S. T. Keene、P. Gkoupidenis 和 Y. Van de Burgt，载于《有机柔性电子学》（爱思唯尔，2021年），第531–574页。[28] E. Chicca 和 G. Indiveri，Applied Physics Letters 116，120501（2020年）。[29] D. V. Christensen、R. Dittmann、B. Linares-Barranco、A. Sebastian、M. Le Gallo、A. Redaelli、S. Slesazeck、T. Mikolajick、S. Spiga、S. Menzel 等，《神经形态计算与工程》2，022501（2022年）。[30] K. Lucas，《生理学杂志》38，113（1909年）。[31] B. P. Bean，《自然·神经科学评论》8，451（2007年）。[32] L. Squire、D. Berg、F. Bloom、S. du Lac、A. Ghosh、N. Spitzer，《基础神经科学》第3版（学术出版社，2008年），第6章。[33] G. S. Cymbalyuk、Q. Gaudry、M. A. Masino 和 R. L. Cal- abrese，《神经科学杂志》22，10580（2002年）。[34] E. Marder 和 V. Thirumalai，《神经网络》15，479（2002年）。[35] S. M. Sherman，《神经科学趋势》24，122（2001年）。[36] A. L. Hodgkin 和 A. F. Huxley，《生理学杂志》117，500（1952年）。[37] W. Rall，《综合生理学》，39 （2011 年）。[38] R. Fitz Hugh，《理论生物学杂志》40，517（1973年）。[39] W. Rall，《纽约科学院年鉴》96，1071（1962年）。[40] J. A. Halter 和 J. Clark Jr，《理论生物学杂志》148，345（1991年）。[41] E. Hay、S. Hill、F. Schürmann、H. Markram 和 I. Segev，PLOS计算生物学 7，e1002107（2011年）。[42] M. L. Hines 和 N. T. Carnevale，《神经计算》9，1179（1997年）。[43] M. H. Kole、S. U. Ilschner、B. M. Kampa、S. R. Williams、P. C. Ruben 和 G. J. Stuart，《自然·神经科学》11，178（2008年）。[44] A. Mehonic 和 A. J. Kenyon，《自然》604，255（2022年）。[45] V. K. Sangwan 和 M. C. Hersam，《自然·纳米技术》15，517（2020年）。[46] S. T. Keene、C. Lubrano、S. Kazemzadeh、A. Melianas、Y. Tuch- man、G. Polino、P. Scognamiglio、L. Cinà、A. Salleo、Y. van de Burgt 等，《自然·材料》19，969（2020年）。[47] P. C. Harikesh 、 C.-Y. Yang 、 D. Tu 、 J. Y. Gerasimov 、 A. M. Dar、A. Armada-Moreira、M. Massetti、R. Kroon、D. Bliman、R. Ols- son 等，《自然·通讯》13，1（2022年）。[48] I. Krauhausen、D. A. Koutsouras、A. Melianas、S. T. Keene、K. Lieberth、H. Ledanseur、R. Sheelamanthula、A. Giovannitti、F. Torricelli、I. Mcculloch 等，《科学进展》7，eabl5068（2021年）。[49] P. D. Marasco、J. S. Hebert、J. W. Sensinger、D. T. Beckler、Z. C. Thumser、A. W. Shehata、H. E. Williams 和 K. R. Wilson，《科学机器人学》6，eabf3368（2021年）。[50] L. Yuan、S. Liu、W. Chen、F. Fan 和 G. Liu，《先进电子材料》7，2100432（2021年）。

[51] C. D. Schuman、T. E. Potok、R. M. Patton、J. D. Birdwell、M. E. Dean、G. S. Rose 和 J. S. Plank，arXiv预印本 arXiv:1705.06963（2017年）。[52] T. Venkatesan 和 S. Williams，《应用物理评论》9，010401（2022年）。[53] J. Zhu、T. Zhang、Y. Yang 和 R. Huang，《应用物理评论》7，011312（2020年）。[54] C. Wei、A. J. Bard 和 S. W. Feldberg，《分析化学》69，4627（1997年）。[55] W. Q. Boon、T. E. Veenstra、M. Dijkstra 和 R. van Roij，《流体物理学》34，101701（2022年）。[56] H. S. White 和 A. Bund，Langmuir 24，2212（2008年）。[57] L. Jubin、A. Poggioli、A. Siria 和 L. Bocquet，《美国国家科学院院刊》115，4063（2018年）。[58] I. Vlassiouk、T. R. Kozel 和 Z. S. Siwy，《美国化学会志》131，8211（2009年）。[59] L.-J. Cheng 和 L. J. Guo，《纳米快报》7，3165（2007年）。[60] Z. S. Siwy，《先进功能材料》16，735（2006年）。[61] S. N. Bush、T. T. Volta 和 C. R. Martin，《纳米材料》10，571（2020年）。[62] Z. Siwy、Y. Gu、H. Spohr、D. Baur、A. Wolf-Reber、R. Spohr、P. Apel 和 Y. Korchev，《欧洲物理快报》60，349（2002年）。[63] A. Fuli´nski、I. Kosi´nska 和 Z. Siwy，《新物理学杂志》7，132（2005年）。[64] Z. Siwy、I. Kosi´nska、A. Fuli´nski 和 C. Martin，《物理评论快报》94，048102（2005年）。[65] D. Duleba、P. Dutta、S. Denuga 和 R. P. Johnson，《ACS测量科学Au》（2022年）。[66] W.-J. Lan、M. A. Edwards、L. Luo、R. T. Perera、X. Wu、C. R. Martin 和 H. S. White，《化学研究述评》49，2605（2016年）。[67] I. Vlassiouk、S. Smirnov 和 Z. Siwy，《ACS纳米》2，1589（2008年）。[68] J. Liu、M. Kvetny、J. Feng、D. Wang、B. Wu、W. Brown 和 G. Wang，Langmuir 28，1588（2012年）。[69] C. Kubeil 和 A. Bund，《物理化学杂志 C》115，7866（2011年）。[70] S. Dal Cengio 和 I. Pagonabarraga，《化学杂志》《物理学》151, 044707 (2019). [71] A. R. Poggioli, A. Siria, and L. Bocquet,《物理化学杂志B》123, 1171 (2019). [72] Y. Uematsu,《流体物理学》(2022). [73] X. Huang, X.-Y. Kong, L. Wen, and L. Jiang, Advanced Functional Materials 28, 1801079 (2018). [74] I. Vlassiouk and Z. S. Siwy,《纳米快报》7, 552 (2007). [75] M. L. Kovarik, K. Zhou, and S. C. Jacobson,《物理化学杂志B》113, 15960 (2009). [76] D. R. Lide,《CRC化学与物理手册》, Vol. 85 (CRC press, 2004) Chap. 5. [77] E. Choi, C. Wang, G. T. Chang, and J. Park,《纳米快报》16, 2189 2016( ). [78] M. Shen, H. Yang, V. Sivagnanam, and M. Gijs,《分析化学》82, 9989 (2010). [79] R. Karnik, C. Duan, K. Castelino, H. Daiguji, and A. Majumdar,《纳米快报》7, 547 (2007). [80] H. Daiguji, Y. Oka, and K. Shirono,《纳米快报》5, 2274 (2005). [81] Z. Meng, Y. Chen, X. Li, Y. Xu, and J. Zhai,《ACS应用材料与界面》7, 7709 (2015). [82] B. L. Werkhoven and R. van Roij,《软物质》16, 1527 (2020). [83] V. S. Markin, A. G. Volkov, and L. Chua,《植物信号与行为》9, e972887 (2014). [84] L. Chua,《半导体科学与技术》29, 104001 (2014). [85] L. J. Gentet, G. J. Stuart, and J. D. Clements,《生物物理学杂志》79, 314 (2000). [86] W. Niles, R. Levis, and F. Cohen,《生物物理学杂志》53, 327 (1988). [87] C. Solsona, B. Innocenti, and J. M. Fernández,《生物物理学杂志》74, 1061 (1998). [88] V. L. Sukhorukov, W. M. Arnold, and U. Zimmermann,《膜生物学杂志》132, 27 (1993). [89] G. Major, A. U. Larkman, P. Jonas, B. Sakmann, and J. . Jack,《神经科学杂志》14, 4613 (1994). [90] D. Thurbon, H.-R. Lüscher, T. Hofstetter, and S. J. Redman,《神经生理学杂志》79, 2485 (1998). [91] R. A. Chitwood, A. Hubbard, and D. B. Jaffe,《生理学杂志》515, 743 (1999).