



광 시냅스 및 뉴로모픽 소자 기술

송승호, 김지훈, 김영훈 

성균관대학교 신소재공학부

Recent Progress of Light-Stimulated Synapse and Neuromorphic Devices

Seungho Song, Jeehoon Kim, and Yong-Hoon Kim

School of Advanced Materials Science and Engineering, Sungkyunkwan University, Suwon 16419, Korea

(Received March 7, 2022; Accepted March 10, 2022)

Abstract: Artificial neuromorphic devices are considered the key component in realizing energy-efficient and brain-inspired computing systems. For the artificial neuromorphic devices, various material candidates and device architectures have been reported, including two-dimensional materials, metal-oxide semiconductors, organic semiconductors, and halide perovskite materials. In addition to conventional electrical neuromorphic devices, optoelectronic neuromorphic devices, which operate under a light stimulus, have received significant interest due to their potential advantages such as low power consumption, parallel processing, and high bandwidth. This article reviews the recent progress in optoelectronic neuromorphic devices using various active materials such as two-dimensional materials, metal-oxide semiconductors, organic semiconductors, and halide perovskites

Keywords: Light stimulation, Synapse, Neuromorphic, Optoelectronic, Vision

1. 서론

현재의 컴퓨팅 시스템은 대부분 von Neumann 아키텍처를 기반으로 동작을 한다 [1]. 하지만 von Neumann 기반 컴퓨팅 시스템의 경우 프로세서와 메모리가 분리되어 있어 에너지 효율의 향상 측면에서 제한이 있고 인공지능 컴퓨팅 구현에도 한계가 있다. 이러한 문제를 해결하기 위해 뉴로모픽 컴퓨팅 시스템이 최근 집중적으로 연구되고 있다 [2]. 차세대 컴퓨팅 시스템의 주요 목적 중 하나는 인간 두뇌의 기능을 모방하는 것이다. 두뇌의 복잡한 기능과 구조는 에너지 효율적인 컴퓨팅과 대규모 병렬 처리를 가

능하게 하는데 이는 인간의 뇌에 존재하는 다수의 뉴런과 시냅스로 구성된 신경망을 통해 시냅스 가소성, 단기 기억 (STM)/ 장기 기억(LTM), 스파이크 등의 기능으로 가능하다. 특히 뉴런 간의 연결 강도(synaptic weight)가 자극의 특성에 의존하는 시냅스 가소성은 가장 중요한 신경 기능 중 하나로 간주된다. 또한 STM/LTM 기능은 뇌의 메모리 기능과 관련이 있는데, STM의 경우 기억은 짧은 시간 동안만 지속되며, 자극이 제거되면 기억이 빠르게 상실된다. 반면, 뇌에 반복적인 자극을 입력하면 발생하는 LTM의 경우, 기억은 STM에 비해 상대적으로 더 오랜 기간 동안 저장된다. 또한 STDP 기능 역시 신경망의 필수 기능이다. STDP는 시냅스 전 뉴런과 시냅스 후 뉴런 사이의 연결 강도의 변화를 나타내며, 시냅스 전 뉴런과 시냅스 후 뉴런 사이에 스파이크가 발생하는 시기에 따라 연결 강도가 달라질 수 있다 [3,4].

이와 같이 다양한 두뇌의 핵심 기능을 모방할 수 있는 뉴

✉ Yong-Hoon Kim; yhkim76@skku.edu

Copyright ©2022 KIEEME. All rights reserved.

This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

로모픽 컴퓨팅 시스템을 구현하기 위해 다양한 뉴로모픽 소자가 연구되고 있다. 뉴로모픽 소자의 경우 멤리스터, 트랜지스터, 그리고 멤트랜지스터 등의 다양한 구조를 가진 소자가 활발히 연구되고 있다 [5-9]. 최근에는 뉴로모픽 컴퓨팅 시스템의 에너지 효율성을 더 향상시키고 동작 속도를 증가시킬 수 있는 광 기반의 시냅스 및 뉴로모픽 소자에 대한 연구가 또한 활발히 진행되고 있다 [10,11]. 기존의 전기 신호로 동작하는 뉴로모픽 소자에 비해 광을 입력 신호로 사용하는 광 뉴로모픽 소자는 고속 구동, 고대역폭 및 소비전력이 낮은 뉴로모픽 시스템을 구현할 수 있을 것으로 기대되고 있다 [12]. 이와 같은 광 시냅스 및 광 뉴로모픽 소자의 장점으로 인해 다양한 소재를 기반으로 한 연구들이 최근 많이 보고되고 있다. 구체적으로는 그래핀, MoS₂, black phosphor와 같은 2차원 나노 소재, 금속 산화물, 유기물 및 페로브스카이트 소재 등을 사용하여 다양한 시냅스 및 뉴로모픽 기능을 성공적으로 모방하였다. 이를 이용하여 artificial vision system 및 행동 모방 등을 응용기술로 제시한 바가 있다 [13,14]. 본 리뷰에서는 다양한 소재를 이용한 광 시냅스 및 뉴로모픽 소자에 대한 연구 동향에 대해 다루고자 한다.

2. 광 시냅스 및 뉴로모픽 소자 기술

2.1 광 시냅스 및 뉴로모픽 소자 구현을 위한 소재

광전자 뉴로모픽 소자의 경우 2차원 물질 등 저차원 소재, 금속 산화물, 유기물, 페로브스카이트 등 다양한 소재들을 활용한 연구가 진행되고 있다. 산화물 소재, 특히 산화물 반도체는 높은 전하 이동도 및 안정성 등과 같은 장점을 가지고 있다. 산화물 반도체를 이용한 광 시냅스의 경우 산화물 내에 존재하는 산소 공공이 광 조사 시 이온화되어 전하 농도 및 전기 전도도가 변화하는 특성 등을 이용해 다양한 뉴로모픽 기능을 모사할 수 있다 [15]. 또한 저차원 소재의 경우 벌크와 차별화된 고유한 물성으로 인해 독특한 광반응 특성을 가질 수 있으며 극도로 얇은 두께에서도 높은 광 반응 특성을 가진다는 장점이 있다. 이를 비롯해 저차원 소재 내부 또는 계면에 존재하는 트랩 등을 이용하여 전하 트래핑 기반의 광 시냅스 소자를 구성할 수 있다 [16,17]. 유기물의 경우 용액 공정, 저온 공정 그리고 높은 기계적 유연성 등으로 뉴로모픽 소자를 유연한 기판에 구현하거나 3차원 구조의 기판에 구현할 때 유리한 측면이 있다. 또한 유기물의 광학적, 전기적 특성은 분자구조의 설계에 의해 다양하게 제어할 수 있기 때문에 광 시냅스 및

뉴로모픽 기능 구현에 필요한 다양한 조절이 가능하다 [18]. 그러나 유기물의 경우 대부분 산화 등의 문제로 무기물에 비해 상대적으로 불안정하다. 이에 따라 최근 안정성을 향상시키기 위해 다양한 물질과 하이브리드된 구조의 연구가 진행되고 있다 [19]. 더불어 페로브스카이트 소재에 대한 연구가 많이 진행되고 있다. 페로브스카이트 소재는 우수한 광전변환 재료로 잘 알려져 있어 태양전지 등에 주로 집중적으로 연구되어 왔다 [20]. 이러한 페로브스카이트 소재도 우수한 광 감지 특성으로 광 시냅스 소자에 활용될 수 있다. 하지만 페로브스카이트 소재는 유기물과 유사하게 안정성이 문제가 되기 때문에 무기-유기 하이브리드 소재 등의 연구가 진행되고 있다 [21]. 그럼에도 불구하고 페로브스카이트 소재의 우수한 광학적, 전기적 특성으로 인해 광전자 분야에서 많은 주목을 받고 있다.

3. 광 시냅스 및 뉴로모픽 소자 기술

3.1 금속 산화물 기반 광 뉴로모픽 소자

금속 산화물을 이용한 다양한 광 시냅스 및 뉴로모픽 소자에 대한 연구가 최근 많이 진행되고 있다. 주로 IGZO 등의 산화물 반도체를 이용한 연구가 많으며 이는 IGZO의 광 반응 특성, 그리고 잔류 광전효과(persistent photoconductance, PPC) 등에 기인하게 된다. PPC 특성은 산화물 반도체에 빛을 조사했을 때 발생하는 광전류가 일정 시간 동안 감소하지 않고 유지하는 특성을 말한다. 주로 산화물 반도체 내에 존재하는 산소 공공이나 구조의 변형 등에 기인하는 것으로 알려져 있다. PPC 특성은 산화물 반도체를 구성하는 금속 이온의 종류, 금속 이온들의 비율 등에 따라 달라질 수 있으며, 이는 곧 PPC 특성을 제어할 수 있다는 것을 의미한다. 일반적으로 잘 알려진 산화물 반도체인 IGZO, ZnO 등도 PPC 특성을 가지는 것으로 보고되고 있다. IGZO를 이용한 광 시냅스 및 뉴로모픽 소자 연구는 다양한 구조가 보고되었는데, IGZO층 위에 SnO_x/PEDOT:PSS를 적층한 구조를 사용한 광 시냅스 소자가 보고된 바 있다 [22]. 여기서 IGZO층에 적층된 SnO_x는 IGZO에 존재하는 약하게 결합된 산소 원자를 받아들여 더 많은 산소 공공을 형성하게 된다. 또한, p형 소재인 PEDOT:PSS의 경우 electron-hole pair (EHP)의 재결합을 억제하여 광 조사로 발생한 전도도를 증가시킬 수 있는 것으로 보고되었다. 이를 통해 낮은 강도를 가진 광 자극으로도 다양한 시냅스 특성을 구현하는 것을 보고하였다.

이 외에도 Schottky junction 구조를 이용한 광 시냅스

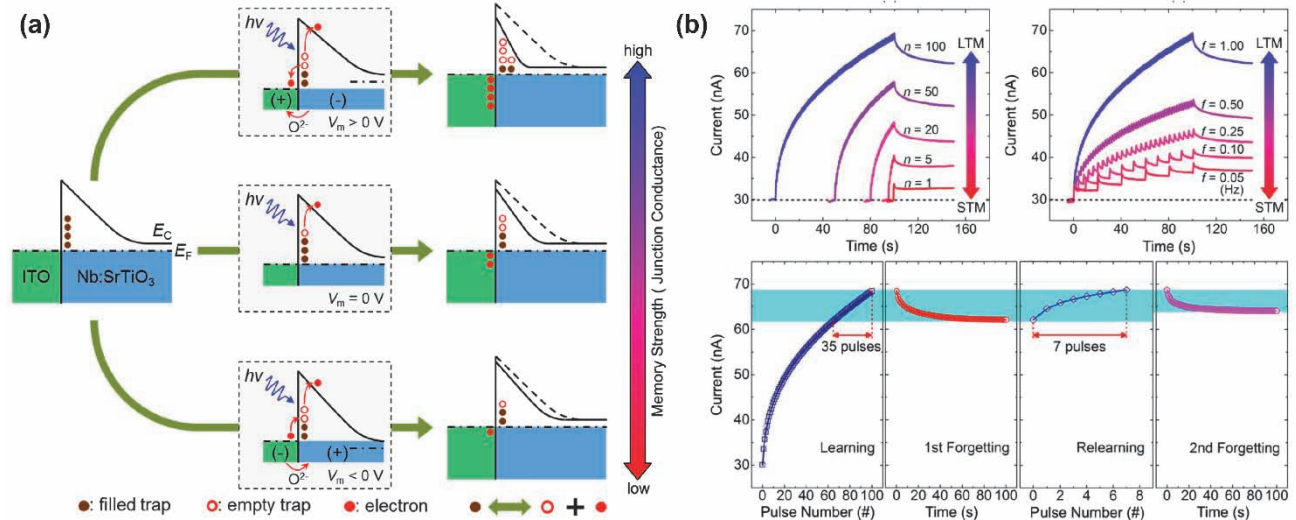


Fig. 1. (a) Operation mechanism of the ITO/Nb:SrTiO₃-based optoelectronic synapse and (b) transition of STM-to-LTM by the number and frequency of the light stimuli, and the behavior of learning-experience. Reprinted (adapted) with permission from [23] (Copyright 2020 American Chemical Society).

에 대한 연구가 보고되었다. ITO/Nb:SrTiO₃로 구성된 소자에서는 ITO와 Nb:SrTiO₃ 간 Schottky junction이 형성되는데 여기서 소자에 가해지는 전압의 방향에 따라서 junction의 전도도, 즉, 메모리 강도가 달라지게 된다 (그림 1). 이 구조를 이용함으로써 빛이 조사되었을 때 PPC와 유사한 특성이 발현되어 STM/LTM, PPF 등 다양한 시냅스 기능을 모사할 수가 있다 [23]. 또한 ITO/Nb:SrTiO₃ 소자의 경우 가시광 영역의 빛에 다르게 반응하기 때문에 RGB 등을 구분할 수 있고, 또한 같은 파장의 빛에서도 강도에 따른 빛 반응 특성이 달라서 다른 반응이 야기된다. 더불어 빛에 반응하는 특성이 인가되는 전압에 따라 서로 달라지기 때문에 전압에 따른 다양한 반응 특성을 얻어낼 수 있다.

산화물 소재 중 강유전성 산화물 소재는 상대적으로 캐리어 수명이 길 수 있기 때문에 광 뉴로모픽 소자에서 중요한 역할을 할 수도 있다. 강유전성 소재로 잘 알려진 HfZrO_x를 활성층으로 사용하여 STP (short-term potentiation), LTP (long-term potentiation), PPF (paired pulse facilitation) 등과 같은 시냅스 거동을 보고하였다 [24]. 구동 시 게이트 전극에 -5 V의 펄스 전압을 인가하여 강유전체인 HfZrO_x가 하향 분극 상태로 되면 빛에 의해 생성된 전자는 정공과 재결합되는 것이 억제된다. 반면, 게이트 전극에 5 V의 펄스 전압을 인가하게 되면 상향 분극이 발생하고 band bending으로 인해 재결합이 유도될 수 있다. 이와 같은 강유전체 소재를 활용하면 기존

소자에 비해 향상된 반응 특성 등을 확보할 수 있다.

3.2 저차원 소재 기반 광시냅스 소자

금속 산화물 외에도 저차원 소재를 활용한 다양한 광시냅스 연구가 보고되고 있다. 저차원 소재는 1D 또는 2D 소재를 주로 의미하며 1D 소재의 경우 탄소나노튜브 (CNT), 2D 소재의 경우 MoS₂나 그래핀이 대표적인 물질이다. CNT를 활용한 광시냅스 소자로는 poly(3-octylthiophene-2,5-diyl) (P3OT)/SWNT를 기반으로 하는 트랜지스터 구조의 비휘발성 메모리 소자가 보고되었다 [25]. 빛이 조사되면 소자의 전기 전도도는 증가하게 되고 증가된 전도도는 SWNT/절연체 계면에서 전자의 트래핑 효과 등으로 인해 유지될 수 있다. 또한 프린팅 공정으로 제조된 SWNT를 이용한 구조의 시냅스 소자도 보고되었다 [26]. Photo-gating 효과로 인해 빛이 조사된 상태에서 빛으로 생성된 정공은 채널층에 트랩되는데 이때 트랩된 정공의 수가 방출된 정공의 수보다 많게 되면 전류가 증가하게 된다. 본 연구에서는 가해 주는 빛의 파장, 조사 시간, 그리고 빛의 강도에 시냅스 가소성의 변화를 분석하였다. 이 외에도 SWNT/그래핀의 헤테로정성 구조를 이용한 소자도 보고된 바가 있다 [27]. 빛이 조사될 때 음의 게이트 전압을 인가하게 되면 그래핀과 SWNT에 존재하던 정공이 트랩에 갇히게 되는데, 이때 높은 에너지 장벽으로 인해 긴 photo-gating 효과가 유도될 수 있다 [27]. 이러

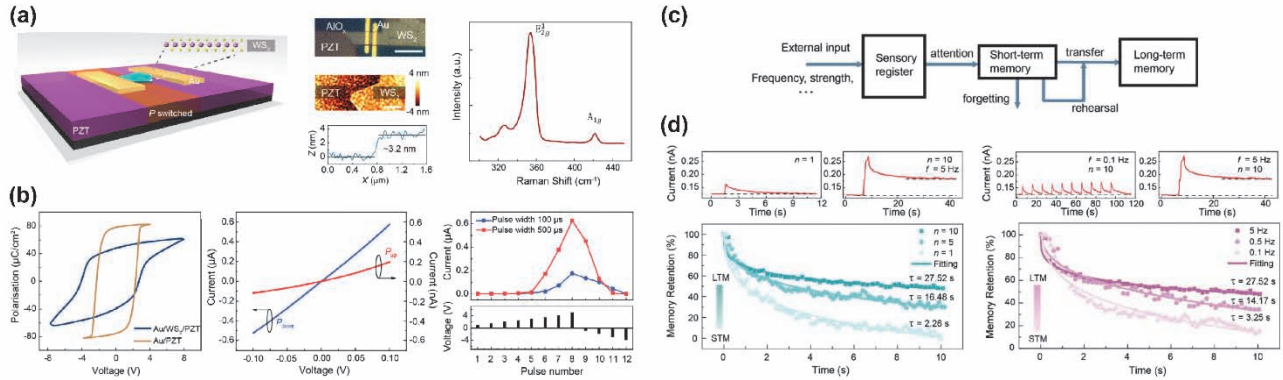


Fig. 2. (a) Device structure, optical image and topography image of PZT/WS₂-based optoelectronic synapse (Raman spectrum of WS₂ flake), (b) ferroelectric properties, current-voltage curve, and conductance state variation as a function of electrical pulses, (c) schematic of human brain memory model, and (d) transition of STM-to-LTM as a function of number and frequency of light pulse. Reprinted (adapted) with permission from [28] (Copyright 2020 American Chemical Society).

한 광 특성을 활용하여 axon multi-synapses network는 spatiotemporal amplitude summation 기능 및 NOR 게이트와 같은 논리 연산을 구현하였다 [27].

이 외에도 2차원 소재인 WS₂와 강유전체 소재인 PbZr_{0.2}Ti_{0.8}O₃ (PZT)와 결합된 광 시냅스 소자도 보고된 바가 있다 [28]. 강유전체 전계효과 트랜지스터 구조를 갖는 이 소자는 PZT 박막 위에 WS₂ 채널을 증착하여 형성하게 되는데, WS₂ 채널은 광 반응 및 게이트 전압에 의한 memristive 스위칭 등을 가능하게 해준다 (그림 2). 특히 WS₂가 상부에 형성된 PZT의 경우 빛의 조사에 의해 상향 분극된 특성이 점차 하향 분극으로 변화하는 것으로 보고되었다. 반면, WS₂가 없는 PZT 영역에서는 동일한 빛에 의해 조사되어도 분극 특성이 변하지 않았다. 이와 같은 2D 소재 및 강유전체 소재의 독특한 광 반응 특성으로 인해 다양한 시냅스 기능의 구현이 가능하였다. 구체적으로는 STP, LTP 등의 시냅스 기능의 모사가 가능하였고 이를 이용해 visual 메모리 등의 뉴로모픽 기능을 구현하였다. 즉, 가해 주는 빛의 frequency나 인가 횟수 등을 조절하여 기억되는 메모리의 retention 특성을 제어할 수가 있다 [28].

3.3 페로브스카이트 소재 기반 광시냅스 소자

할라이드 페로브스카이트(halide perovskite) 소재는 고효율 태양전지용 소재로 최근 많은 연구가 된 소재로서 다양한 광전소자로 활용이 가능하다. 이에 유기-무기 할로젠화물 페로브스카이트 기반 멤리스터에 기반한 광 시냅스 기능 모사 연구가 보고되었다 [29]. MAPbI₃를 이용한 멤리스터 구조의 소자에서는 빛이 조사될 때 V_i/V_f 형태의

억제로 인해 LTD 특성이 모사되는 등 빛의 유무, 인가되는 전압에 따라 광 반응 특성이 제어된다. 이 외에도 methylammonium (MA) halide가 도핑된 페로브스카이트 소재 기반 광 시냅스도 보고되었다. FaPbI₃ 페로브스카이트 소재에 MA halide를 도핑하여 필름의 모폴로지 및 결정성 등을 제어하여 시냅스 기능을 모사하는 연구를 수행하였다 [30]. MA halide를 도핑하게 되면 결정성이 향상되고 가시광 영역에서의 흡수도가 증가하게 된다. 또한 빛의 조사에 의해 발생한 광전류의 지연 감쇄 특성으로 인해 시냅스 특성을 모사할 수 있었으며, PPF 등의 기능을 모사하였다. 또한 AND, OR 등의 로직 기능, classical conditioning 등의 뉴로모픽 기능, 그리고 MNIST 이미지 인식 기능을 구현할 수 있음을 보고하였다.

이 외에도 p-type 소재인 CsPbBr₃ 페로브스카이트 나노입자가 포함된 IGZO 광 시냅스 소자에 대한 연구도 보고되었다 [31]. 상대적으로 큰 밴드갭을 가지고 있는 IGZO의 경우 가시광 영역의 빛에 대해서는 반응성이 낮는데, IGZO에 CsPbBr₃ 페로브스카이트 나노입자를 포함할 경우 일부 가시광 영역에서도 반응을 하게 된다 (그림 3). 이렇게 제작된 광 시냅스 소자의 경우 광반응성이 향상되어 광전류가 증가하게 되고 아울러 빛에 의해 증가된 광전류 값이 인가된 빛 펄스의 숫자에 따라 다르게 감소되는 경향을 보여주었다. 이를 통해 STP, LTP 등의 시냅스 기능을 모사하였다. 또한 입력되는 빛 신호의 주기, 그리고 강도에 따라 서로 다른 광반응 특성들이 야기되어 이를 활용한 응용기술 구현이 가능할 것으로 보고하였다. 응용기술로는 classical conditioning 등을 구현하여 뉴로모픽 응용 가능성을 보여주었다. 이 외에도 PMMA/CsPbBr₃ 구조 등 다양한 구조로 제작된 광 시냅스 및 뉴로모픽 소자들이

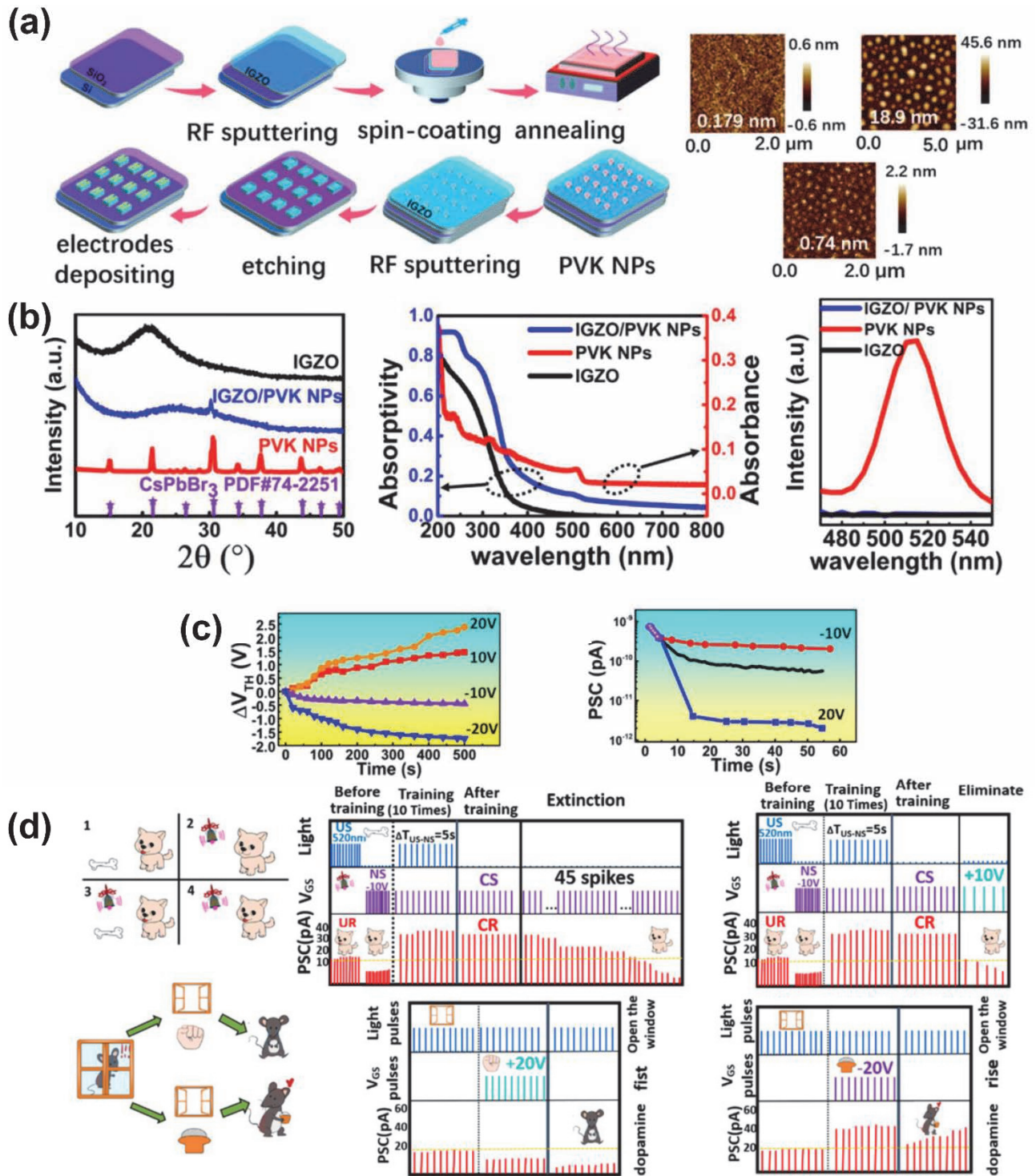


Fig. 3. (a) Fabrication process of IGZO/CsPbBr₃-based transistors and surface analysis data, (b) X-ray diffraction, absorbance, and photoluminescence properties, (c) threshold voltage shift and PSC variation as functions of bias and time, and (d) emulation of classical conditioning. Reprinted (adapted) with permission from [31] (Copyright 2021 American Chemical Society).

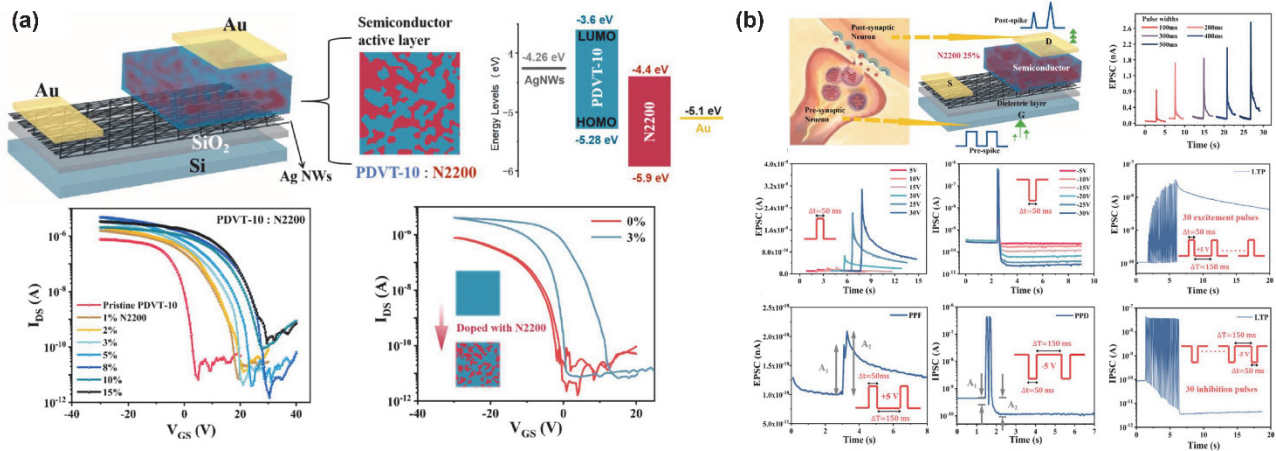


Fig. 4. (a) Device structure, energy level diagram, and current-voltage characteristics of PDVT-10/N2200-based transistors and (b) emulation of synaptic functions using PDVT-10/N2200-based devices. Reprinted (adapted) with permission from [32] (Copyright 2021 American Chemical Society).

보고되고 있어서 주요 활성층 소재로 활용될 수 있는 가능성을 보여주고 있다.

3.4 유기물 소재 기반 광시냅스 소자

유기물 반도체 소재도 트랜지스터 및 광센서, 태양전지로 널리 활용된 소재라서 광 시냅스 소재로 활용이 가능하다. 다양한 고분자 및 저분자 반도체가 존재하고 또 n-type, p-type 소재도 많이 개발되어 있어 유기물 반도체도 광 시냅스 소자 구현에 있어 중요한 소재라고 할 수 있다. 다양한 유기물 반도체 중 태양전지에서 사용하는 헤테로정선 구조를 이용한 광 시냅스에 대한 보고가 있었으며 소재로는 PDVT-10과 N2200을 사용하였다 [32]. 여기서 PDVT-10은 p-type 소재로, N2200은 n-type 소재로 활용되었으며, 구조로는 트랜지스터와 유사한 구조를 사용하였다 (그림 4). 빛을 조사하게 되면 PDVT-10/N2200 층에서 광전류가 발생을 하여 생성된 광전류는 시냅스 특성과 유사하게 지연되며 떨어지는 특성을 발현하였다. Depression의 경우 게이트 전극에 음의 전압을 인가하여 가능하였다. 이런 특성을 활용하여 PPF 등의 기능을 모사하였다.

또한 C8-BTBT 소재를 이용한 다이오드 구조의 광 시냅스 소자에 대한 연구가 진행되었다 [33]. C8-BTBT는 높은 감광도 및 장시간 지속되는 광전류를 특성을 가지도록 최적화되었다. 여기서 시냅스 기능의 모사는 Schottky barrier height의 크기가 빛에 의해 발생하는 exciton에 의해 유도되었으며, 최적화된 소자를 사용하여 STM 및

LTM 등과 같은 뉴로모픽 기능을 모사하였다. 이 외에도 DPPDTT 및 페로브스카이트 양자점 소재 (CsPbBr₃ QD) 하이브리드 구조를 이용한 광 시냅스 소자도 구현되었다 [34]. 빛이 조사될 경우 생성된 전하는 CsPbBr₃에 트랩되어 내부 전위를 발생시키게 되고 결과적으로 photogating 효과와 함께 전하의 재결합을 지연하는 효과를 유도하였다. 개발된 소자는 0.005 V 수준의 낮은 전압에서도 동작이 가능하며 이에 따라 매우 낮은 소비 전력을 확보하였다. 응용소자로는 인간의 시각 기억을 모사하는 것을 제시하였다.

4. 결론

현재의 컴퓨팅 시스템의 기반이 되는 von Neumann 아키텍처는 차세대 인공지능 컴퓨팅 시스템을 구현하는 데 한계를 가지고 있다. 이는 von Neumann 컴퓨팅 시스템의 경우 프로세서와 메모리가 분리되어 있어 에너지 효율 및 고속 연산의 구현하는 데 있어 한계가 있기 때문이다. 이를 해결하기 위해 최근 뉴로모픽 컴퓨팅 시스템 구현을 위한 소자 및 회로가 활발히 연구되고 있으며 본 리뷰에서는 다양한 소재를 활용한 광 시냅스 및 뉴로모픽 소자에 대한 연구 동향에 대해 다루었다. 특히 본 리뷰에서는 다양한 뉴로모픽 소자 중 빛으로 구동이 가능한 광 시냅스 및 뉴로모픽 소자에 대한 최근 연구 동향에 대해 분석을 하였다. 특히 광 시냅스 소재로 활용되는 다양한 소재 중 산화물 반도체, 유기물 반도체, 그래핀 등의 저차원 소재, 그리고 페

로브스카이트 소재 등을 활용한 광 시냅스 소자 및 응용 연구를 다루었다. 현재 다양한 소재 및 구조를 활용한 광 시냅스 소자 및 집적회로, 인공 비전 시스템 등이 개발되고 있어 향후 다양한 형태로 발전할 것으로 기대되고 있는 기술 분야다.

ORCID

Yong-Hoon Kim

<https://orcid.org/0000-0003-0057-1893>

REFERENCES

- [1] M. S. Komar, *Autom. Control Comput. Sci.*, **51**, 701 (2017). [DOI: <https://doi.org/10.3103/S014641161707029X>]
- [2] G. Indiveri, B. Linares-Barranco, R. Legenstein, G. Deligeorgis, and T. Prodromakis, *Nanotechnology*, **24**, 384010 (2013). [DOI: <https://doi.org/10.1088/0957-4484/24/38/384010>]
- [3] G. S. Snider, *Proc. 2008 IEEE International Symposium on Nanoscale Architectures* (IEEE, Anaheim, USA, 2008) p. 85. [DOI: <https://doi.org/10.1109/NANOARCH.2008.4585796>]
- [4] F. Yu, L. Q. Zhu, H. Xiao, W. T. Gao, and Y. B. Guo, *Adv. Funct. Mater.*, **28**, 1804025 (2018). [DOI: <https://doi.org/10.1002/adfm.201804025>]
- [5] D. B. Strukov, G. S. Snider, D. R. Stewart, and R. S. Williams, *Nature*, **453**, 80 (2008). [DOI: <https://doi.org/10.1038/nature06932>]
- [6] Z. Wang, S. Joshi, S. E. Savel'ev, H. Jiang, R. Midya, P. Lin, M. Hu, N. Ge, J. P. Strachan, Z. Li, Q. Wu, M. Barnell, G. L. Li, H. L. Xin, R. S. Williams, Q. Xia, and J. J. Yang, *Nat. Mater.*, **16**, 101 (2017). [DOI: <https://doi.org/10.1038/nmat4756>]
- [7] A. V. Avizienis, H. O. Sillin, C. Martin-Olmos, H. H. Shieh, M. Aono, A. Z. Stieg, and J. K. Gimzewski, *PloS One*, **7**, e42772 (2012). [DOI: <https://doi.org/10.1371/journal.pone.0042772>]
- [8] F. Alibart, S. Pleutin, D. Guérin, C. Novembre, S. Lenfant, K. Lmimouni, C. Gamrat, and D. Vuillaume, *Adv. Funct. Mater.*, **20**, 330 (2010). [DOI: <https://doi.org/10.1002/adfm.200901335>]
- [9] J. Shi, S. D. Ha, Y. Zhou, F. Schoofs, and S. Ramanathan, *Nat. Commun.*, **4**, 2676 (2013). [DOI: <https://doi.org/10.1038/ncomms3676>]
- [10] M. Lee, W. Lee, S. Choi, J. W. Jo, J. Kim, S. K. Park, and Y. H. Kim, *Adv. Mater.*, **29**, 1700951 (2017). [DOI: <https://doi.org/10.1002/adma.201700951>]
- [11] J. M. Shainline, S. M. Buckley, R. P. Mirin, and S. W. Nam, *Phys. Rev. Appl.*, **7**, 034013 (2017). [DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevApplied.7.034013>]
- [12] C. Sun, M. T. Wade, Y. Lee, J. S. Orcutt, L. Alloatti, M. S. Georgas, A. S. Waterman, J. M. Shainline, R. R. Avizienis, S. Lin, B. R. Moss, R. Kumar, F. Pavanello, A. H. Atabaki, H. M. Cook, A. J. Ou, J. C. Leu, Y. H. Chen, K. Asanović, R. J. Ram, M. A. Popović, and V. M. Stojanović, *Nature*, **528**, 534 (2015). [DOI: <https://doi.org/10.1038/nature16454>]
- [13] S. M. Kwon, S. W. Cho, M. Kim, J. S. Heo, Y. H. Kim, and S. K. Park, *Adv. Mater.*, **31**, 1906433 (2019). [DOI: <https://doi.org/10.1002/adma.201906433>]
- [14] M. K. Akbari and S. Zhuiykov, *Nat. Commun.*, **10**, 3873 (2019). [DOI: <https://doi.org/10.1038/s41467-019-11823-4>]
- [15] J. Yao, N. Xu, S. Deng, J. Chen, J. She, H.P.D. Shieh, P. T. Liu, and Y. P. Huang, *IEEE Trans. Electron Devices*, **58**, 1121 (2011). [DOI: <https://doi.org/10.1109/TED.2011.2105879>]
- [16] F. Ghasemi, *Sci. Rep.*, **10**, 11306 (2020). [DOI: <https://doi.org/10.1038/s41598-020-68388-2>]
- [17] C. Choi, M. K. Choi, S. Liu, M. S. Kim, O. K. Park, C. Im, J. Kim, X. Qin, G. J. Lee, K. W. Cho, M. Kim, E. Joh, J. Lee, D. Son, S. H. Kwon, N. L. Jeon, Y. M. Song, N. Lu, and D. H. Kim, *Nat. Commun.*, **8**, 1664 (2017). [DOI: <https://doi.org/10.1038/s41467-017-01824-6>]
- [18] X. Wang, H. Li, Y. Wu, Z. Xu, and H. Fu, *J. Am. Chem. Soc.*, **136**, 16602 (2014). [DOI: <https://doi.org/10.1021/ja5088503>]
- [19] J. Ji and J. H. Choi, *Adv. Mater. Interfaces*, **6**, 1900637 (2019). [DOI: <https://doi.org/10.1002/admi.201900637>]
- [20] O. Malinkiewicz, A. Yella, Y. H. Lee, G. M. Espallargas, M. Graetzel, M. K. Nazeeruddin, and H. J. Bolink, *Nat. Photonics*, **8**, 128 (2014). [DOI: <https://doi.org/10.1038/nphoton.2013.341>]
- [21] Y. H. Kim, H. Cho, J. H. Heo, T. S. Kim, N. S. Myoung, C. L. Lee, S. H. Im, and T. W. Lee, *Adv. Mater.*, **27**, 1248 (2015). [DOI: <https://doi.org/10.1002/adma.201403751>]
- [22] J. J. Yu, L. Y. Liang, L. X. Hu, H. X. Duan, W. H. Wu, H. L. Zhang, J. H. Gao, F. Zhuge, T. C. Chang, and H. T. Cao, *Nano Energy*, **62**, 772 (2019). [DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nanoen.2019.06.007>]
- [23] S. Gao, G. Liu, H. Yang, C. Hu, Q. Chen, G. Gong, W. Xue, X. Yi, J. Shang, and R. W. Li, *ACS Nano*, **13**, 2634 (2019). [DOI: <https://doi.org/10.1021/acsnano.9b00340>]
- [24] M. K. Kim and J. S. Lee, *Adv. Mater.*, **32**, 1907826 (2020). [DOI: <https://doi.org/10.1002/adma.201907826>]
- [25] G. Agnus, W. Zhao, V. Derycke, A. Filoramo, Y. Lhuillier, S. Lenfant, D. Vuillaume, C. Gamrat, and J. P. Bourgoin, *Adv. Mater.*, **22**, 702 (2010). [DOI: <https://doi.org/10.1002/adma.200902170>]
- [26] L. Shao, H. Wang, Y. Yang, Y. He, Y. Tang, H. Fang, J. Zhao, H. Xiao, K. Liang, M. Wei, W. Xu, M. Luo, Q. Wan, W. Hu, T. Gao, and Z. Cui, *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **11**, 12161 (2019). [DOI: <https://doi.org/10.1021/acsnano.9b02086>]
- [27] S. Qin, F. Wang, Y. Liu, Q. Wan, X. Wang, Y. Xu, Y. Shi, X. Wang, and R. Zhang, *2D Mater.*, **4**, 035022 (2017). [DOI: <https://doi.org/10.1088/2053-1583/aa805e>]
- [28] Z. D. Luo, X. Xia, M. M. Yang, N. R. Wilson, A. Gruverman, and M. Alexe, *ACS Nano*, **14**, 746 (2020). [DOI: <https://doi.org/10.1021/acsnano.9b07687>]
- [29] X. Zhu and W. D. Lu, *ACS Nano*, **12**, 1242 (2018). [DOI: <https://doi.org/10.1021/acsnano.8b02086>]

- <https://doi.org/10.1021/acsnano.7b07317>]
- [30] J. Gong, H. Wei, Y. Ni, S. Zhang, Y. Du, and W. Xu, *Mater. Today Phys.*, **21**, 100540 (2021). [DOI: <https://doi.org/10.1016/j.mtphys.2021.100540>]
- [31] H. Duan, L. Liang, Z. Wu, H. Zhang, L. Huang, and H. Cao, *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **13**, 30165 (2021). [DOI: <https://doi.org/10.1021/acсами.1c05396>]
- [32] C. Gao, H. Yang, E. Li, Y. Yan, L. He, H. Chen, Z. Lin, and T. Guo, *ACS Photonics*, **8**, 3094 (2021). [DOI: <https://doi.org/10.1021/acsp Photonics.1c01167>]
- [33] C. Yang, J. Qian, S. Jiang, H. Wang, Q. Wang, Q. Wan, P.K.L. Chan, Y. Shi, and Y. Li, *Adv. Opt. Mater.*, **8**, 2000153 (2020). [DOI: <https://doi.org/10.1002/adom.202000153>]
- [34] D. Hao, J. Zhang, S. Dai, J. Zhang, and J. Huang, *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **12**, 39487 (2020). [DOI: <https://doi.org/10.1021/acсами.0c10851>]