

高透明羧甲基纤维素/纤维素纤维复合薄膜的制备及其力学性能

陈港¹, 胡稳¹, 朱朋辉¹, 刘宇¹, 彭超¹, 方志强^{*1, 2}

(1. 华南理工大学 制浆造纸工程国家重点实验室, 广州 510640;

2. 齐鲁工业大学 制浆造纸科学与技术教育部/山东省重点实验室, 济南 250353)

摘要: 针对传统电子器件衬底柔韧性差、不可生物降解的问题, 研究了以羧甲基纤维素(CMC)和纤维素纤维为原料, 结合抄纸和浸渍工艺, 制备在柔性电子器件领域具有潜在应用的高透明 CMC/纤维素纤维复合薄膜衬底。分别探究了 CMC 与北木纤维的配比和 CMC 分子量对薄膜透明度和力学性能的影响。研究了纤维素纤维的种类(北木、桉木、马尼拉麻和蔗渣纤维)对高透明 CMC/纤维素纤维复合薄膜力学性能的影响。结果表明: CMC 与北木纤维质量比为 7:3、CMC 分子量为 700 000 时, 所制备 CMC/北木纤维复合薄膜的透明度为 90%, 拉伸强度约为 111 MPa, 耐折度达到 2 526 次。这种可生物降解、高柔韧性、高强度和高透明的 CMC/纤维素纤维复合薄膜有望作为衬底用于构建下一代绿色、柔性电子器件, 促进人类社会的可持续发展。

关键词: 高透明; 复合薄膜; 羧甲基纤维素; 生物降解; 力学性能

中图分类号: TB332

文献标志码: A

文章编号: 1000-3851(2018)06-1574-08

Preparation and mechanical properties of highly transparent carboxymethyl cellulose/cellulose fiber composite films

CHEN Gang¹, HU Wen¹, ZHU Penghui¹, LIU Yu¹, PENG Chao¹, FANG Zhiqiang^{*1, 2}

(1. State Key Lab of Pulp and Paper Engineering, South China University of Technology, Guangzhou 510640, China;

2. Key Laboratory of Pulp and Paper Science & Technology of Ministry of Education/Shandong Province, Qilu University of Technology, Ji'nan 250353, China)

Abstract: A highly transparent carboxymethyl cellulose (CMC)/cellulose fiber composite film based on cellulose fibers and CMC was rapidly prepared by a combination of paper making method and impregnation, aiming to replace current rigid, non-biodegradable substrates for electronic devices. The optical transmittance of composite films as function of the mass ratio of CMC to northern wood fibers and the influence of the CMC molecular weight on the mechanical properties were investigated. The effect of fiber species (northern wood fiber, eucalyptus wood fiber, manila hemp fiber, bagasse fiber) on the mechanical properties of highly transparent CMC/cellulose fiber composite films was also studied. The results show that the CMC/northern wood fiber composite film exhibits a light transmittance of 90%, a tensile strength of 111 MPa, and a folding endurance up to 2 526 times when the mass ratio of CMC (molecular weight: 700 000) to softwood fibers is 7:3. This biodegradable, mechanically flexible, strong, and highly transparent CMC/cellulose fiber composite film shows the potential to be used in the fabrication of next generation flexible and green electronic devices as a substrate to maintain the sustainability of human's society.

Keywords: high transparency; composite film; carboxymethyl cellulose; biodegradability; mechanical properties

收稿日期: 2017-05-25; 录用日期: 2017-06-27; 网络出版时间: 2017-07-14 14:10

网络出版地址: <https://doi.org/10.13801/j.cnki.fhclxb.20170714.002>

基金项目: 广东省自然科学基金-博士启动(2017A030310635); 中央高校基本科研业务费专项资金(2015ZM156); 制浆造纸工程国家重点实验室项目(201709; 2016YP01; 2017ZD01); 制浆造纸科学与技术教育部/山东省重点实验室开放基金(KF201619); 2017 年度华南理工大学学生研究计划(105612017S478)

通讯作者: 方志强, 博士, 助理研究员, 研究方向为造纸技术与纸基功能材料 E-mail: mszhqfang@scut.edu.cn

引用格式: 陈港, 胡稳, 朱朋辉, 等. 高透明羧甲基纤维素/纤维素纤维复合薄膜的制备及其力学性能[J]. 复合材料学报, 2018, 35(6): 1574-1581.

CHEN Gang, HU Wen, ZHU Penghui, et al. Preparation and mechanical properties of highly transparent carboxymethyl cellulose/cellulose fiber composite films[J]. Acta Materiae Compositae Sinica, 2018, 35(6): 1574-1581 (in Chinese).

电子产品给人类带来了便捷, 成为生活和工作中不可分割的一部分。目前, 绝大部分电子器件都是构建在玻璃、硅片等衬底上, 在弯曲、拉伸等作用下容易发生断裂^[1], 使电子产品失效。柔性电子是将有机或无机材料电子器件制作在柔性/可延展性塑料或薄金属衬底上的新兴电子技术。它能结合高效、大面积且低成本的制备工艺^[2], 使电子器件朝着柔性、低成本且轻薄的发展方向发展, 在太阳能电池、超级电容器、显示和可穿戴设备等领域具有潜在的应用价值^[3-8]。

近年来, 随着电子器件的普及和使用寿命的不断缩短, 产生了大量难以降解的电子垃圾, 给人类赖以生存的环境带来了新的压力。衬底是柔性电子器件的重要结构单元, 约占电子器件总质量的 90% 以上。它不仅对器件起到机械支撑作用, 还主要决定了器件的柔韧性或延展性^[9-10]。若使用可生物降解的衬底, 将对电子垃圾问题的解决起到重要作用。

基于纤维素的透明薄膜因其价格低廉、可降解^[11-15]、优异的柔韧性和高的力学强度等优势, 有望作为一种新型的衬底应用于柔性电子器件领域。目前, 可作为柔性电子器件衬底的透明纤维素薄膜主要有如下四种: 微米级纤维素纤维透明薄膜^[16-17]、纳米级纤维素纤维透明薄膜^[18-20]、再生纤维素纤维透明薄膜^[21-22]及基于上述两种或三种的透明复合薄膜^[23-24]。利用离子液体部分溶解普通纸张表面制备的微米级纤维透明薄膜和纳米纤维素纤维制备的纳米纸具有优异的力学性能和光学性能, 但制备成本高、效率非常低, 制备时间通常需要 24 h 以上, 甚至超过 60 h, 不利于透明薄膜的工业化生产; 再生纤维素纤维制备透明薄膜制备工艺相对简单, 薄膜具有与塑料衬底相似的透明度和优异的阻隔性能, 但其力学强度较差; 通过在纤维纸张中浸渍树脂制备一种新型塑料纸, 该法制备过程简单、能耗较低, 但所使用的高分子聚合物在土壤中很难降解, 不利于环境的可持续发展。有必要开发出一种可生物降解、性能优越且制备方法简便高效的新型衬底材料, 将其应用于柔性电子器件领域。

本文以纤维素纤维和羧甲基纤维素(CMC)为原料, 通过抄纸和浸渍工艺, 快速制备高透明 CMC/纤维素纤维复合薄膜。分别考察了 CMC 与北木纤维质量比和 CMC 分子量对薄膜透明度和力学性能的影响; 在此基础上, 还研究了纤维的种类对高透明复合薄膜力学性能的影响。文中所采用的

制备方法简单、高效, 制备的高透明 CMC/纤维素纤维复合薄膜具有优异的透明度和力学性能, 在电子器件领域具有潜在的应用前景。

1 实验原料和方法

1.1 原材料

纤维素纤维: 北木纤维、桉木纤维、马尼拉麻纤维和蔗渣纤维, 理文造纸有限公司。羧甲基纤维素(CMC): 分子量分别为 90 000、250 000 和 700 000, 上海阿拉丁生化科技股份有限公司。聚酰胺聚环氧氯丙烷树脂(PAE)湿强剂, 理文造纸有限公司。

1.2 高透明 CMC/纤维素纤维复合薄膜的制备

制备高透明 CMC/纤维素纤维复合薄膜包括三部分: CMC 分散液的制备、纸张的抄造和纤维素复合薄膜的制备。(1)CMC 分散液的制备: 准确称量 12 g CMC 粉末, 接着量取 788 mL 蒸馏水加入到 1 000 mL 烧杯中, 然后将其置于水浴锅中, 加热至 70℃。同时, 在 1 200 r/min 转速下将 CMC 粉末缓慢加入到蒸馏水中, 搅拌 1 h, 使其充分溶解, 得到 1.5 wt% 的 CMC 分散液;(2)纸张的抄造: 准确称取 0.6594 g 和 2.198 g 绝干北木浆, 分别滴入 1 mL 和 3 mL 湿强剂, 在 6 000 r/min 转速下进行疏解, 使用奥地利 PTI 公司生产的 RK3AKWT 型凯塞法自动抄纸系统抄造定量为 21 g/m² 和 70 g/m² 的纸张;(3)纤维素复合薄膜的制备: 图 1 为 CMC/纤维素纤维复合薄膜的制备示意图, 将裁剪好的纸样(21 g/m²)放入玻璃培养皿(北京博美华科玻璃有限公司, 型号 Φ90 mm)中, 缓慢滴加 1.5 wt% 的 CMC 分散液, 然后在 105℃ 条件下干燥 1 h。通过以上步骤, 所得的高透明 CMC/纤维素纤维复合薄膜的制备时间约为 2 h。

通过添加不同量的 CMC, 得到 CMC 与纤维素纤维质量比分别为 2 : 3、1 : 1、3 : 2、7 : 3 和 4 : 1

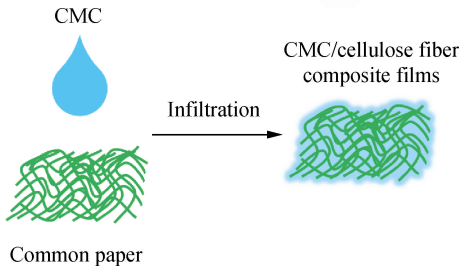


图 1 羧甲基纤维素(CMC)浸渍普通纸张制备 CMC/纤维素纤维复合薄膜示意图
Fig.1 Fabrication schematic of carboxymethyl cellulose(CMC)/cellulose fiber composite films by an impregnation process

的高透明 CMC/纤维素纤维复合薄膜，空白样为 70 g/m² 原纸。

1.3 测试及表征

1.3.1 透明度测试

CMC 与北木纤维的质量比分别为 2 : 3、1 : 1、3 : 2、7 : 3 和 4 : 1，制备所得薄膜的厚度分别为 39 μm、42 μm、48 μm、63 μm 和 85 μm，原纸厚度为 100 μm。选取原纸及高透明 CMC/纤维素纤维复合薄膜，将其裁剪成尺寸为 6 cm×6 cm，采用美国 PE 公司生产的 LAMBDA950 型紫外/可见/近红外分光光度计测试，选取波长范围 400 ~ 800 nm。用透光率的大小来表征薄膜的透明度，透光率越大，表明 CMC/纤维素纤维复合薄膜的透明度越高。

1.3.2 拉伸强度测试

高透明 CMC/纤维素纤维复合薄膜的机械拉伸强度参照标准 GB/T1040—2006^[25]，采用美国 INSTRON 公司生产的 5565 型拉伸压缩材料试验机测试，试样宽度为 15 mm，试验速率为 20 mm/min。

1.3.3 耐折度测试

纸张及高透明 CMC/纤维素纤维复合薄膜的耐折度参照标准 GB/T 457—2008^[26]，采用美国生产的 MIT/U21B 型耐折度仪测试，纸张及高透明 CMC/纤维素纤维复合薄膜的宽度为 (15±0.1) mm，在往复 135° 的双次数，摆动头以每分钟 175 双折的折合速度左右折合纸条，折叠压力为 9.81 N，纸张及浸渍后的高透明 CMC/纤维素纤维复合薄膜的定量均为 70 g/m²。

1.3.4 耐破度测试

纸张及高透明 CMC/纤维素纤维复合薄膜的耐破度参照标准 GB/T 454—2002^[27]，采用瑞典 L&W 公司生产的 L&W CE180 型耐破度测试，纸张及浸渍后的 CMC/纤维素纤维复合薄膜的定量均为 70 g/m²。

1.3.5 扫描电镜表征

采用德国蔡司公司生产的 EVO 18 型扫描电镜观察纸张及 CMC/纤维素纤维复合薄膜截面形貌，加速电压为 10 kV。

2 结果与讨论

2.1 CMC 与纤维素纤维质量比对高透明 CMC/纤维素纤维复合薄膜透光率的影响

CMC 与纤维素纤维之间的比例对高透明 CMC/

纤维素纤维复合薄膜的透光率有重要影响。通过抄纸和浸渍方法制备的薄膜如图 2(a)所示。可知，相比于不透明的普通纸张，随着 CMC 含量的上升，复合薄膜的透光率上升。这是由于 CMC 逐渐渗透进入纸张纤维网络中，使纸页内部的空气减少，导致纸页内部的光散射效应减弱，从而使薄膜变得透明^[28]。图 2(b)为不同质量比制备高透明 CMC/纤维素纤维复合薄膜的透射率曲线。在可见光区，其透光率都大于 80%。当 CMC 与纤维素标准的质量比为 7 : 3 时，其透光率达到 90%，继续增大 CMC 的量，其透光率没有发生变化。

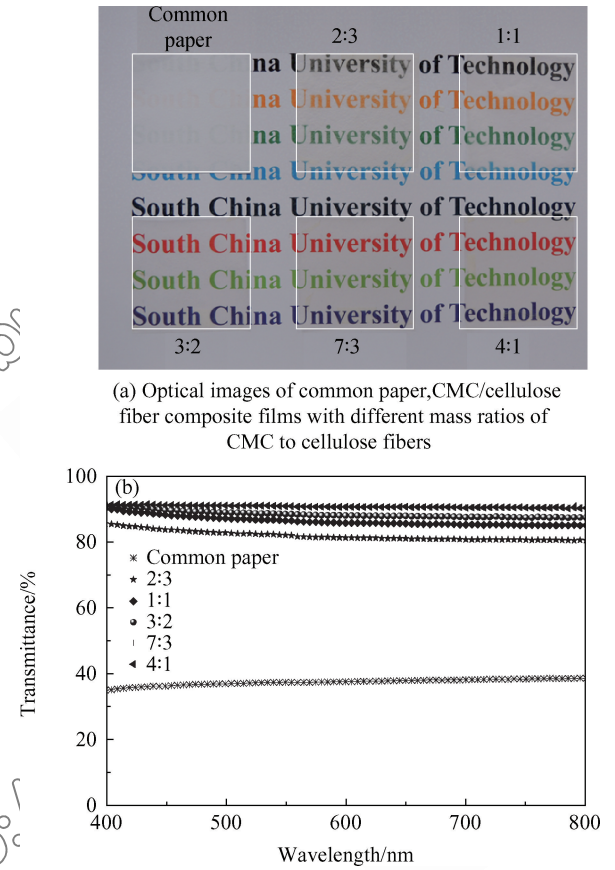


图 2 普通纸张及不同质量比制备 CMC/纤维素纤维复合薄膜的光学照片(a)及透射率曲线(b)
Fig. 2 Optical images (a) and transmittance curves (b) of common paper and CMC/cellulose fiber composite films with different mass ratios of CMC to cellulose fibers

2.2 CMC 分子量对高透明 CMC/纤维素纤维复合薄膜拉伸强度的影响

不同 CMC 膜和高透明 CMC/纤维素纤维复合薄膜中的 CMC 分子量及 CMC 与北木纤维的质量比如表 1 所示。

表 1 高透明 CMC/纤维素纤维复合薄膜样品编号及成分
Table 1 Numbering and component details of different highly transparent CMC/cellulose fiber composite films

Sample	CMC molecular weight	Mass ratios of CMC to cellulose fibers
CMC film 1	90 000	10 : 0
CMC film 2	250 000	10 : 0
CMC film 3	700 000	10 : 0
Composite film 1	90 000	7 : 3
Composite film 2	250 000	7 : 3
Composite film 3	700 000	7 : 3

图 3(a) 为分子量分别为 90 000、250 000、700 000 的 CMC 所制备透明薄膜的拉伸强度曲线。可知, 随着 CMC 分子量的增加, CMC 膜的拉伸强度逐渐增大(从 28 MPa 上升到 61 MPa)。这是由于 CMC 分子量的增加, 大分子链之间交缠, 相互作用力增加, 分子之间不易滑动, 因此薄膜的抗张强度明显增加^[29]

图 3(b) 为含不同分子量 CMC 的高透明 CMC/纤维素纤维复合薄膜的力学性能。与纯北木纤维制备的纸张相比, 含有 CMC 的复合薄膜的强度得到了大幅度提升。而且随着 CMC 分子量的上升, 复合薄膜的强度呈现上升的趋势。当使用高分子量 CMC(700 000) 时, 所制备纤维素复合薄膜的拉伸强度最高, 达到 111 MPa, 与传统的 PET 薄膜相近^[30]。但这一数值大于纯 CMC 膜(61 MPa)和由北木纤维抄造的纸张(9 MPa)的拉伸强度数值。

2.3 CMC 分子量对高透明 CMC/纤维素纤维复合薄膜耐折度的影响

耐折度是纸张的基本力学性质之一, 通常用于表征纸张抵抗往复折叠的能力, 同时也是评价材料柔性的手段之一。本部分研究 CMC 的分子量对复合薄膜耐折度的影响。图 4 是普通纸张及各种复合薄膜耐折度的对比图。可知, 普通纸张的耐折度为 3 次, 而添加了 CMC 后, 复合薄膜的耐折度急剧上升。含有三种不同分子量的 CMC 复合薄膜的耐折度都大于 1 900 次, 是普通纸张耐折度的 630 倍以上。耐折度的大幅度上升主要归结于 CMC 对纸张纤维之间空隙的渗透, 使薄膜具有更加紧密的结构, 同时 CMC 的添加, 增强了纸张纤维之间的结合力, 从而使 CMC-纤维复合薄膜的耐折度大幅增加。

2.4 高透明 CMC/纤维素纤维复合薄膜微观形貌

图 5(a) 为普通纤维纸张的 SEM 图像。可以看

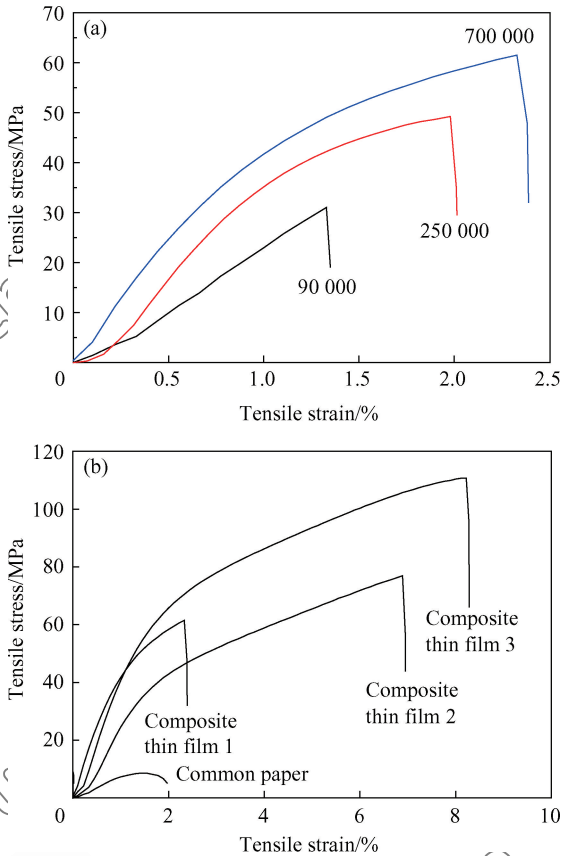


图 3 不同分子量 CMC 薄膜(a)和原纸、含不同分子量 CMC 的高透明 CMC/纤维素纤维复合薄膜(b)的拉伸曲线
Fig. 3 Tensile strength curves of pure CMC films with different molecular weight(a) and common paper and highly transparent CMC/cellulose fiber composite films with different CMC molecular weight (b)

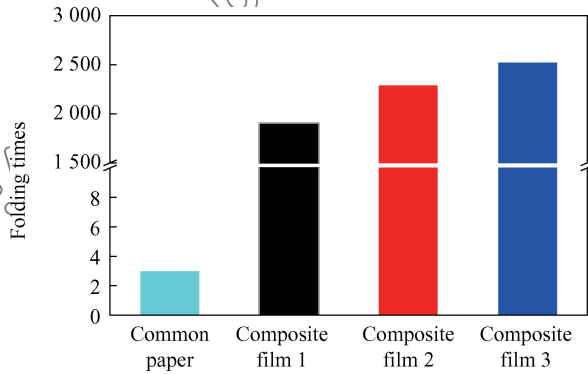
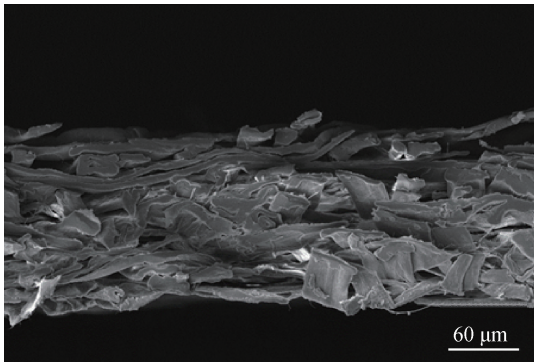


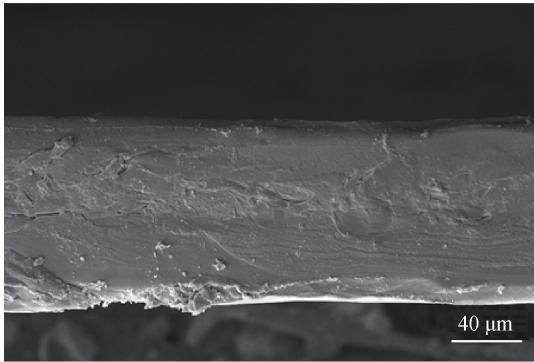
图 4 普通纸张和含不同分子量 CMC 的高透明 CMC/纤维素纤维复合薄膜的耐折度

Fig. 4 Folding strength of common paper, highly transparent CMC/cellulose fiber composite films with different CMC molecular weight

出, 普通纸张的截面呈现出一种松散的堆积结构, 纤维之间存在许多空隙。通过浸渍法将 CMC 填充到普通纸张的多孔纤维网络中, 其内部的孔隙率急



(a) Common paper



(b) CMC/northern wood fiber composite film

图5 普通纸张及 CMC/北木纤维复合薄膜截面的 SEM 图像
Fig. 5 Cross-sectional SEM images of common paper and CMC/northern wood fiber composite film

剧下降(如图 5(b)所示),减少了纤维素与空气的界面,消除了内部的光散射与反射,提升了复合薄膜的透光率。此外,浸渍处理后薄膜的紧密结构,增强了纤维之间的结合力,使高透明 CMC/纤维素纤维复合薄膜的拉伸强度、耐折度等力学性能得到显著改善。

柔性电子器件对衬底材料的表面平滑度具有很高的要求,如提高用于太阳能电池的衬底表面平整度,有助于提高衬底与阻挡层的结合强度,增加衬底与电池的有效接触面积,从而提高了太阳能电池的光电转换效率^[31-32]。

图 6 是经过原子力显微镜扫描后检测高透明 CMC/纤维素纤维复合薄膜的表面形貌图像。扫描区域的面积是 10 μm×10 μm,通过 Nanoscope analysis 软件对其表面粗糙度进行分析,得到表面平均粗糙度 Ra 为 1.11 nm。因为复合薄膜在玻璃培养皿中成形并干燥,玻璃所具有的超平滑表面转移到了制备的复合薄膜上,所以制得的高透明 CMC/纤维素纤维复合薄膜具有较低粗糙度,为推进在电子器件领域的应用提供了可能性。

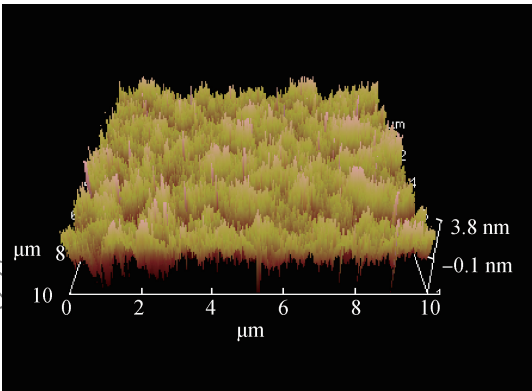


图 6 CMC/北木纤维复合薄膜的 AFM 图像
Fig. 6 AFM image of CMC/northern wood fiber composite film

2.5 纤维种类对高透明 CMC/纤维素纤维复合薄膜力学性能的影响

北木、桉木、马尼拉麻和蔗渣纤维制备的原纸及采用 CMC 分别浸渍制备得到的高透明 CMC/纤维素纤维复合薄膜如表 2 所示,CMC 分子量为 700 000,CMC 与纤维素纤维质量比为 7:3。

图 7(a)为使用 CMC 浸渍四种纤维制备得到高透明 CMC/纤维素纤维复合薄膜拉伸强度曲线。含有北木的 CMC/北木纤维复合薄膜的力学性能最佳(111 MPa),其次为含有桉木的高透明 CMC/纤维素纤维复合薄膜(96 MPa),力学性能最小的为含有蔗渣纤维的复合薄膜。含有北木或桉木的高透明 CMC/纤维素纤维复合薄膜的抗张强度和伸长率明显高于纯 CMC 膜,而含有麻和蔗渣纤维的复合薄膜力学性能较低,其拉伸强度与纯 CMC 膜相近(61 MPa)。

如图 7(b)所示,北木、桉木和蔗渣纤维抄造出来的纸张耐折度较低,均小于 10 次。由于麻纤维本身较长,纸张内部纤维之间交织紧密,使其具有很高的耐折度。当利用 CMC 浸渍不同纤维纸张

表 2 不同原纸及高透明 CMC/纤维素纤维复合薄膜的编号
Table 2 Sample details of common paper and different highly transparent CMC/cellulose fiber composite films

Abbreviations	Sample details
FP1	Northern wood fiber paper
FP2	Eucalyptus wood fiber paper
FP3	Manila hemp fiber paper
FP4	Bagasse fiber paper
CF1	CMC/northern wood fiber film
CF2	CMC/eucalyptus wood fiber film
CF3	CMC/manila hemp fiber film
CF4	CMC/bagasse fiber film

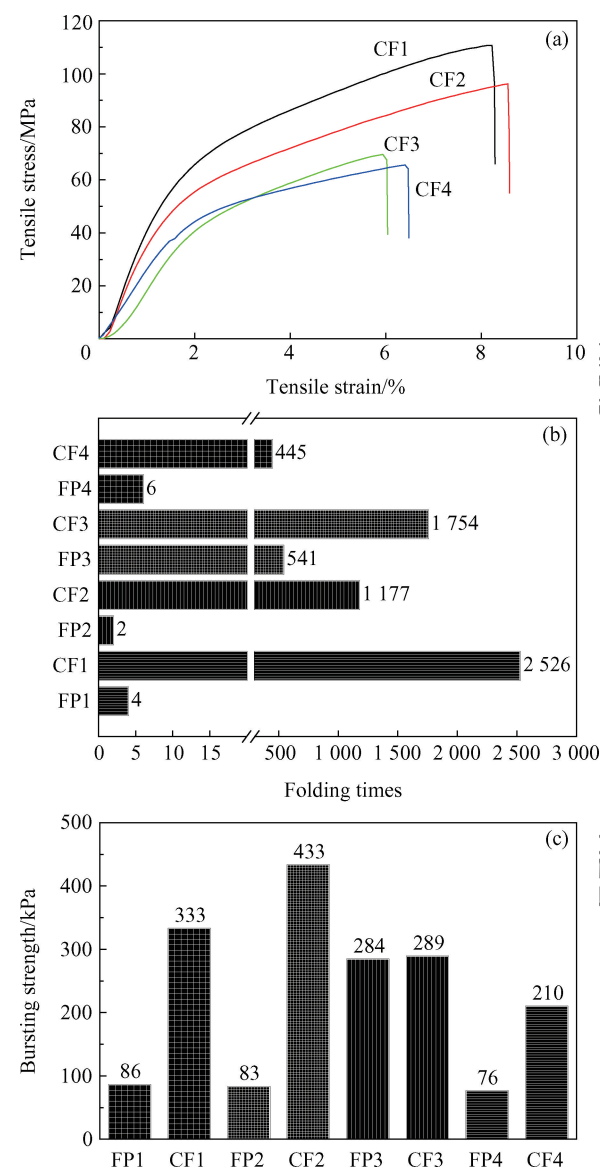


图 7 CMC 浸渍不同种类纤维纸张制备的高透明 CMC/纤维素纤维复合薄膜的拉伸强度(a)及耐折度(b)和耐破度(c)

Fig. 7 Tensile strength (a) of highly transparent CMC/cellulose fiber composite film, folding endurance (b) and bursting strength (c) of common paper and corresponding composite films

后,由于 CMC 的加入,增强了纸张纤维之间的结合力,使不同种类薄膜的耐折度均有所提高,当 CMC 填充到多孔的纤维网络中,复合薄膜的耐折度急剧上升。其中,北木纤维提升幅度最大,超过 600 倍。含有蔗渣纤维的复合薄膜的耐折度最低,仅有 445 次。

图 7(c)为不同纤维原料制备的原纸及其通过浸渍所得复合薄膜的耐破度。耐破度的主要影响因素是纤维之间的结合力、纤维平均长度及内部纤维交织情况,北木、桉木和蔗渣纤维纸张经过 CMC

浸渍后,增强了 CMC 与纤维之间的结合,薄膜的耐破度得到明显增加,而麻纤维由于平均长度较长,在纸页成形过程中纤维交织不均匀,导致其浸渍前后耐破度基本不变。

综合以上力学性能分析,含有北木纤维的高透明 CMC/纤维素纤维复合薄膜的力学性能最佳,有望作为衬底用于构建下一代绿色、柔性电子器件。

3 结 论

(1) 随着羧甲基纤维素(CMC)与纤维素纤维质量比的增大,复合薄膜的透光率逐渐上升,当质量比大于等于 7 : 3 时,高透明 CMC/纤维素纤维复合薄膜的透光率达到最大值,约为 90%。继续提高比例,透明度不再增加。

(2) CMC 分子量的提高有助于高透明 CMC/纤维素纤维复合薄膜的力学性能提升。当 CMC 分子量达到 700 000 时,其对应的 CMC/纤维复合薄膜的强度和耐折度达到最大值。

(3) 纤维素纤维的种类对高透明 CMC/纤维素纤维复合薄膜的力学性能有重要影响。含有北木纤维的高透明 CMC/纤维素纤维复合材料的性能最佳,当分子量为 700 000 的 CMC 与北木纤维相结合时(质量比 7 : 3),其透光率为 90%,拉伸强度为 111 MPa,耐折度为 2 526 次,且制备时间约为 2 h,远小于其他高透明 CMC/纤维复合薄膜的制备时间(通常大于 24 h)。

参考文献:

[1] 冯雪,陆炳卫,吴坚,等. 可延展柔性无机微纳电子器件原理与研究进展[J]. 物理学报, 2014, 63(1): 1-18.

FENG Xue, LU Bingwei, WU Jian, et al. Review on stretchable and flexible inorganic electronics[J]. Acta Physica Sinica, 2014, 63(1): 1-18 (in Chinese).

[2] 张乃柏,郭秋泉,杨军. 数字打印柔性电子器件的研究进展[J]. 中国科学:物理学力学天文学, 2016, 46(4): 70-85.

ZHANG Naibo, GUO Qiuquan, YANG Jun. The development of digital printing technologies for flexible electronics devices[J]. Scientia Sinica Physica, Mechanica & Astronomica, 2016, 46(4): 70-85 (in Chinese).

[3] 刘忠范. 新型硒化亚锗薄膜太阳能电池[J]. 物理化学学报, 2017, 33(2): 264.

LIU Zhongfan. Novel germanium selenide thin film solar cell [J] Acta Physico-Chimica Sinica, 2017, 33(2): 264 (in Chinese).

[4] 郑宁,黄银,赵寒,等. 面向柔性电子的形状记忆聚合物[J].

- 中国科学: 物理学力学天文学, 2016, 46(4): 1-9.
- ZHENG Ning, HUANG Yin, ZHAO Qian, et al. Shape memory polymers for flexible electronics[J]. *Scientia Sinica Physica, Mechanica & Astronomica*, 2016, 46(4): 1-9 (in Chinese).
- [5] 蔡依晨, 黄维, 董晓臣. 可穿戴式柔性电子应变传感器[J]. *科学通报*, 2017, 62(7): 635-649.
- CAI Yichen, HUANG Wei, DONG Xiaochen. Wearable and flexible electronic strain sensor[J]. *Chinese Science Bulletin*, 2017, 62(7): 635-649 (in Chinese).
- [6] ZHANG Y, WANG S, LI X, et al. Experimental and theoretical studies of serpentine microstructures bonded to pre-trained elastomers for stretchable electronics[J]. *Advanced Functional Materials*, 2014, 24(14): 2028-2037.
- [7] JUNG Y H, CHANG T H, ZHANG H, et al. High-performance green flexible electronics based on biodegradable cellulose nanofibril paper[J]. *Nature Communications*, 2015, 6: 1-11.
- [8] HU L, ZHENG G, YAO J, et al. Transparent and conductive paper from nanocellulose fibers[J]. *Energy & Environmental Science*, 2013, 6(2): 513-518.
- [9] LEE Y H, KIM J S, NOH J, et al. Wearable textile battery rechargeable by solar energy[J]. *Nano Letters*, 2013, 13(11): 5753-5761.
- [10] 冯魏良, 黄培. 柔性显示衬底的研究及进展[J]. *液晶与显示*, 2012, 27(5): 599-607.
- FENG Weiliang, HUANG Pei. Advances in flexible displays substrates[J]. *Chinese Journal of Liquid Crystals and Displays*, 2012, 27(5): 599-607 (in Chinese).
- [11] 吕芳兵, 张传杰, 王潮霞, 等. 壳聚糖/纤维素生物质发泡复合材料多孔结构的表征[J]. *复合材料学报*, 2015, 32(3): 632-639.
- LV Fangbing, ZHANG Chuanjie, WANG Chaoxia, et al. Porous structural characterization of chitosan/cellulose biomass foaming composites[J]. *Acta Materiae Compositae Sinica*, 2015, 32(3): 632-639 (in Chinese).
- [12] 李垒, 陈灏, 廖日红. 羧甲基纤维素- Fe_3O_4 复合纳米磁性材料的制备及其渗透性能[J]. *复合材料学报*, 2010, 27(6): 141-145.
- LI Lei, CHEN Hao, LIAO Rihong. Preparation and penetrative properties of magnetic carboxymethyl cellulose-nano Fe_3O_4 composite particles[J]. *Acta Materiae Compositae Sinica*, 2010, 27(6): 141-145 (in Chinese).
- [13] 曲腾云, 于伟东. 纤维素纤维的生物降解性能[J]. *纺织学报*, 2015, 36(11): 20-26.
- QU Tengyun, YU Weidong. Biodegradability of cellulose fibers[J]. *Journal of Textile Research*, 2015, 36(11): 20-26 (in Chinese).
- [14] 谭辉. 聚乳酸与羧甲基纤维素钠复合膜的制备及其性能研究[D]. 广州: 华南理工大学, 2011.
- TAN Hui. Development of a compound membrane based on polylactic acid and sodium carboxymethyl cellulose and its properties[D]. Guangzhou: South China University of Technology, 2011 (in Chinese).
- [15] GAO X, HUANG L, WANG B, et al. Natural materials assembled biodegradable and transparent paper-based electret generator[J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2016.
- [16] YAO Y, TAO J, ZOU J, et al. Light management in plastic-paper hybrid substrate towards high-performance optoelectronics[J]. *Energy & Environmental Science*, 2016, 9(7): 2278-2285.
- [17] ZHU H, FANG Z, WANG Z, et al. Extreme light management in mesoporous wood cellulose paper for optoelectronics[J]. *ACS nano*, 2015, 10(1): 1369-1377.
- [18] 余森海, 刘志明, 吴鹏. 高强度透明纳米纤维素纸的制备与性能表征[J]. *功能材料*, 2016, 47(1): 1259-1262.
- YU Senhai, LIU Zhiming, WU Peng. Preparation and performance characterization of nanofibrillated cellulose paper with high strength and transparency[J]. *Journal of Functional Materials*, 2016, 47(1): 1259-1262 (in Chinese).
- [19] 张荣. 纤维素纳米纸的高韧性结构[J]. *国际造纸*, 2009, 28(3): 35-41.
- ZHANG Rong. Cellulose nanopaper structures of high toughness[J]. *Paper and Biomaterials*, 2009, 28(3): 35-41 (in Chinese).
- [20] NOGI M, IWAMOTO S, NAKAGAITO A N, et al. Optically transparent nanofiber paper[J]. *Advanced Materials*, 2009, 21(15): 1595-1598.
- [21] QI H, CHANG C, ZHANG L. Properties and applications of biodegradable transparent and photoluminescent cellulose films prepared via a green process[J]. *Green Chemistry*, 2009, 11(2): 177-184.
- [22] 方志强. 高透明纸的制备及其在电子器件中的应用[D]. 广州: 华南理工大学, 2014.
- FANG Zhiqiang. Highly transparent paper for electronic devices[D]. Guangzhou: South China University of Technology, 2014 (in Chinese).
- [23] FANG Z, ZHU H, PRESTON C, et al. Highly transparent and writable wood all-cellulose hybrid nanostructured paper[J]. *Journal of Materials Chemistry C*, 2013, 1(39): 6191-6197.
- [24] FANG Z, ZHU H, BAO W, et al. Highly transparent paper with tunable haze for green electronics[J]. *Energy & Environmental Science*, 2014, 7(10): 3313-3319.

- [25] 中华人民共和国国家质量监督检验检疫总局. 塑料拉伸性能的测定: GB/T 1040—2006[S]. 北京: 中国标准出版社, 2006.
- General Administration of Quality Supervision, Inspection and Quarantine of the People's Republic of China. Plastics-Determination of tensile properties: GB/T 1040—2006[S]. Beijing: Standards Press of China, 2006 (in Chinese).
- [26] 中华人民共和国国家质量监督检验检疫总局. 纸和纸板耐折度的测定: GB/T 457—2008[S]. 北京: 中国标准出版社, 2008.
- General Administration of Quality Supervision, Inspection and Quarantine of the People's Republic of China. Paper and board. Determination of folding endurance: GB/T 457—2008[S]. Beijing: Standards Press of China, 2008 (in Chinese).
- [27] 中华人民共和国国家质量监督检验检疫总局. 纸耐破度的测定: GB/T 454—2002[S]. 北京: 中国标准出版社, 2008.
- General Administration of Quality Supervision, Inspection and Quarantine of the People's Republic of China. Paper-Determination of Bursting Strength: GB/T 454—2002[S]. Beijing: Standards Press of China, 2008 (in Chinese).
- [28] KOIKE T, AMANO M. Transparent cellulosic paper and method for making the same: U. S., 05-728920[P]. 1979-1-30.
- [29] 马海红, 孙利, 吴雪梅, 等. 聚合物结构对包膜缓释肥缓释性能的影响[J]. 高分子通报, 2015(1): 25-31.
- MA Haihong, SUN Li, WU Xuemei, et al. The influence of polymer structure on slow release performance of coated fertilizers[J]. Polymer Bulletin, 2015(1): 25-31 (in Chinese).
- [30] HOWELLS D G, HENRY B M, LETERRIER Y, et al. Mechanical properties of SiO_x gas barrier coatings on polyester films[J]. Surface and Coatings Technology, 2008, 202(15): 3529-3537.
- [31] 石栋. 薄膜太阳能电池柔性不锈钢衬底的电化学机械抛光研究[D]. 金华: 浙江师范大学, 2016.
- SHI Dong. Study on electrochemical mechanical polishing of thin-film solar cell flexible stainless steel substrate[D]. Jin-hua: Zhejiang Normal University, 2016 (in Chinese).
- [32] 张克华, 石栋, 刘润之, 等. 电化学机械复合抛光薄膜太阳能电池柔性不锈钢衬底[J]. 光学精密工程, 2016, 24(2): 343-349.
- ZHANG Kehua, SHI Dong, LIU Runzhi, et al. Electrochemical mechanical polishing of thin film solar cell flexible stainless steel substrate[J]. Optics and Precision Engineering, 2016, 24(2): 343-349 (in Chinese).