文章编号:1007 - 4252(2024)04 - 0004 - 190　　DOI: 10.20027/j.gncq.2024.0028

基于粗糙介质薄膜的高性能 MEMS 红外光源研究

郭星辰[1,2],王 翊[1],周 宏[1],刘延祥[1],陆仲明[1],李 铁[1,*]
(1. 中国科学院上海微系统与信息技术研究所,上海 200050;2. 中国科学院大学,北京 100049)

摘要:目前,工业领域对于气体监测的需求日益增长,在各种气体传感器中,红外传感器由于其高精度、高选择性的优势得到了广泛开发应用。红外光源是红外传感器中的关键元件,其发射率决定了传感器的性能,传统的发射率提高方法主要为制作表面微结构和添加高吸收率材料等。然而,这些方法会导致成本增加、制造复杂度提高。我们提出了一种新型 MEMS 红外光源,使用粗糙介质薄膜增强红外吸收并降低热传导来提高发射率。粗糙介质薄膜结构通过简单的硬模工艺制作,该方法成本低并与传统的红外光源制造兼容,制造的红外光源在 2-20 μm 内可以达到 99% 以上的发射率。该红外光源的辐射区面积为 1.4 mm×1.5 mm,在 425 ℃的工作温度下功率密度为 118 mW/mm^2,且在 15 Hz 的工作频率下有全调制深度。这些结果表明,这种红外光源在红外气体传感器中的应用具有巨大潜力。

关键词:微机电系统;红外光源;红外气体传感器;粗糙介质薄膜
中图分类号:TN212　　**文献标识码**:A

Research on MEMSInfrared Emitter with High Performance Based on a Textured Dielectric Film

GUO Xingchen[1,2], WANG Yi[1], ZHOU Hong[1], LIU Yanxiang[1], LU Zhongming[1], LI Tie[1,*]
(1. Shanghai Institute of Microsystem and Information Technology, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200050, China;
2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract: Currently, there is a growing demand for gas monitoring in industrial field. Among various gas sensors, infrared sensors have gained widespread development and application due to their advantages of high precision and selectivity. Infrared emitter is the key component in infrared gas sensors, and its emissivity determines the performance of the sensor. Traditional methods to improve the emissivity include the production of surface microstructures and the addition of high-absorption nanomaterials. However, these methods can lead to increased costs and manufacturing complexity. A novel MEMS infrared emitter is proposed, which utilizes textured dielectric films to enhance infrared absorption and reduce thermal

收稿日期:2024-05-07;　　**修订日期**:2024-05-15
基金项目:文章使用的项目号:2020JCJQZD19222.
作者简介:郭星辰, 男, 硕士研究生, 主要研究方向为红外传感器(E-mail:gxc@mail.sim.ac.cn).
通信作者:李　铁, 男, 研究员, 主要研究方向为微纳传感(E-mail:tli@mail.sim.ac.cn).

conduction to increase emissivity. The textured dielectric films are fabricated by a simple hard-molding process, which is low cost and compatible with conventional infrared emitter fabrication. The fabricated infrared emitters can achieve more than 99% emissivity in 2-20 μm. The radiation area of the infrared emitter is 1.4 mm×1.5 mm, it can achieve a working temperature of 425 °C with a power density of 118 mW/mm^2 and has full modulation depth at the working frequency of 15 Hz. These results exhibit that this infrared emitter has great potential for application in infrared gas sensors.

Key words: MEMS; Infrared emitter; Infrared gas sensor; Textured dielectric film

0　引言

在工业生产中,有大量的温室气体和有毒气体被排放,包括 CO_2、CH_4、CO、SF_6等,这些气体如果不能被及时监测,将严重威胁到环境安全和人类生命健康,高效的气体监测系统在工业安全领域必不可少。在各种气体传感器中,红外气体传感器由于其高选择性、抗干扰能力强、使用寿命长和高精度的优势,在气体监测领域中起重要作用[1-4]。

红外气体传感器的元件有红外光源、气室和红外探测器,其中,红外光源是红外传感器中的关键元件,在传感器中提供用于气体检测的红外辐射,红外光源的性能直接影响到气体传感器的精度和灵敏度。红外光源器件可以分为以下几种:机械调制的稳态光源,量子级联激光器,红外发光二极管,MEMS 红外光源。其中,机械调制的稳态光源的体积大,不利于集成。量子级联激光器的成本昂贵,且体积较大[5]。红外发光二极管的调制频率很高,但是制造工艺复杂,成本高,而且光谱范围通常很窄[6]。MEMS 红外光源具有成本低和发射效率高的优势,并易于集成到红外气体传感器中,在红外气体传感器中作为主流应用[7, 8]。

MEMS 红外光源的发光原理是表面的热辐射,因此辐射层材料的发射率对于光源的性能尤为重要。当前提高红外光源发射率的方式有添加高吸收率的黑色纳米涂层和制作选择性的超材料表面等。Syed Zeeshan Ali 等人制作了基于钨加热器的红外光源,使用涂敷的碳纳米管(carbon nanotubes, CNTs)作为辐射层,具有 99% 以上的发射效率,但是 CNTs 涂层的稳定性较差[9]。Liwen Lai 等人制作了基于 CNTs 薄膜的红外光源,其在红外波段的发射效能良好,且响应时间可以达到几毫秒,但其 CNTs 薄膜需要制备十层交叉堆叠结构,工艺流程较为复杂[10]。Hideki T Miyazaki 等人设计了一种具有超表面发射体的红外光源,在 4.26 μm 和 3.95 μm 具有近乎完美的黑体辐射,但是使用的表面发射体制作方法复杂,成本较高[11]。这些方法都存在各自的缺陷,而采用粗糙介质薄膜制作红外光源是一种可以克服这些缺陷的一种可行的方法[12]。本文中系统地分析了使用粗糙介质薄膜对于红外光源器件的性能增强,设计了器件结构,最后通过实验进行了验证。

1　工作原理

MEMS 红外光源的工作基于黑体辐射原理,器件中的微加热器结构由制作在介质薄膜上的金属电阻制成。当微加热器通电后,焦耳热使得微加热器表面温度上升,从而产生红外辐射。辐射遵循普朗克定律:

$$I(\lambda, T) = \frac{2hc^2}{\lambda^5} \frac{1}{e^{\frac{hc}{k\lambda T}} - 1} \tag{1}$$

其中,I(λ,T)为与波长相关的辐射强度;h 为普朗克常数;c 为光速;λ 为辐射波长;k 为玻尔兹曼常数,T 为黑体温度。将上式在全波长范围进行积分,可以得到总的黑体辐射能量。对于非理想黑体即灰体,定义其辐射能量与黑体辐射能量的比值为发射率 ε,红外光源的热辐射功率可以表示为:

$$W = \varepsilon \sigma A T^4 \tag{2}$$

式中,ε 为红外光源的表面发射率;σ 为斯蒂芬-玻尔兹曼常数;A 为辐射区面积;T 为辐射区的工作温度。当透射率为 0 时,发射率(ε)和吸收率(a)相等,并且和反射率(r)有如下关系[13]:

$$\varepsilon = a = 1 - r \tag{3}$$

通过上述分析可知,提高红外光源的辐射功率可以通过提高表面发射率、增大辐射区面积和提高工作温度的方法来实现。其中,增大辐射区面积会使得芯片的尺寸增大,本文中考虑通过提高表面发射率和提高工作温度的方法来实现红外光源的辐射

功率提高。提高表面发射率也就是提高表面的吸收率,可以通过制作表面超材料、涂覆高吸收率材料和改变表面微结构来实现。考虑到红外光源的低功耗需求,想要提高工作温度,就需要在不增加功耗的同时减少热损耗来实现。本文中提出的基于粗糙介质薄膜的红外光源是可以同时提高发射率和降低热损耗的一种简单有效的方法。

2 方法和制造

2.1 粗糙介质薄膜特性研究

粗糙介质薄膜和平面介质薄膜的特性分析如图1所示。图1(a)是两种薄膜的光学特性分析,平面介质薄膜在光入射时,只会进行一次反射,而粗糙介质薄膜表面的粗糙结构可以在吸收或发射红外光时,在表面发生多次反射,从而实现反射率的降低,并提高表面对光的吸收率和发射率。定义介质薄膜表面材料的光强度反射系数为 η,光在表面反射次数为 N,则光的总反射系数为 $\prod N\ i\eta_i$。在认为介质对折射光可以全吸收的前提下,假设一共有 M 束入射光入射到介质薄膜表面,则介质薄膜总吸收强度可以表示为:

$$I = \sum_{i}^{M} I_{0i}\ 1 - r_i\ = \sum_{i}^{M} I_{0i}(1 - \prod_{j}^{N} \eta_{ij} \qquad (4)$$

其中,i 为入射光,I_{0i} 为入射光强,r_i 为总反射系数,j 为反射次数,η_{ij} 为光强反射系数。由于光强反射系数是小于 1 的值,通过公式可以得到,当光在介质表面的反射次数增加时,总反射系数减小,总的吸收强度将会提高,因此粗糙介质薄膜具有提高吸收率和发射率的特性。

图1(b)中 G_1 和 G_2 分别为平面介质薄膜和粗糙介质薄膜的热传导,其中,粗糙介质薄膜的热传导路径相对于平面介质薄膜更长。由热传导公式计算热传导热量 Q 为:

$$Q = \frac{\lambda A \Delta T}{L} \qquad (5)$$

式中,λ 是材料的导热系数,A 为横截面积,ΔT 为温差,L 为热传导距离。由公式可以得到,当热传导距离增加时,热传导热量会降低。因此粗糙介质薄膜可以通过延长热传导路径来降低热传导并减少热损耗。

对制作粗糙介质薄膜的方法进行了研究。微金字塔硅是一种具有增强光吸收能力并可以等效降低热导率的材料[14],通过在微金字塔硅上生长具有同样表面形貌的二氧化硅和氮化硅介电层,可以制作用于红外光源的粗糙介质薄膜结构。这种粗糙介质薄膜的制作技术工艺简单、成本低,工艺步骤和表面形貌图像如图2所示,具体的制作方法为:

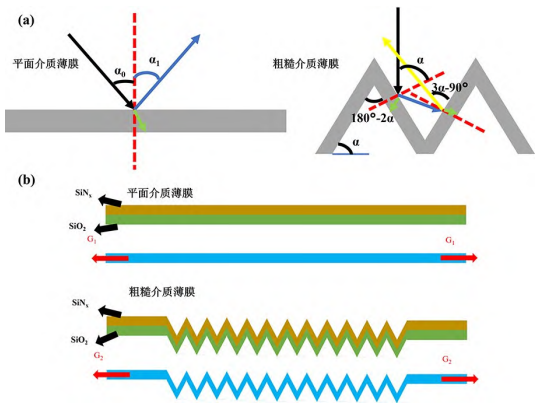

图1 粗糙介质薄膜和平面介质薄膜的特性分析(a)光学特性分析(b)热学特性分析

Fig. 1 Characteristic analysis of textured dielectric films and flat dielectric films (a) optical properties analysis (b) thermal properties analysis

(i)采用(100)单晶硅作为硅衬底;

(ii)高温热氧化生长二氧化硅作为微金字塔生长的掩膜层;

(iii)在 5% 氢氧化钾(KOH),5vol.% 异丙醇(IPA)和去离子水(DI)组成的溶液中,采用湿法腐蚀工艺制作微金字塔结构;

(iv)采用高温热氧化和低压化学气相沉积(LPCVD)在微金字塔上生长二氧化硅和氮化硅介电层薄膜;

(v)采用干法刻蚀得到悬浮的二氧化硅和氮化硅的粗糙介质薄膜。

硅在 KOH 溶液中的湿法腐蚀具有各向异性,KOH 在(111)晶面的腐蚀速率最慢。(100)单晶硅在经过 KOH 腐蚀后,会形成底角为 54.7°的微金字塔结构,54.7°的底角即(111)晶面和(100)晶面的夹角。

通过波动光学的理论可以计算出微金字塔结构对反射率的降低作用。研究考虑垂直于入射面方向的分量,入射光在垂直入射面方向电矢量反射系数 $\vec{r}_s$ 为[15]:

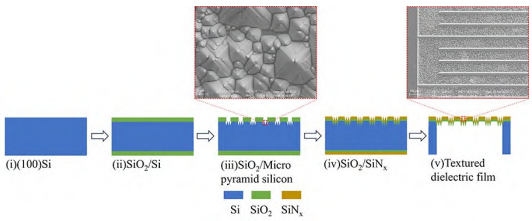

图 2　粗糙介质薄膜制作工艺流程及表面形貌

Fig. 2 The fabrication process and surface morphology of textured dielectric films

$$\vec{r_s} = \frac{cos\alpha - \sqrt{(n + i\eta)^2 - sin^2\alpha}}{cos\alpha + \sqrt{(n + i\eta)^2 - sin^2\alpha}} \tag{6}$$

式中,α 为入射角,n 为折射率的实部,iη 为折射率的虚部。

入射光在入射界面的光强反射系数垂直分量为:

$$R_s = \vec{r_s} \cdot \vec{r_s}^* \tag{7}$$

取硅的折射率 n = 3.4,通过计算可以得到,在光竖直入射时,平面结构的硅对光的反射率为 30%,而具有 54.7°底角的金字塔结构硅对光进行了三次反射,反射系数分别为 0.50,0.31 和 0.93,计算得到总反射率为 14%。

由公式(5)可以得到微金字塔结构对热传导的降低作用。金字塔结构表面的传热路径为平面结构的 1/cos54.7° ≈ 1.7 倍,计算可得当横截面积相同时,金字塔结构的热导为平面结构的 57%。

通过上述分析,粗糙介质薄膜结构具有提高发射率和降低热损耗的作用,可以将粗糙介质薄膜应用到红外光源中提高器件性能。

2.2　基于粗糙介质薄膜的红外光源

设计了基于粗糙介质薄膜结构的红外光源器件,光源器件的尺寸为 2 mm×2 mm,中心辐射区面积为 1.4 mm×1.5 mm。通过查阅资料得到铂的电阻温度系数以及铂、二氧化硅、氮化硅、硅的导热系数后,使用 COMSOL 软件对于红外光源的温度分布情况和应力分布进行了有限元仿真。在仿真中,按照实际器件的尺寸在 COMSOL 中建模,并使用电磁热多物理场和固体力学物理场对红外光源器件在稳态下的温度和应力情况进行了仿真分析。

在 2.5 V 的电压下,红外光源在稳态下的仿真结果如图 3 所示。红外光源的表面中心温度达到了 473 ℃,沿中心线的热应力平均值为 171 MPa,小于二氧化硅和氮化硅薄膜的断裂应力,红外光源可以稳定工作。

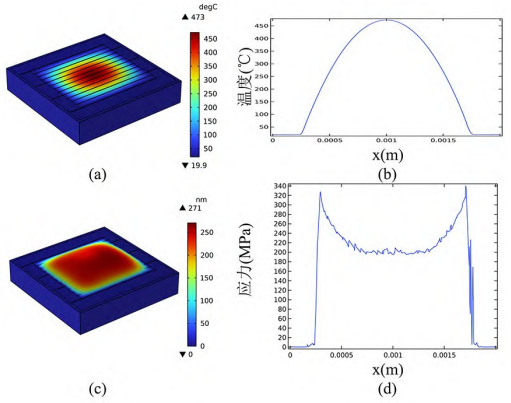

图 3　红外光源的多物理场仿真(a)表面温度分布(b)沿中心线温度分布(c)表面热致形变(d)沿中心线热应力分布

Fig. 3 The multiphysics simulation of the infrared emitter (a) surface temperature distribution (b) temperature distribution along the centerline (c) surface thermal deformation (d) thermal stress distribution along the centerline

2.3　器件的工艺制作流程

在粗糙介质薄膜制作流程的基础上,制定了基于粗糙介质薄膜的红外光源的工艺流程。在(100)单晶硅表面生长二氧化硅作为制作微金字塔硅的掩膜层,在干法刻蚀二氧化硅后,将硅片放入 KOH/IPA 混合溶液中进行腐蚀操作,并得到图形化的微金字塔硅结构。使用缓冲氧化物刻蚀液(BOE)腐蚀掩膜层,重新在硅片表面高温热氧化生长具有和衬底同样形貌结构的二氧化硅薄膜,再使用 LPCVD 生长台阶覆盖良好的氮化硅薄膜,微金字塔的表面形貌保留在薄膜上。然后在薄膜表面生长 Ti/Pt 合金作为电加热器的电阻,再采用 Cr/Au 合金将器件电学连接,以保证在进行电镀操作时,各个器件具有相同的电位。电镀后,将连接用的 Cr/Au 合金层腐蚀去除后,采用干法刻蚀分别刻蚀掉器件背部的二氧化硅、氮化硅以及硅,得到了由二氧化硅、氮化硅薄膜支撑的金属薄膜器件结构。工艺流程和器件结果图片如图 4 所示。

为了进一步提高红外光源器件的性能,常用方法有涂覆高吸收率黑色纳米材料作为辐射层或是在光源器件表面蚀刻介质膜[16]。在一些工作中,制作

超材料实现选择性发射也是提高红外光源性能的方法[17]。但是这些方法会存在工艺兼容性差和器件机械强度较低的问题。在本工作中,考虑到红外光源电加热器的电阻金属材料,采用直接在片上电镀铂黑的方法实现红外光源器件表面辐射层的制作。与其他方法相比,电镀铂黑的方法成本低、工艺流程简单、稳定性好。通过实验测试对比,最终确定了以 15 mA/cm^{2}的电流密度,在铂电镀液中以 80 rad/min 的转速在室温下进行电镀操作。在粗糙介质薄膜红外光源器件表面制作的辐射层形貌如图 5 所示,表面的微结构增加了光在表面反射的次数,从而增加了器件的发射率。

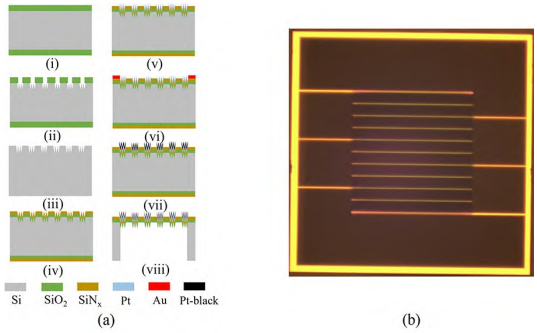

图 4 红外光源的工艺流程和器件照片(a)工艺流程(b)红外光源器件

Fig. 4 The fabrication process and photograph of the infrared emitter (a) the fabrication process (b) the infrared emitter device

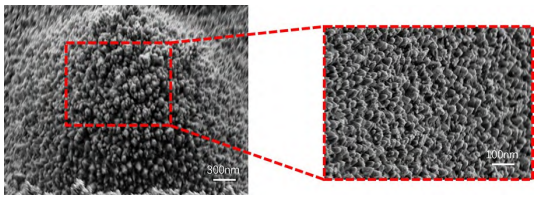

图 5 粗糙介质薄膜红外光源表面辐射层 SEM 图像

Fig. 5 SEM images of the infrared emitter based on the textured dielectric film

3 测试结果与分析

3.1 发射率测试

使用傅里叶红外光谱仪对制作的红外光源器件的发射率进行了测试。由公式(3)可知,通过测试反射率可以得到红外光源的发射率,测试结果如图 6 所示。结果表明,制作的红外光源在 2-20 μm 波长内具有 99% 以上的高发射率,适用于多种红外气体传感器。

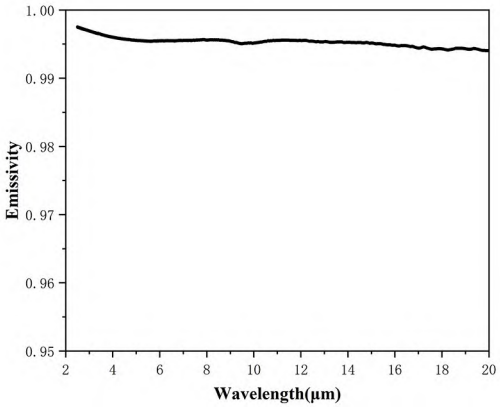

图 6 由反射率测试得到的红外光源发射率

Fig. 6 Emissivity of the infrared emitter obtained from reflectivity measurements

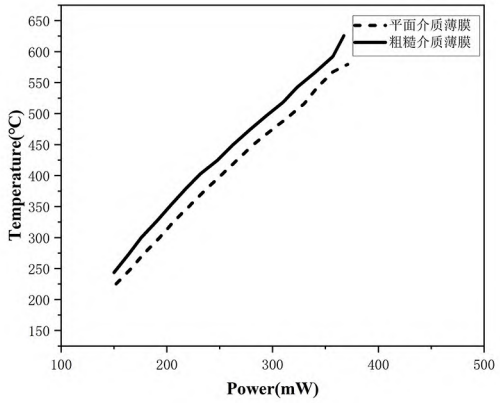

图 7 温度-功耗关系测试

Fig. 7 The test results of temperature-power consumption

3.3 红外发射光谱测试

使用红外光谱仪对红外光源器件的红外发射光谱进行了测试。图 8 显示了功率在 300 mW 下两种红外光源的发射光谱测量结果和粗糙介质薄膜器件相对于平面介质薄膜器件的发射强度增量,测量的光谱范围在 4-15 μm 的波长范围内。发射光谱结果表明,具有粗糙介质薄膜的红外光源器件具有更高的发射强度。这是因为粗糙介质薄膜可以提高发射率并减少热损耗、提高工作温度。

3.4 频率响应特性测试

采用红外探测器对红外光源器件的频率响应进

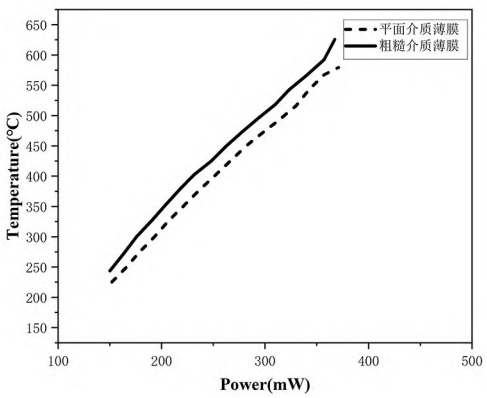

图 8　红外光源发射光谱

Fig. 8 Spectral characterization of the infrared emitters

行了测试。测试中,使用 50% 占空比的方波对红外光源进行驱动,并对探测器输出信号进行了测量。将探测器在某个频率下的输出电压与 1Hz 下的输出电压的比值定义为红外光源在该频率下的调制深度,将输出电压从最小值升到峰峰值 90% 所用时间定义为上升时间、输出电压从峰峰值下降 90% 所用时间定义为下降时间。图 9 显示了测量的红外光源器件的频率响应结果以及 5 Hz 下的粗糙介质薄膜红外光源的响应时间。粗糙介质薄膜的红外光源器件由于热导率较低,因此调制频率也偏低。红外光源的上升时间为 28 ms,下降时间为 25 ms,有较快的响应速度。器件在 15 Hz 之前具有接近全调制深度,可以应用于气体传感器中。

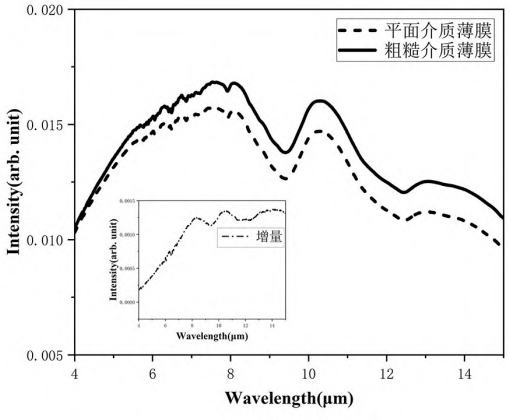

图 9　调制深度和响应时间测试

Fig. 9 The test results of modulation ratio and response time

表 1 为近期报道的 MEMS 红外光源的对比,本文研究的红外光源发射率更高,单位面积消耗的功率更低,具有更高的电-光转换效率。使用 CNTs 的红外光源发射率同样很高,但是 CNTs 在高温下稳定性较低,在红外光源的长期工作中性能较差。

表 1　近期 MEMS 红外光源研究

Table1 Recent research on MEMS infrared emitters

辐射面积 (mm^2)	功率密度 (mW/mm^2)	发射率	材料	文献
直径 1.8	157@400 ℃	2 ~ 16 μm 99%	CNTs	[18]
直径 1.4	130@400 ℃	/	CNTs	[19]
2.4×2.4	179@440 ℃	2 ~ 5 μm98%	黑硅	[20]
直径 0.8	/	2 ~ 14 μm 75%	氧化石墨烯	[21]
1.4×1.5	118@425 ℃	2 ~ 20 μm99%	粗糙介质薄膜铂黑	本文

3.5　可靠性测试

对本文中制作的红外光源器件的稳定性进行了测试。在恒定室温条件下持续测试,并使用数据采集卡记录器件的电阻值变化情况。结果如图 10 所示,器件上电老化后电阻值逐渐趋于稳定,在工作 80 天后仍可以维持工作,具有较长的工作寿命。

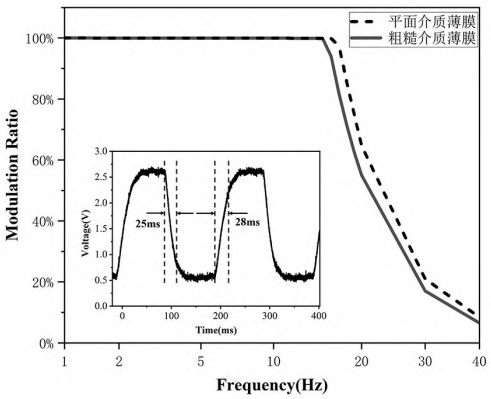

图 10　红外光源长期工作测试

Fig. 10 Long-term tests of the infrared emitter

4　结论

本文提出并研发了一种基于粗糙介质薄膜的 MEMS 红外光源器件。在工作中,对于粗糙介质薄膜的特性进行了分析,验证了粗糙介质薄膜在红外光源上应用的可行性,并设计了制作粗糙介质薄膜的工艺方法。在此基础上,设计了基于粗糙介质薄

膜的红外光源的制作方法,并使用电镀工艺制作器件表面的铂黑辐射层,进一步提高器件的发射率,制得了发射率在99%以上的光源器件。经过测试,相较于平面介质薄膜的红外光源,粗糙介质薄膜的红外光源在同样的功耗下有更高的工作温度和发射强度。通过长期测试得到,制备的红外光源器件具有长期可靠性,可以稳定工作80天以上。本文中设计的红外光源具有低功耗、高发射率、高可靠性的优势,在红外气体传感器中具有很好的应用潜力。

参考文献:

[1]Jha R K. Non-Dispersive Infrared Gas Sensing Technology: A Review[J]. IEEE Sensors Journal,2022, 22(1): 6-15.

[2]Jaworski P, Koziol P, Krzempek K, et al. Antiresonant Hollow-Core Fiber-Based Dual Gas Sensor for Detection of Methane and Carbon Dioxide in the Near- and Mid-Infrared Regions[J]. Sensors,2020, 20(14):3813.

[3]Popa D, Udrea F. Towards Integrated Mid-Infrared Gas Sensors[J]. Sensors,2019, 19(9):2076.

[4]Trieu-Vuong D, Choi I-Y, Son Y-S, et al. A review on non-dispersive infrared gas sensors: Improvement of sensor detection limit and interference correction[J]. Sensors and Actuators B-Chemical,2016, 231:529-538.

[5]Zhibin Z, Lijun W, Zhiwei J, et al. Low-threshold external-cavity quantum cascade laser around 7.2 μm[J]. Optical Engineering,2016, 55(4): 046116.

[6]Shepherd R L, Yerazunis W S, Lau K T, et al. Low-Cost Surface-Mount LED Gas Sensor[J]. IEEE Sensors Journal, 2006, 6(4): 861-866.

[7]Liu X, Tyler T, Starr T, et al. Taming the Blackbody with Infrared Metamaterials as Selective Thermal Emitters[J]. PHYSICAL REVIEW LETTERS,2011, 107(4): 045901.

[8]Lee N, Kim T, Lim J S, et al. Metamaterial-Selective Emitter for Maximizing Infrared Camouflage Performance with Energy Dissipation[J]. Acs Applied Materials & Interfaces,2019, 11(23): 21250-21257.

[9]Ali S Z, Guha P K, Lee C C C, et al. High temperature SOICMOS tungsten micro-heaters[J]. 2006 Ieee Sensors, Vols 1-3,2006: 847-850.

[10]Lai L, Liu P, Zhou D, et al. Rapidly Modulated Wide-Spectrum Infrared Source Made of Super Aligned Carbon Nanotube Film for Greenhouse Gas Monitoring[J]. Advanced Functional Materials,2023, 33(4): 2208891.

[11]Miyazaki H T, Kasaya T, Oosato H, et al. Ultraviolet-nanoimprinted packaged metasurface thermal emitters for infrared CO2 sensing[J]. Science & Technology of Advanced Materials,2015, 16(3): 035005.

[12]He Y, Wang Y, Li T. Simultaneously controlling heat conduction and infrared absorption with a textured dielectric film to enhance the performance of thermopiles[J]. Microsystems & Nanoengineering,2021, 7(1): 36.

[13]Pühringer G, Jakoby B. Modeling of a Highly Optimizable Vertical-Cavity Thermal Emitter for the Mid-Infrared[J]. Procedia Engineering,2016, 168:1214-1218.

[14]Ye X, Zou S, Chen K, et al. 18.45%-Efficient Multi-Crystalline Silicon Solar Cells with Novel Nanoscale Pseudo-Pyramid Texture[J]. Advanced Functional Materials,2014, 24(42): 6708-6716.

[15]梅浩. 新型表面微结构硅及其在太阳能热电系统应用的研究与探索[D]. 重庆大学,2012.

[16]Watanabe H. Applications of Carbon Nanotubes for Black Coatings[J]. Journal of the Technical Association of Refractories,2021, 41(4): 198-203.

[17]王国勋, 纪新明, 周嘉等. 基于表面等离子体效应的MEMS红外辐射源特性研究[J]. 传感技术学报,2008, 08: 1352-1356.

[18]Ali S Z, De Luca A, Hopper R, et al. A Low-Power, Low-Cost Infra-Red Emitter in CMOS Technology[J]. IEEE Sensors Journal,2015, 15(12):6775-6782.

[19]De Luca A, Cole M T, Hopper R H, et al. SOI CMOS MEMS infrared thermal source with carbon nanotubes coating[J]. Procedia Engineering,2014, 87:839-842.

[20]任耀辉, 谭秋林, 欧文等. 基于纳米黑硅的新型MEMS红外光源[J]. 电子元件与材料,2015, 34(5):4.

[21]Li N, Yuan H, Xu L, et al. Radiation enhancement by graphene oxide on MEMS emitters for highly selective gas sensing[J]. ACS sensors,2019, 15(12):6775-6782.