

光学学报

面向柔性光电子器件的微纳光制造关键技术与应用

陈林森*, 乔文**, 叶燕, 刘艳花, 浦东林

苏州大学光电科学与工程学院, 江苏 苏州 215006

摘要 柔性光电子器件对微纳制造技术提出了更高、更多维度的要求, 包括大幅面、表面复杂结构、跨尺度、透明或柔性基底等。主要介绍基于相位元件调制的 3D 激光直写技术和紫外连续变频光刻技术, 它们可分别实现复杂表面浮雕结构和像素化纳米结构的精确制备。此外微纳结构限定性生长或涂布方法提供了一种绿色环保的材料功能化手段。借助微纳结构图形化、功能化平台, 最后介绍了新型柔性光电子材料/器件的应用创新。可以预见, 微纳光制造技术将推动柔性光电子产业的持续创新发展。

关键词 光学器件; 柔性; 光电子器件; 绿色制造; 微纳制造

中图分类号 TN305

文献标志码 A

doi: 10.3788/AOS202141.0823018

Critical Technologies of Micro-Nano-Manufacturing and Its Applications for Flexible Optoelectronic Devices

Chen Linsen*, Qiao Wen**, Ye Yan, Liu Yanhua, Pu Donglin

School of Optoelectronic Science and Engineering, Soochow University, Suzhou, Jiangsu 215006, China

Abstract Flexible optoelectronic devices put forward higher requirements for micro-nano fabrication technology, including large-scale, complex surface-relief structure, cross-scale, transparent or flexible substrate, and so on. In this paper, 3D laser direct writing technology and frequency variable interference lithography technology based on phase element modulation are introduced. These fabrication technologies are adopted to pattern complex surface relief structures and pixelated nanostructures, respectively. In addition, the micro-nano additive manufacturing based on structural confined electroplating or coating methods provide environmentally friendly fabrication means for functional materials. Enabled by micro-nano-patterning and structural functionalization platform, novel applications of flexible optoelectronic materials/devices are highlighted. Predictably, micro-nano-manufacturing technology will promote the rapid development of the flexible optoelectronic industry.

Key words optical devices; flexible; optoelectronic device; environmental friendly manufacturing; micro-nano manufacturing

OCIS codes 230.0230; 220.0220; 110.4235; 120.4610

1 引言

空间变参量微纳结构对光场振幅、相位、偏振等参数进行调控或变换, 可产生单一参量纳米结构无法实现的新现象、新效应, 在纳米结构色^[1-5]、三维显

示^[6-9]、柔性触控^[10-14]、汽车号牌等领域得到了广泛关注。

现有的纳米加工技术, 如直写光刻(电子束光刻、聚焦离子束光刻)^[15-22]工作效率低且运行成本昂贵, 不适合用于大面积超表面结构制备。我国在高

收稿日期: 2020-12-11; 修回日期: 2021-01-07; 录用日期: 2021-02-23

基金项目: 国家自然科学基金面上项目(61975140, 62075145, 62075149, 61974100)、江苏省自然科学基金面上项目(BK20201406, BK20181166)、江苏省前沿引领技术基础研究专项(BK20192003)、苏州市重点产业创新前瞻性应用研究项目(SYG201930)、江苏高校优势学科建设工程(PAPD)

* E-mail: lschen@suda.edu.cn; ** E-mail: wqiao@suda.edu.cn

端产业设备方面依赖引进,造成产业安全隐患;此外,因在印刷^[23-25]、超薄显示^[26-27]、触控器件^[28-31]、汽车号牌等领域的产业升级需求,对加工制造方法提出了绿色环保要求。为此,本课题组自主研发了“高通量微纳制造工艺装备”,在数字光场建立与调控方面,提出了 3D 激光直写技术,通过像素扫描积分曝光方法实现了表面复杂微纳结构的制备;提出了紫外连续变频光刻技术,通过相位元件的平移、旋转即可实现干涉光场空间频率、取向的连续调控^[32-35]。将光刻系统与海量数据处理技术、飞行曝光技术相结合,可实现大面积变参量微纳结构的快速制备;将大面积模板制备工艺与纳米压印工艺、结构金属化工艺相结合,可实现柔性光电子器件的广泛应用。从而建立了从微纳结构设计、关键技术装备到材料/器件应用工艺的全链条一体化,以推进面向绿色生产的基于微纳结构的柔性光电子材料/器件的应用,促进产业创新和竞争力的提升。

2 先进微纳图形化技术与工艺

2.1 复杂表面形貌 3D 激光直写技术

近年来,多台阶衍射光学元件^[36-40]、闪耀光栅^[41-45]、微透镜阵列^[46-50]等 3D 表面复杂形貌结构制备需求涌现。传统的多次掩模套准投影光刻方法繁琐费时,需多套掩模板,且套刻对准精度要求高,已不能满足加工要求。本课题组在激光直写(DLW)技术基础上,提出并设计了针对 3D 形貌的分层提取软件、傅里叶级次展开的曝光光场及多层次叠加累积的曝光方法,实现了复杂光场的数字化调控与 3D 微纳结构制备^[34]。

激光直写技术利用激光束对光敏材料实施变剂量曝光^[51],从而形成表面浮雕结构^[52-55]。激光直写技术是制作掩模板、衍射光学元件等的平台型技术,如图 1(a)、(b) 所示。本课题组发展的灰度激光直写技术通过对目标灰度光场进行傅里叶级次展开,实现 3D 形貌的 256 阶灰度光刻。首先,在结构深度方向根据工艺需求对 3D 形貌数据设置切片间距,并根据间距进行三维分层切片,形成 N 层二维矢量图数据,如图 1(c) 所示。其次,采用填充因子对二维矢量数据进行像素化填充,形成二维数字化像素图像。然后,对填充后的二维数字化像素图像设定水平方向上的数据分割像素宽度,沿竖直方向将整幅图像分割成若干等间距长条带图像数据。最后,根据三维形貌数据分切层数、数字微镜像素数量,对分割长条进行数据重组,形成在数字微镜上显

示的光刻图像文件。以具有 249 灰阶的“苏”字为例,其傅里叶级次展开为 $249 = 2^7 + 2^6 + 2^5 + 2^4 + 2^3 + 2^0$ 。以此傅里叶级次展开实现的灰度光场为基础,采用多层叠加累积曝光方法形成台阶状 3D 形貌。以两次曝光为例,可实现 4 台阶微纳结构制备,如图 1(d) 所示。

此外,本课题组还提出一种基于数字微镜(DMD)像素扫描积分曝光的方法。样品台每移动一个像素的距离,DMD 同步刷新一帧图像并曝光,通过相同位置曝光数据的叠加实现灰度积分曝光。由于 DMD 扫描方向的像素可达 1080 pixel,理论上可实现 1080 灰阶等级。与传统套刻技术相比,该方法单次曝光时无需对位套刻,且由于积分作用表面平滑,可用于实现倾斜台阶、弧形等复杂结构制备,如图 1(e) 所示。

3D 曝光技术制备的微纳结构的特征尺寸、纵向结构深度及横向尺寸均可根据需求在 100 nm 以内调控,加工幅面可达 100 inch(1 inch = 2.54 cm)。结合材料特性和热回熔工艺等,可制备更为复杂的表面微纳混合结构,如图 1(f) 所示。

2.2 紫外连续变频光刻技术

虽然 3D 光刻技术可实现任意 3D 形貌结构的快速制备,其最小加工线宽受激光直写光学系统衍射极限限制,一般用于加工线宽在 500 nm 以上的结构^[56-59]。另一方面,干涉光刻^[60-64]可实现大面积周期性微纳结构的快速制备,但其制备的微纳结构不能灵活控制。为此,本课题组提出紫外连续变频光刻系统,如图 2(a) 所示,波长为 355 nm 的激光经扩束和准直后变为平行光,平行光照射到傅里叶变换光学系统,在该系统的傅里叶成像面产生干涉图案,并经成像物镜微缩成像后,在光刻胶表面形成干涉图样。在紫外连续变频光刻系统中,DMD、相位元件的相对运动、放置感光材料的二维运动平台均由计算机在线控制。通过精确控制 DMD 内像素微镜的转角、相位元件的平移和旋转、载物台空间位置,可实现大面积变周期、变取向微纳结构的逐像素快速制备^[32-33]。

该紫外连续变频光刻系统中,基于相位元件调制的傅里叶变换光学系统如图 2(b) 所示。相位元件置于第一傅里叶变换透镜与傅里叶变换频谱面之间,设傅里叶变换光路中两个透镜的焦距分别为 f_1 和 f_2 ,相位元件离其空间频谱平面的距离为 d ,波长为 λ 的平行光垂直照射至傅里叶变换光路。则系统成像面的光场分布是相位元件透射光场两次傅里

叶变换的结果^[66-67]。其中第一次傅里叶变换的变换尺度为 λd , 随相位元件离空间频谱平面距离的远近而变化。第二次傅里叶变换的变换尺度为 λf_2 , 从而傅里叶成像面光场的空间频率是相位元件透射光场空间频率的 d/f_2 。若相位元件为消 0 级衍射的

光全息光学元件, 或在空间频谱平面利用掩模消 0 级衍射光, 则傅里叶成像面光场的空间频率是相位元件透射光场空间频率的 $2d/f_2$ 。因此, 平移相位元件可改变系统成像面干涉光场的空间频率, 旋转相位元件可改变系统成像面干涉光场的取向^[65]。

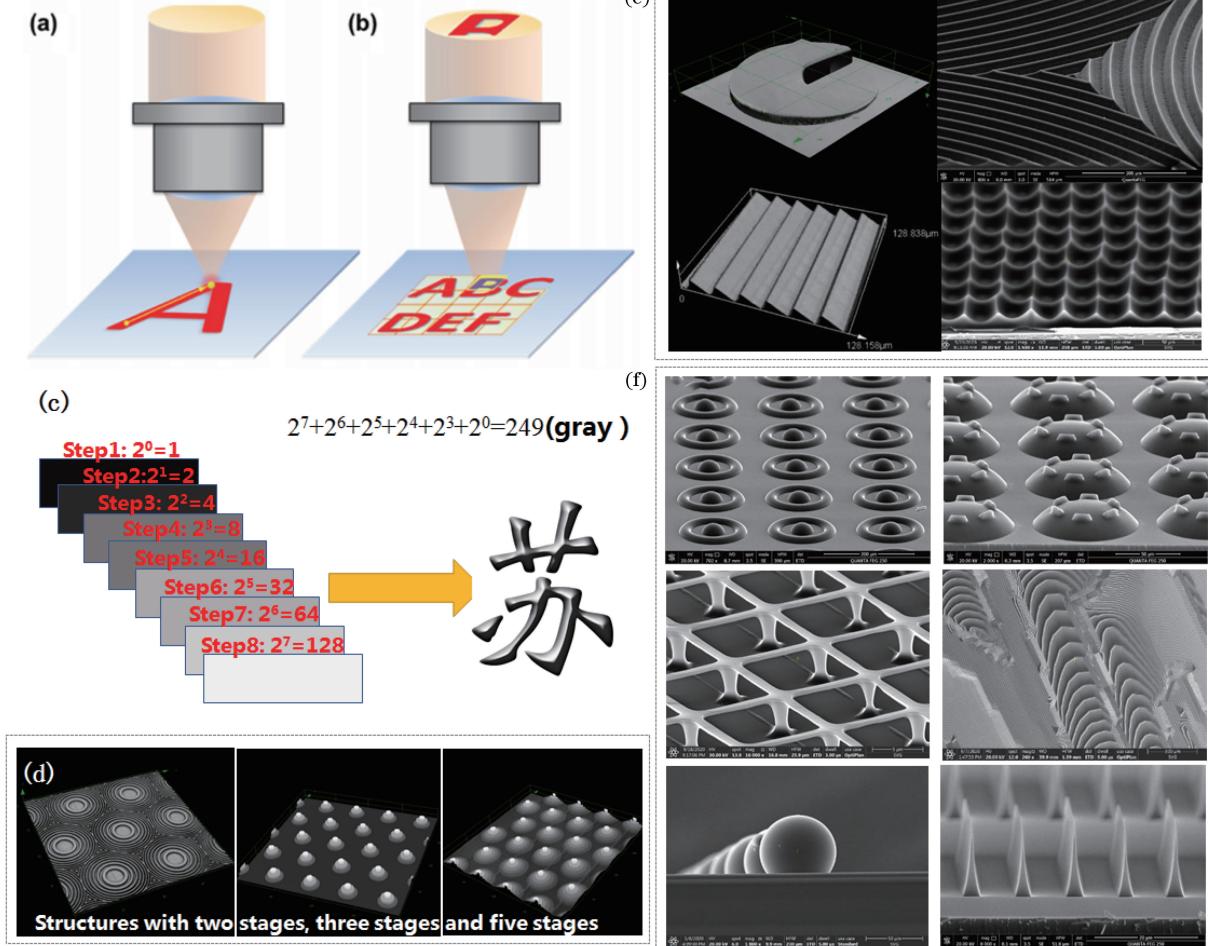


图 1 激光直写实现灰度光刻。(a)逐点扫描式激光直写原理^[51]; (b)逐场扫描式激光直写原理^[51]; (c)具有 249 灰阶的“苏”字傅里叶级次展开方法; (d)基于二极管泵浦固体激光器(DPSSL)光源的多台阶光刻结构; (e)基于 LED 的灰度光刻结构; (f) 3D 激光直写技术加工的复杂微纳结构

Fig. 1 Laser direct writing for gray lithography. (a) Laser direct writing principle based on point by point scanning^[51]; (b) laser direct writing principle based on field by field scanning^[51]; (c) Fourier level expansion method of “苏” character with 249 gray scale; (d) multi-step structures fabricated by gray lithography utilizing DPSSL; (e) multi-stage structures fabricated by gray lithography utilizing LED; (f) complex micro-nano-structures fabricated by 3D laser direct writing technology

当显微成像物镜的放大倍数为 M , 相位元件空频为 F_0 , 数值孔径为 NA 时, 则光刻胶上图案的空频应为 $F = (2MdF_0)/f_2$ 。但是, 由于受到显微物镜衍射极限的限制, 光刻胶上空频的最大值取决于 $\min\{2NA/\lambda, 2MdF_0/f_2\}$ ^[65]。如图 2(c)所示的模拟曲线, 当采用结构频率为 1500 lines/mm 的光栅为相位元件时, 其沿光轴方向平移 10 μm , 所制备的

光栅的周期改变量为 0.3 nm^[65]。该系统制备的结构精度可达 89 nm, 如图 2(d)所示的光栅结构, 周期约为 290 nm, 线宽约为 90 nm, 槽深约为 205 nm。逐像素曝光的方式可快速制备变周期变取向光栅结构, 如图 2(e)所示。当 M, NA 分别为 50, 0.9 时, 分别采用圆形光栅、菲涅耳波带片、微孔阵列、微柱阵列作为相位元件, 对应得到的微纳结构

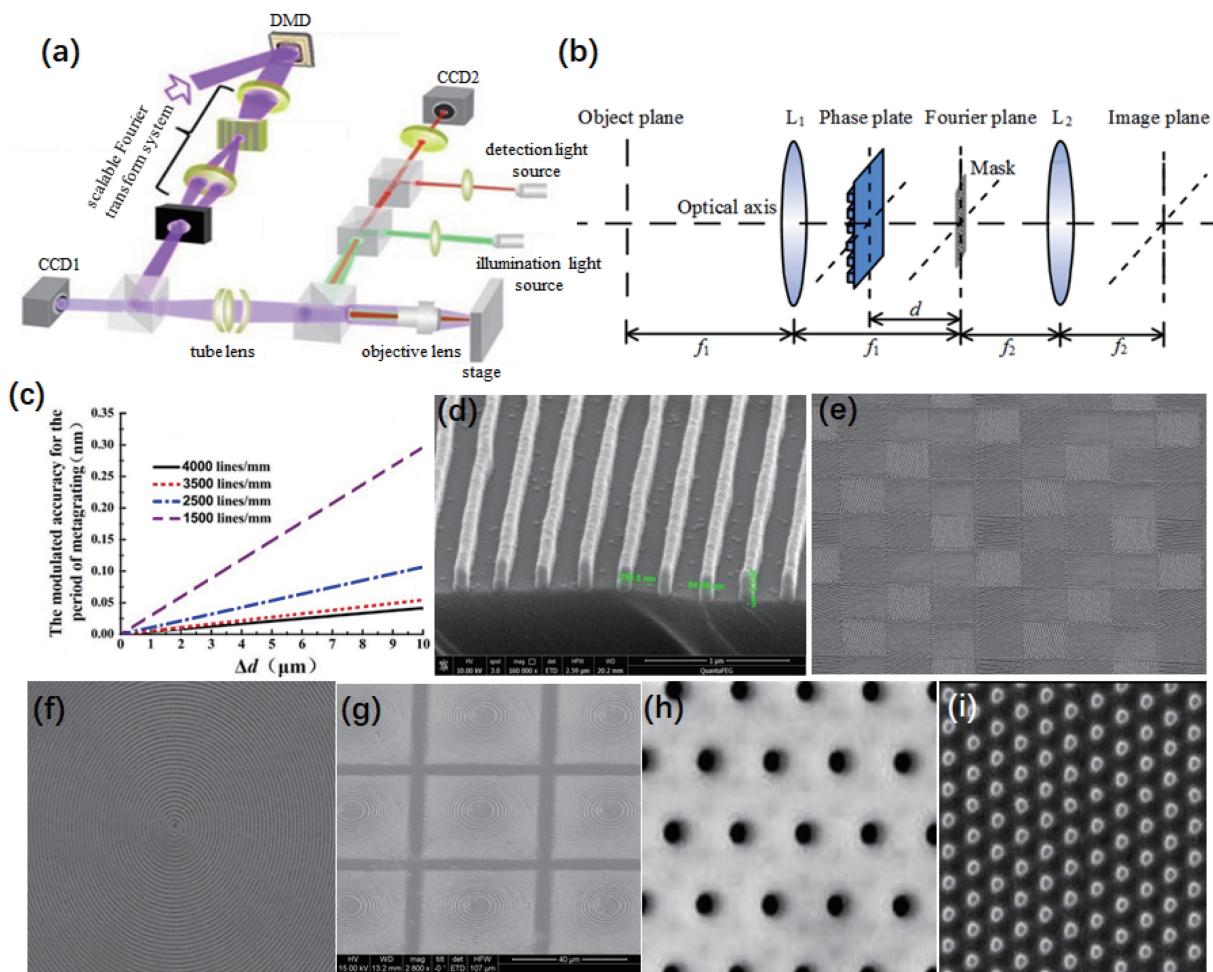


图 2 连续变频光刻系统及其光刻样品。(a)紫外(UV)连续变频光刻系统原理图;(b)基于相位元件调制的傅里叶变换光刻系统原理图^[65];(c)光刻结构周期改变量与相位元件轴向运动距离的关系^[7];(d)光栅结构 SEM 图;(e)像素式变周期变取向纳米光栅结构 SEM 图;(f)圆形光栅 SEM 图;(g)菲涅耳波带结构 SEM 图;(h)微孔阵列 SEM 图;(i)微柱阵列 SEM 图

Fig. 2 Continuous frequency lithography system and its fabricated samples. (a) Schematic of UV continuous frequency lithography system; (b) schematic of Fourier transform optical system based on phase element modulation^[65]; (c) relationship between the change of photolithographic structure period and the axial movement distance of phase element^[7]; (d) SEM image of grating structure; (e) SEM image of pixel-type nano-grating structure with variable period and variable orientation; (f) SEM of circular grating; (g) SEM image of Fresnel zone structure; (h) SEM image of microporous array; (i) SEM image of micro-column array

扫描电镜(SEM)图如图 2(f)~(i)所示。因此,对于相位元件调制的傅里叶变换光路,连续变频光刻系统成像面的光场分布为相位元件透射光场的两次傅里叶变换结果。

紫外连续变频光刻系统可制备的纳米结构周期精度达亚纳米,特征尺寸为 90 nm;可制备的微纳结构最小像素尺寸为 5 μm,像素间对位精度小于 0.5 μm。光场数据刷新率大于 12000 frame/s,逐像素光刻速度可达 5000 frame/s,比电子束光刻快 500 倍以上,可实现大面积、跨尺度微纳结构的快速制备。

2.3 大幅面数字微纳制造中的关键共性技术

根据 3D 光刻技术和紫外连续变频光刻技术的原理与方法,本课题组提出一种基于微纳结构制备的数字微纳加工技术。在此基础上,为实现大面积微纳结构的数字化快速制备,本课题组进一步攻克了海量数据处理、飞行曝光等关键共性技术^[68-70]。

按照半导体掩模图形设计和制备的经验,数据的分辨率需要采用实际图形线宽的 1/8~1/10 来定义,才能较好地表达实际图形。以幅面为 1000 mm×1000 mm、结构线宽为 2~3 μm 的图形为例。以 250 nm 数据分辨率定义图形,数据量

约为 16 Tbit。如果以 25 nm 数据分辨率来定义图形,数据量再增加 100 倍。因此,为实现“宏-微-纳”跨尺度结构制备,高速数据下载通道的研发和像素化的空间光调制控制十分关键。本课题组提出海量数据处理与上载技术对光刻矢量图形数据(例如 DXF 和 GDSII 格式)进行光栅化、分割、下载预处理,并对图形进行分割和搭接处理,如图 3(a)所示。基于此技术,本课题组开发了对应的处理软件 DS2TI,软件界面如图 3(b)所示。该软件以美国德州仪器的 DMD 作为核心器件,完成了外围软硬件开发,实现了 12 kHz 刷新速度的图形下

载加工。

此外,本课题组发展了光学自动聚焦技术,解决了大幅面下光刻胶版涂布、基片翘曲、环境影响造成的离焦问题。本课题组研发了主动式伺服聚焦技术(Z 校正技术),该技术对 Z 向离焦距离进行一次性预检测。在光刻运行时,将离焦数值作为 Z 向坐标,并对其与 X、Y 坐标进行同时控制,从而利用获得的离焦数据进行补偿。位移传感器用于测量 Z 向的数据,如图 3(c)、(d)所示。这种运行方式将聚焦运动和工件台运动统一,由控制系统管控,从而实现了在三维坐标系下的干涉光刻。

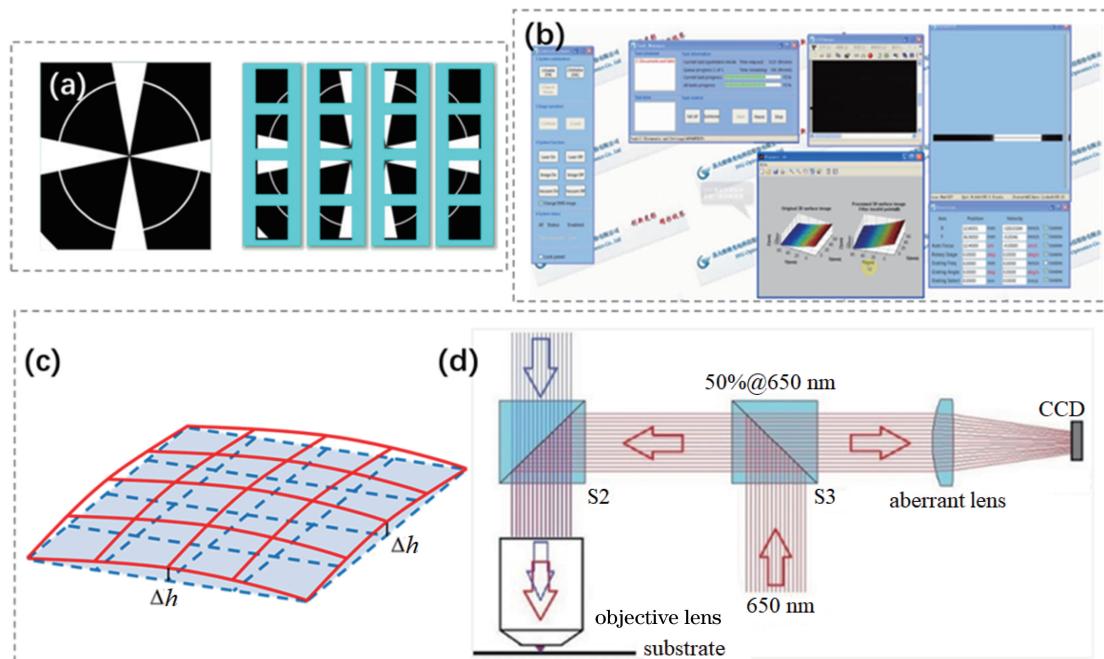


图 3 面向大幅面制备的关键技术。(a) DS2TI 软件对图形进行分割和搭接的示意图;(b) DS2TI 软件界面示意图;(c) Z 校正聚焦;(d) 3D 导航飞行曝光结构示意图

Fig. 3 Key technologies for large-area fabrication. (a) Using DS2TI software to divide and overlap the graphics; (b) DS2TI software interface diagram; (c) Z-correction focusing; (d) schematic of 3D navigation flight exposure structure

3 结构金属化方法与工艺

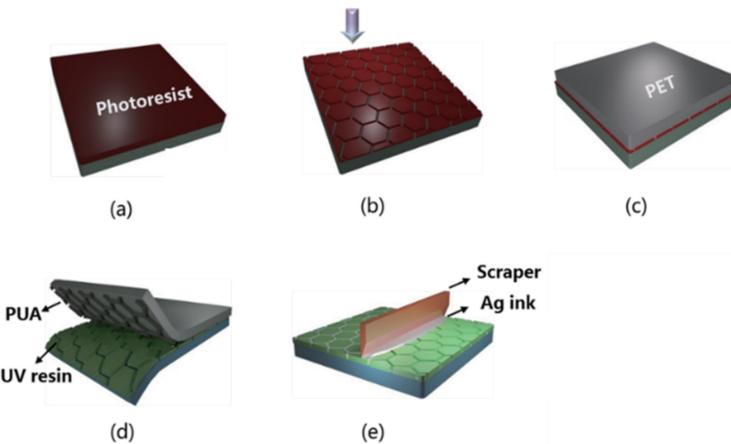
两个不同功能的微纳光刻技术为大面积光电子材料与器件的研发提供了图形化制备手段,实现了以 3D 光刻技术和紫外连续变频光刻技术为核心的大幅面数字微纳光制造平台,具有效率高、成本低、支持大幅面(米级)制造的优点。在此基础上,利用纳米压印技术,分别结合金属生长、镀膜等工艺,可实现大幅面柔性光电先进材料/器件的批量制备^[70-71]。

随着可穿戴领域的快速发展,透明导电电极(TCEs)为典型代表的金属微纳结构及其制备方法得到了高度关注和广泛研究^[72-77]。考虑到金属刻蚀

为代表的减法工艺具有污染严重、大幅面和小线宽一致性差等问题,本课题组发展了多种结构金属化加法制备工艺。

3.1 基于纳米压印及刮涂技术的结构金属化方法

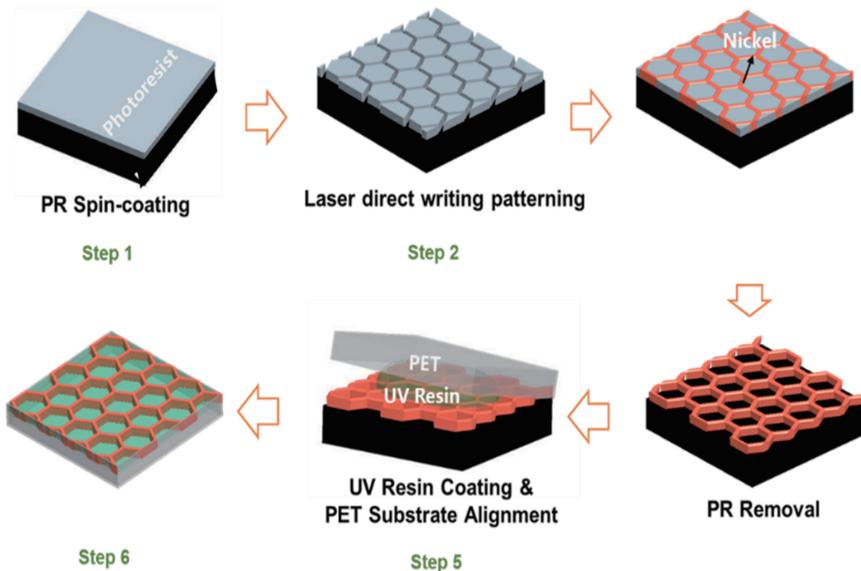
嵌入式 Ag-mesh 电极的制作流程如图 4 所示,利用激光直写技术,在光刻胶层上制备正六边形蜂窝排布的微沟槽,随后微沟槽结构被复制到聚氨酯丙烯酸酯(PUA)软模具上,为保证 Ag 墨水填充到微沟槽中,需制备高深宽比的微沟槽。采用纳米压印,将微沟槽结构转印至柔性基材,通过刮涂技术将 Ag 纳米墨水(固含量为 70%,黏度为 25 mPa · s,粒径为 200~300 nm)填充到微沟槽中,经过高温烧结固化,制备出埋入在 UV 胶中的 Ag-mesh 电极^[78]。

图 4 嵌入式 Ag-mesh 电极制作流程图^[78]Fig. 4 Fabrication flowchart of embedded Ni-mesh electrode^[78]

3.2 基于选择性电沉积的结构金属化方法

嵌入式 Ni-mesh 电极的制备流程如图 5 所示。在导电基板上旋涂光刻胶，利用激光直写技术在光刻胶层上进行曝光，形成图形化网栅结构；结合选择性电沉积工艺生长金属镍，受光刻胶沟槽限制，金属

镍只在微沟槽处生长沉积且不会展宽；去除光刻胶层，在导电基板上形成自支撑的镍蜂窝网栅结构；最后利用 UV 胶将镍网转移到柔性薄膜聚对苯二甲酸乙二醇酯 (PET) 上并剥离，制备出嵌入式 Ni-mesh 电极^[79]。

图 5 嵌入式镍网栅电极制备流程图^[79]Fig. 5 Fabrication flowchart of embedded Ni-mesh electrode^[79]

制备的正六边形蜂窝排布的 Ni-mesh 电极的周期为 $150 \mu\text{m}$, 线宽为 $3.5 \mu\text{m}$, 厚度为 $0.7 \sim 2.5 \mu\text{m}$ 。网栅厚度为 $0.7, 1.2, 1.5, 2.5 \mu\text{m}$ 的透明电极 (Ni-mesh/PET) 的透过率分别为 89.41% , 88.36% , 88.19% , 87.52% , 且在整个可见光波段, 雾度均低于 2.5% , 如图 6(a) 和 (b) 所示, 展现出了优异的光学性能。通过调节镍沉积时间, 在保持网栅线宽不变的条件下, 增加网栅厚度, 实现了电极导电性的提升, 同时保持透光率几乎不变。为评定所

制备透明电极的综合光电性能, 引入了品质因子 (FoM) 来定量分析透明电极整体性能, $F_{\text{oM}} = \frac{188.5}{R_s \left(\frac{1}{\sqrt{T}} - 1 \right)}$, 其中 T 为电极的透光率, R_s 为电极的方阻。

如图 6(d) 可见, 在不同周期下, 随镍沉积时间的增加, 即厚度的增加, 电极的 FoM 值均表现出显著的增加。可见, 随电极厚度的增加, 其透光率几乎保持不变, 导电性不断增强, 光电性能不断优化。

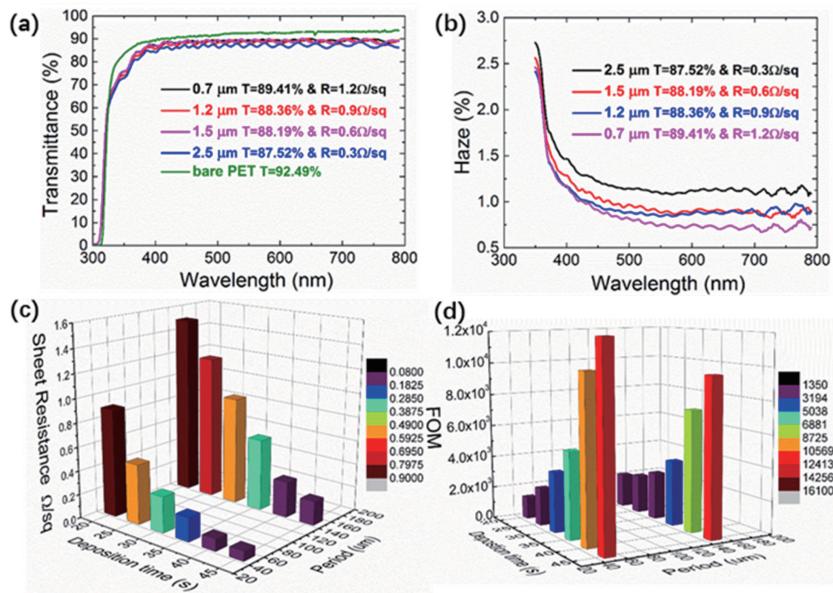


图 6 不同厚度嵌入式 Ni-mesh 电极的光电特性^[79]。(a)透光率;(b)雾度;
(c)不同周期 Ni-mesh 电极的方块电阻;(d)不同周期 Ni-mesh 电极的 FoM 值

Fig. 6 Photoelectric characteristics of embedded Ni-mesh electrode with different thickness^[79]. (a) Optical transmittance; (b) haze; (c) square resistance of the Ni-mesh electrodes with varying period; (d) FoM value of the Ni-mesh electrodes with varying period

为研究制备电极样品的机械性能,对样品进行了弯折性实验,测试了样品在弯折前后电学特性的

改变,如图 7 所示。同时,作为对比,在弯折测试过程中测量了氧化铟锡(ITO)和 Ni-mesh 电极在弯折

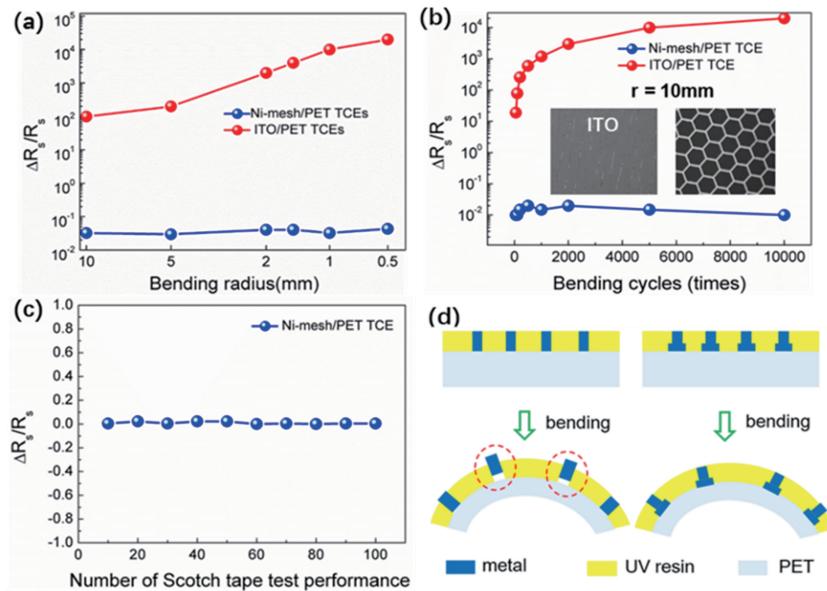


图 7 嵌入式 Ni-mesh 电极的机械特性^[79]。(a)不同弯折半径下 Ni-mesh 电极与 ITO 的方阻变化率;(b)反复弯折至 10000 次 Ni-mesh 电极与 ITO 的方阻变化率;(c)100 次胶带实验 Ni-mesh 电极与 ITO 的方阻变化率;(d)方形以及“T”型 Ni-mesh 电极的弯折情况

Fig. 7 Mechanical properties of embedded Ni-mesh electrode^[79]. (a) Square resistance change rate of Ni-mesh electrode and ITO under different bending radius; (b) square resistance change rate of Ni-mesh electrode and ITO under bend repeatedly of 10000 times; (c) square resistance change rate of Ni-mesh electrode and ITO under scotch tape test of 100 times; (d) deformation of the square- and “T”-structured Ni-mesh electrode after bending

前后方阻的改变。不同弯折半径下($0.5\sim10\text{ mm}$)，ITO/PET 的方阻增大了两个量级，而 Ni-mesh 电极的方阻未见明显改变；在弯折半径为 10 mm 的情况下，弯折次数达 10000 次时，Ni-mesh 电极的方阻几乎未发生变化，而 ITO 电极的方阻变化显著。在光学显微镜下观察弯折后两种电极的表面形貌，可明显看到 ITO 薄膜出现明显的裂纹，而 Ni-mesh 电极的表面未出现明显改变。在弯折、卷曲、甚至折叠成任意形状的状态下，Ni-mesh 电极依然保持稳定的导电性，对柔性光电子器件的应用至关重要。

3.3 基于刮涂技术及选择性电沉积的结构金属化方法

复合 Ag/Ni-mesh 电极制备流程如图 8 所示，利用激光直写技术在光刻胶涂层上制备网栅沟槽，通过纳米压印将光刻胶上的微结构转移至 PUA 软膜，具有互补结构的 PUA 模具可多次反复利用，且不易磨损。随后，在压印的模板上刮涂银墨水，形成导电 Ag-mesh，再进行高温烧结固化，利用选择性电沉积在 Ag-mesh 上继续沉积一层 Ni，制备出嵌入式复合型 Ag/Ni-mesh 电极^[80]。

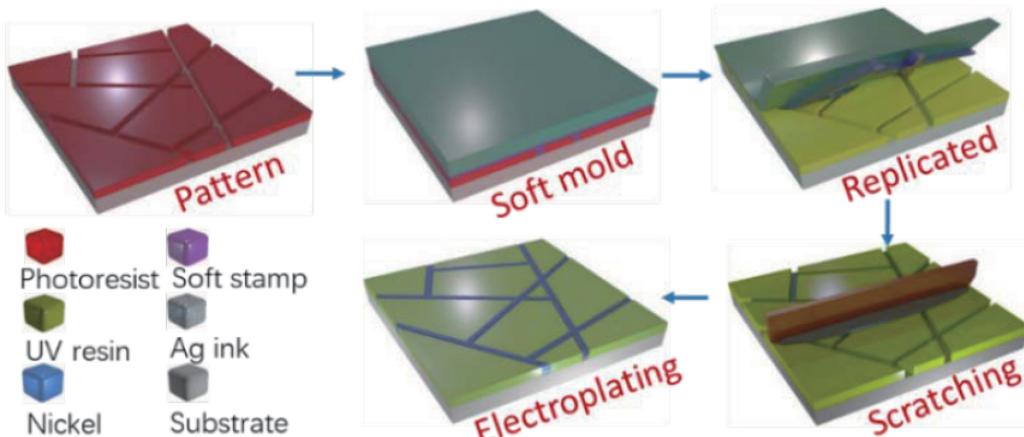


图 8 复合 Ag/Ni-mesh 电极制备流程图^[80]

Fig. 8 Fabrication flowchart of composite Ag/Ni-mesh electrode^[80]

为增强电极光电效能，采用高深宽比的随机网栅槽型结构，如图 9 所示。在沟槽内刮涂银墨水并沉积

不同时间金属镍，伴随镍网厚度增加，网栅线宽有所展宽，透光率由 85% 降至 83%，同时雾度从 3.4% 增

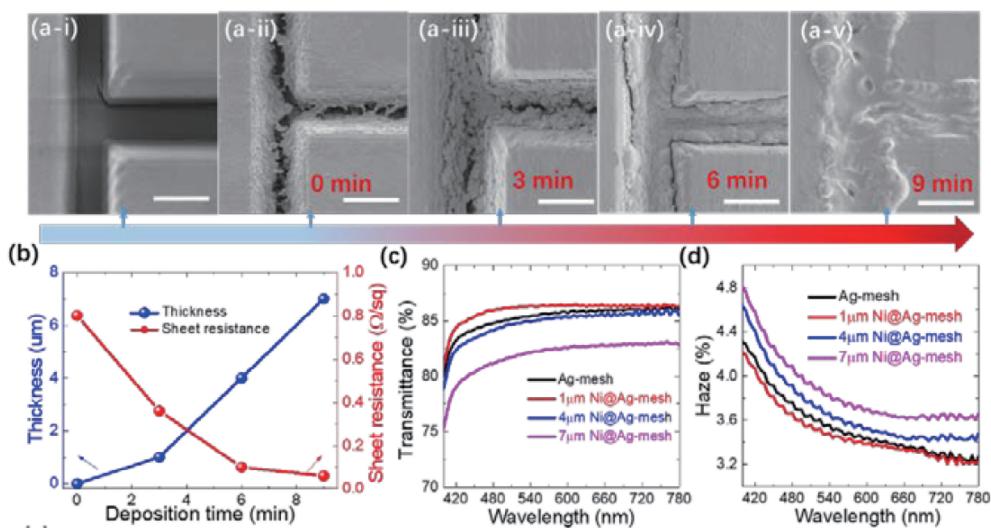


图 9 复合型 Ag/Ni-mesh 电极形貌图及光电特性曲线^[80]。(a)沉积不同时间金属镍 Ag/Ni-mesh 电极的 SEM 图；(b)～(d)沉积不同时间金属镍对应 Ag/Ni-mesh 电极的厚度及方阻，光学透过率，雾度

Fig. 9 Morphology and photoelectric characteristic curves of composite Ag/Ni-mesh electrode^[80]。(a) SEM image of the Ag/Ni-mesh electrodes under various Ni deposition time; (b)–(d) thickness and square resistance, optical transmittance, and haze of the Ag/Ni-mesh electrodes under various Ni deposition time

大到 3.8%。整体而言,在牺牲微小的透光性情况下,导电性有较大的提升,复合型电极光电性能显著。

3.4 基于选择性电沉积的自支撑金属结构制备方法

自支撑 Ni-mesh 电极的制备流程如图 10(a)所示。首先在导电基板上旋涂光刻胶,利用激光直写技术在光刻胶层上进行曝光,形成图形化网栅结构;

结合选择性电沉积工艺生长金属镍,诱导金属镍在光刻胶沟槽内约束生长;去除光刻胶层,在导电基板上形成自支撑的金属网栅结构;最后,将自支撑网栅从 ITO 上剥离,完成自支撑 Ni-mesh 电极的制备^[81]。所制备的镍网电极形貌如图 10(b)所示,具有随机结构的网栅排布方式,线宽为 5 μm,厚度分别为 2.5,4.0,6.0 μm。

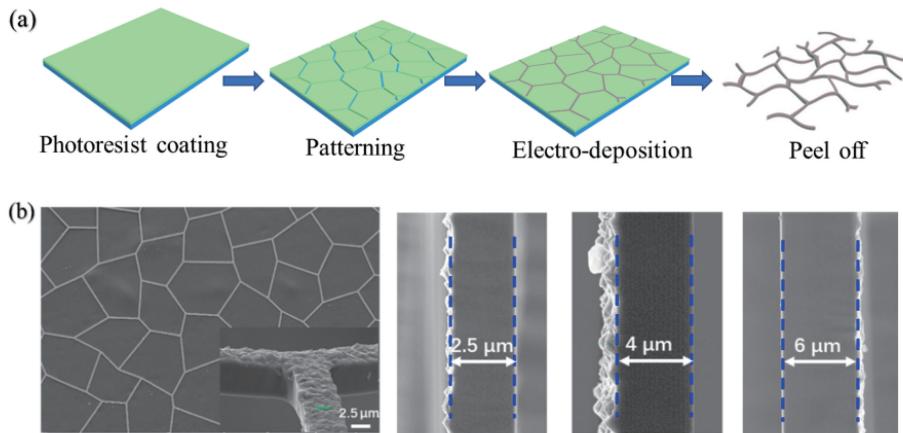


图 10 自支撑金属网栅电极的制备及相貌表征^[81]。(a)自支撑金属网栅电极制作流程图;
(b)镍网电极表面及侧面 SEM 图

Fig. 10 Fabrication process and morphology of the freestanding metal mesh electrode^[81]. (a) Fabrication flowchart of freestanding metal mesh electrode; (b) SEM of Ni mesh electrode surface and side

选择性电沉积技术制备的自支撑 Ni-mesh 电极无需衬底支撑,从而避免了衬底的一些弊端,如厚度大、透光率低、不耐高温等,使制备的自支撑电极

具备更高的光学透过率和超薄的厚度(2.5~6 μm),同时保证导电性不受影响,如图 11 所示。随厚度增加,透光率基本保持不变,同时方阻不断减

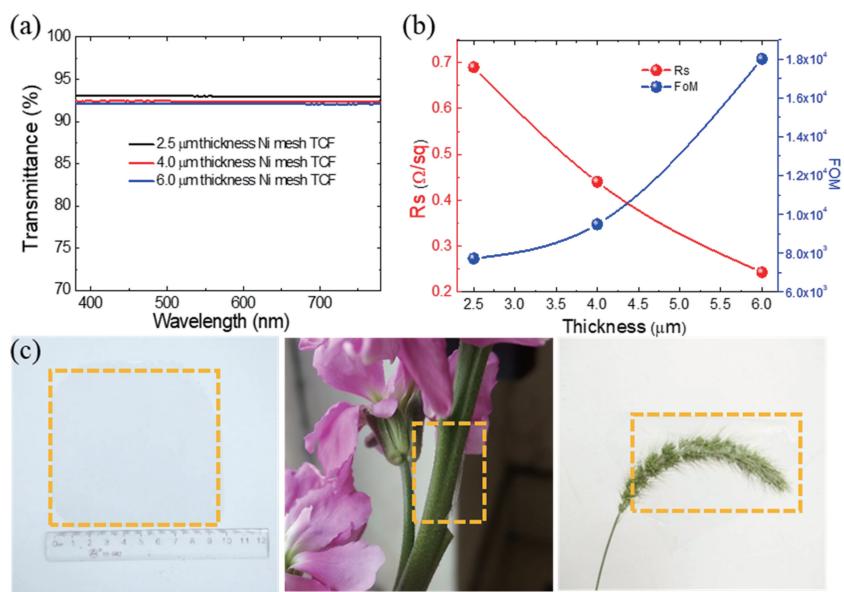


图 11 自支撑 Ni-mesh 电极的光电特性^[81]。(a)光学透过率;(b)方阻和 FoM 值;(c)自支撑 Ni-mesh 电极的实物图

Fig. 11 Photoelectric characteristics of freestanding Ni-mesh electrode^[81]. (a) Optical transmittance;
(b) square resistance and FoM; (c) image of the freestanding Ni-mesh electrode

小导电性增强,打破了传统电极光电效能的矛盾。超薄的自支撑 Ni-mesh 电极不仅透光性优良,兼具高柔韧性,可贴附于任意形貌表面,且质地轻,机械强度大。面积为 $10\text{ cm} \times 10\text{ cm}$ 的 Ni-mesh 电极厚度为 $6\text{ }\mu\text{m}$,质量仅为 0.0231 g ,可悬吊起质量为 100 g 的砝码而不损坏自支撑 Ni-mesh 电极。

4 微纳光学器件

4.1 纳米结构宽波段宽角度吸收器件

以消 0 级衍射光的点阵结构为相位元件,利用紫外连续变频光刻系统,在光刻胶表面制备了周

期为 290 nm 的圆柱点阵,其幅面为 $1\text{ cm} \times 3\text{ cm}$ 。以此像素化点阵结构为基础,与镀膜工艺或刻蚀、镀膜工艺相结合,通过选择不同的覆盖材料,实现了不同波段内宽角度、高吸收器件的制备^[82],其在 60° 入射角内的平均吸收均大于 85%。如图 12 所示,采用紫外连续变频光刻系统制备像素化二维圆柱点阵,并将其刻蚀转移至石英基板,依次镀 TiN 、 SiN_x 薄膜,同时实现可见-近红外波段内的高吸收与中红外波段的低辐射^[82],使得该纳米结构吸收器件可应用于光热转换装置、隐身器件、太阳能吸收器件等。

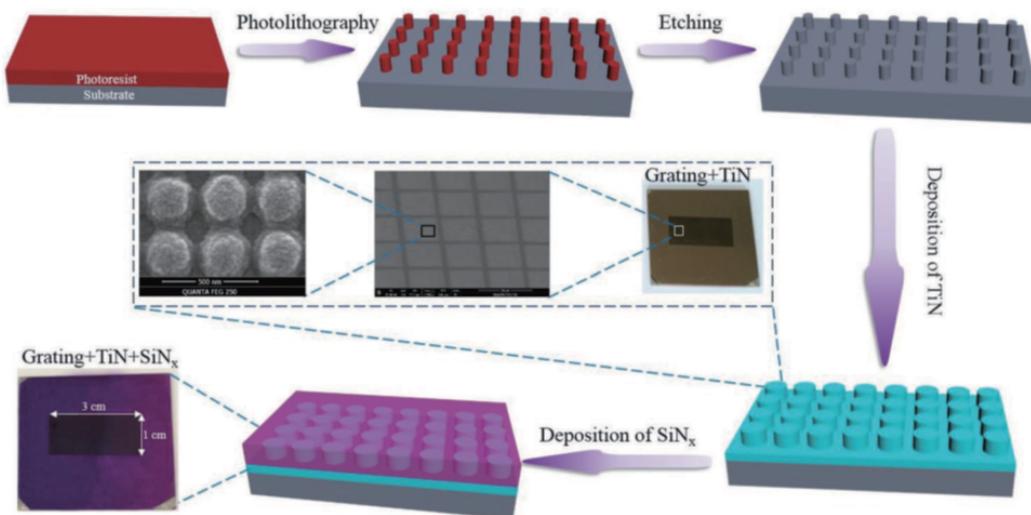


图 12 基于像素化点阵结构的吸收器件制备流程^[82]

Fig. 12 Fabrication process for the designed absorption device based on pixelated lattice structure^[82]

4.2 纳米结构彩色显示器件

以消 0 级衍射光的一维光栅为相位元件,利用紫外连续变频光刻系统,在光刻胶表面制备了周期为 $300\sim 500\text{ nm}$ 、周期间约 1 nm 的像素化光栅结构,再依次镀 30 nm 厚的 Al 膜、 200 nm 厚的介质

SiN_x 薄膜,首次得到了幅面为 $1\text{ cm} \times 3\text{ cm}$ 的彩虹显示图样,如图 13(a)所示,呈现了包括红色、绿色、蓝色在内的可见光区的所有颜色。利用相同的工艺流程,基于三种光栅周期,分别制备了幅面为 $3\text{ cm} \times 3\text{ cm}$ 的苏州大学彩色校徽图样和 $3\text{ cm} \times$

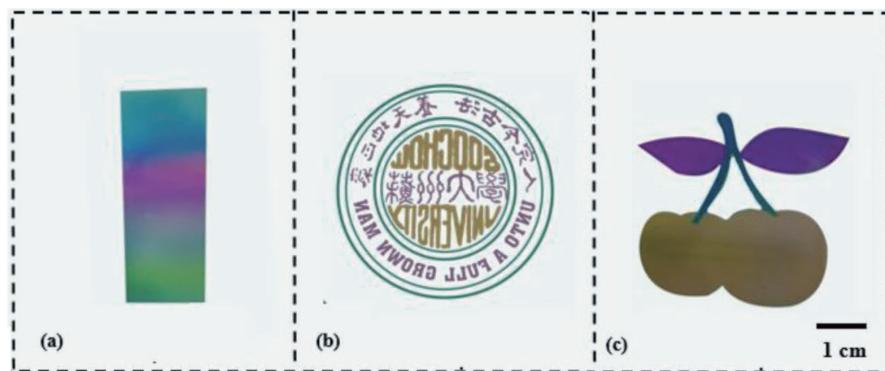


图 13 像素化纳米结构彩色图案^[83]。(a) 彩虹颜色显示;(b) 彩色校徽;(c) 樱桃图案

Fig. 13 Colorful displays incorporating pixelated nanostructures^[83].(a) Rainbow color display; (b) colorful school emblem; (c) cherry pattern

3 cm 的樱桃图像,如图 13(b)、(c)所示^[83]。利用紫外连续变频光刻系统,制备像素化光栅得到樱桃图样的时间仅为 15 min,并首次实现了可裸眼直接观察的纳米光栅结构彩色图案。

4.3 电致变色器件

电致变色材料是公认为最有应用前景的智能材料之一,在 20 世纪 30 年代开始出现,至今一直被广泛研究^[84-88]。与目前存在的其他被动变色技术相比,电致变色技术是一种新型的主动变色技术,基本原理主要是利用外电压,使电致变色材料的光学性能(吸收率、反射率、透过率)发生可逆的可见-红外光学颜色的变化,从而实现材料外观颜色和透明度的变化。

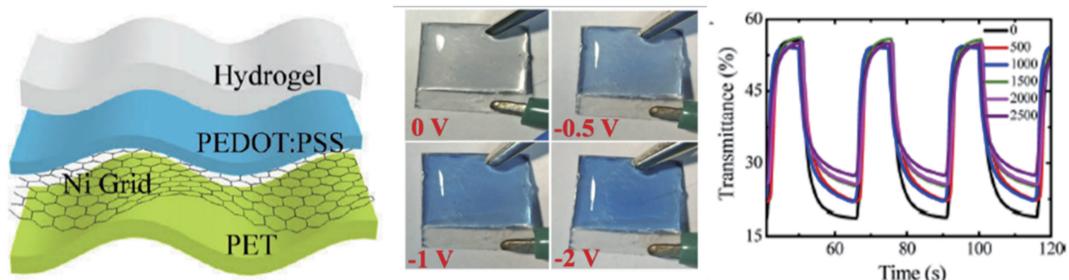


图 14 电致变色器件结构图、施加电压后的变色效果图及器件循环稳定性^[89]

Fig. 14 Structure of electrochromic device, color change effect diagram after applying voltage, and cycle stability of the device^[89]

4.4 宽视角向量光场 3D 显示

视觉是人类获取信息的主要来源。与自然景物不同,目前传统显示器件只能呈现二维图像。3D 显示作为“下一代显示技术”,终将变革现有 2D 显示器件。多视角 3D 显示技术^[90-94]的瓶颈之一是辐辏调解矛盾引起的眩晕感。当单眼调焦提供的深度信息和双眼会聚提供的深度信息不匹配时,将导致感知混乱并引起不适。向量光场显示通过精确控制每个像素的出光光线方向和发散角,重构空间三维物体,由于其对光线调控的灵活性,可分别设计水平和垂直方向视角数目及间隔,从而解决集成光场显示中出现的分辨率快速下降、视场角较小等问题。

本课题组提出的基于像素化纳米结构的向量光场 3D 显示方法如图 15 所示。会聚视点角间距与像素化纳米光栅的周期和取向变化有关。当视角间隔为 0.7° 时,纳米光栅周期调控精度需达到 0.12 nm。利用自主研制的紫外连续变频纳米光刻系统,可实现亚纳米调控精度的像素化纳米结构制备。本课题组制备了 6 inch 到 32 inch 幅面、含不同结构参数的视角调制板。将视角调制板与液晶屏幕

如图 14 所示,利用埋入式 Ni-mesh 电极作为导电基底,此电极表现出优异的光电性质(方阻 $\sim 0.5 \Omega/\text{sq}$,透光率 $\sim 84.8\%$)和良好的机械性能。Ni-mesh 电极、变色层 PEDOT:PSS(聚 3,4-乙撑二氧噻吩:聚苯乙烯磺酸盐)及离子传输层氯化锂水凝胶复合构建了一个具有高柔性的三层电致变色器件。三层电致变色结构制备简单,着色均匀且响应快(着色时间为 2.7 s,褪色时间为 4.7 s),绝对透光率对比度为 40%,循环稳定性高(2500 次循环后对比度保持率为 72%)。埋入式 Ni-mesh 电极和多功能水凝胶在响应时间、工作稳定性和机械性能等方面具有构建柔性电致变色器件的优势,为下一代柔性电子器件的研制奠定了基础^[89]。

结合,在 LED 光源照明下,实现了 16 个水平视角的精确调制,得到了视场角为 50° 的真彩色 3D 显示效果,重现的 3D 图像具有连续平滑的运动视差^[7]。

由于纳米光栅的理论衍射效率在 40% 左右,本课题组设计了基于闪耀光栅的视角调控板,提升光利用率。利用灰度激光直写技术,制备了多台阶闪耀光栅密排的视角调制板。如图 16(a)所示,混合视差图像与像素化闪耀光栅匹配,实现了多视点、低串扰、高衍射效率的 3D 显示,衍射效率理论可至 80%^[95]。

4.5 虚实融合光场 3D 显示

本课题组采用变周期、变取向的像素化纳米结构重构三维光场信息,设计了环境光可透,并对特定角度入射光线精确调控的全息融合屏。全息融合屏包含了 1.6 亿个像素化纳米结构,数据量达 40 Tbit。纳米光栅空间频率变化范围为 357 ~ 2886 line/mm,最小周期变化为 0.645 nm。将投影图像与全息融合屏结合,实现了水平 16 视角的精确调控,获得了视场角为 47° 的彩色 3D 显示效果,重现的 3D 图像具有连续的水平运动视差,如图 17 所

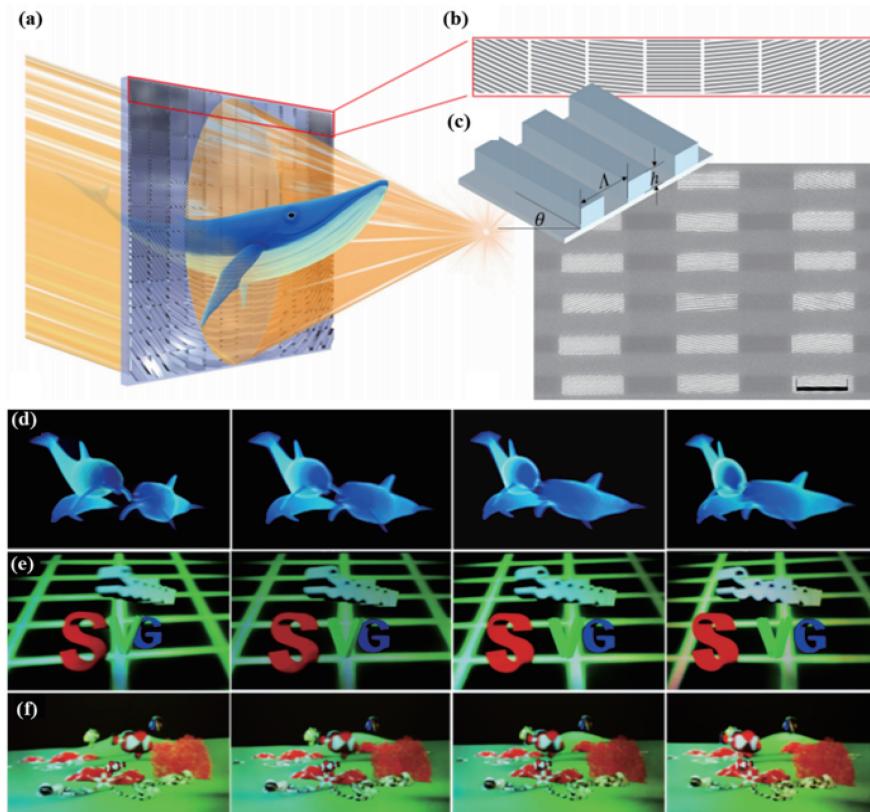


图 15 基于纳米光栅的向量光场显示^[7]。(a)纳米光栅实现视角调控的机理图;(b)纳米光栅排布示意图;(c)纳米光栅 SEM 图,比例尺为 $20 \mu\text{m}$;(d)~(f)不同视角下的 3D 显示效果

Fig. 15 Vector light field display based on nano-grating^[7]. (a) Mechanism diagram of nano-grating realizing views control; (b) schematic of nano-grating arrangement; (c) SEM image of nano-grating with scale of $20 \mu\text{m}$; (d)–(f) 3D perspective images from different views

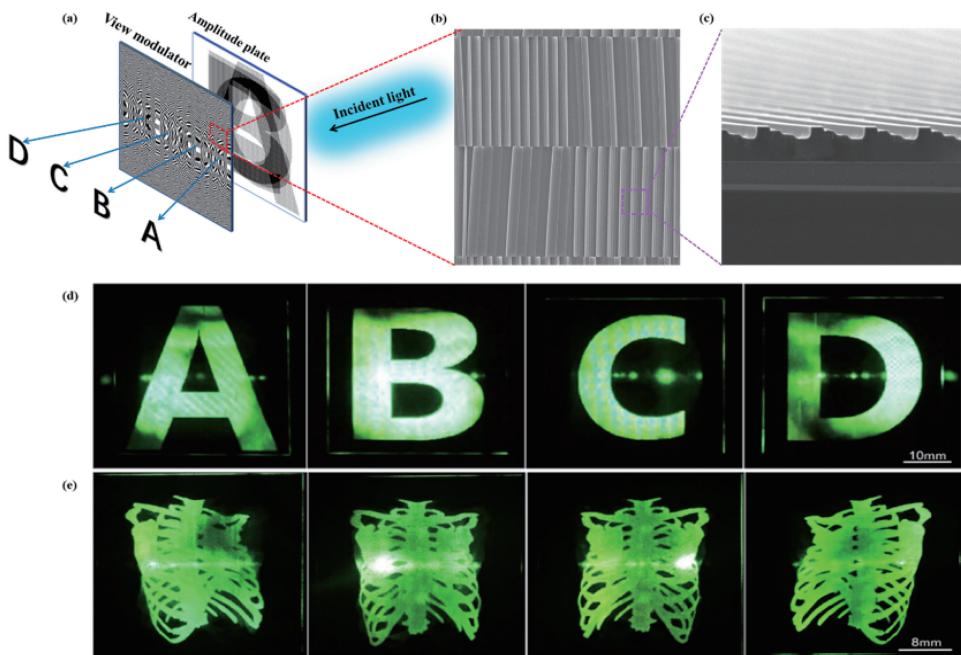


图 16 基于闪耀光栅的向量 3D 显示^[95]。(a)向量光场 3D 显示机理图;(b)(c)闪耀光栅 SEM 图;(d)(e)不同视角下的 3D 显示效果

Fig. 16 Vector 3D display based on blazed grating^[95]. (a) 3D display mechanism diagram of vector light field; (b) (c) SEM image of blazed grating; (d) (e) 3D display effect under different views

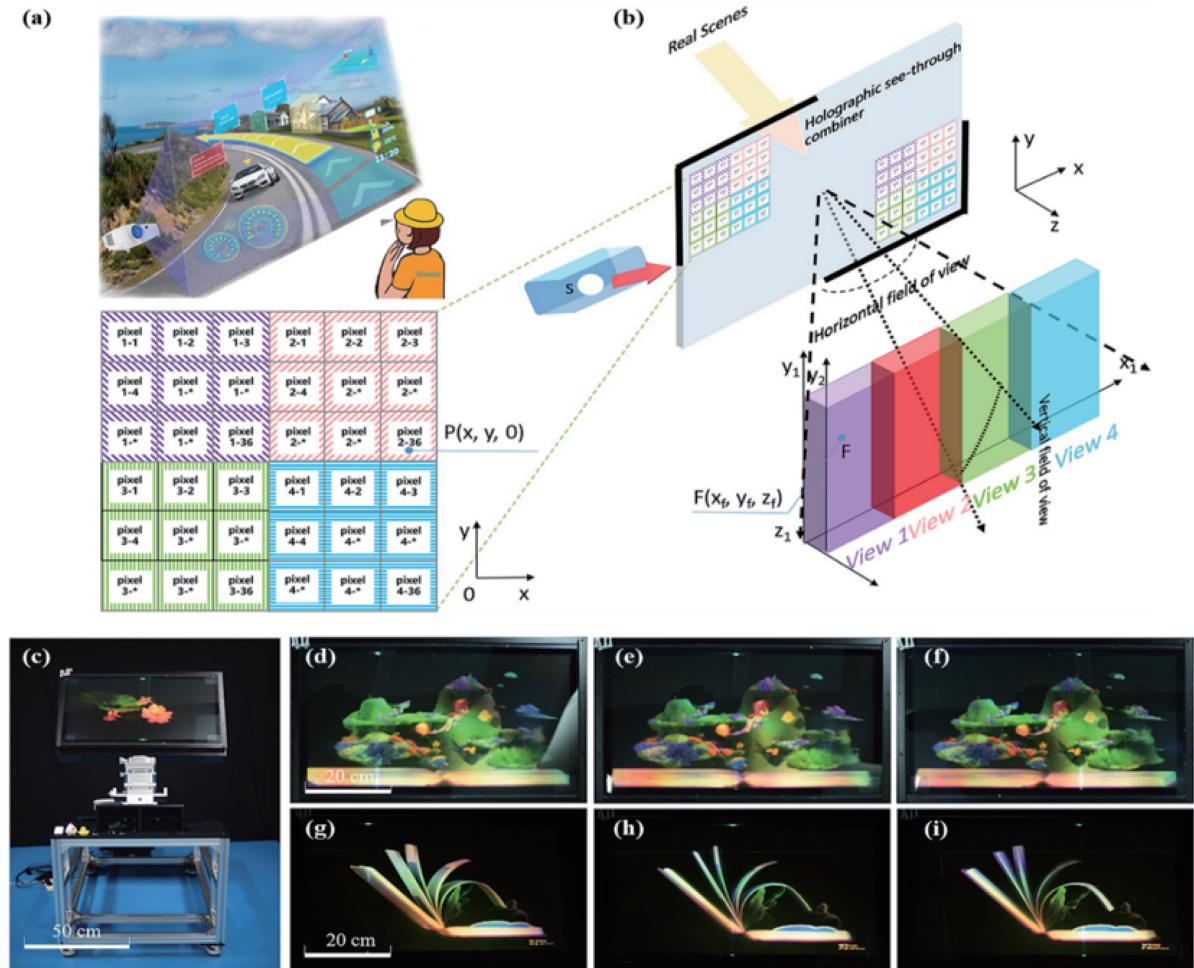


图 17 基于向量光场的虚实融合真 3D 显示^[96]。(a)增强现实 3D 显示示意图;(b)多视点 3D 显示机理图;(c)裸眼型增强现实 3D 显示器;(d)~(f)从左、中到右视图观察到的美人鱼 3D 图像;(g)~(i)从左、中到右视图观察到的展开书籍 3D 图像

Fig. 17 True 3D display of virtual reality fusion based on vector light field^[96].(a) Schematic of augmented reality 3D display; (b) mechanism of multi view 3D display; (c) naked eye augmented reality 3D display; (d)–(f) mermaid 3D images observed from left, middle, and right views; (g)–(i) 3D images of unfolded book observed from left, middle, and right views

示^[96]。首次实现的 32 inch 3D 动态虚实融合显示具有宽视场、彩色、可批量复制、运动视差的特点,为抬头显示、橱窗展示提供了全新解决方案。

5 柔性光电子器件应用

5.1 电磁屏蔽器件

近年来,随着电子工业的迅速发展,电子电器和通讯设备得到了广泛的应用,电磁波已经与人们的生活密切相关。电磁波的广泛应用在给人们生活带来日新月异变化的同时,也使得空间电磁环境日益复杂,造成电磁辐射污染。不必要的电磁干扰不仅对电子设备造成故障,威胁通信设备的信息安全,而且对人体健康产生有害影响,已成为现代社会的关注重点。因此,诸多领域都提出了电磁屏蔽的要求,

尤其是要屏蔽空间中分布最广泛、强度最大的微波,为此电磁屏蔽技术应运而生,而且获得了较大的进展,新型电磁屏蔽材料不断出现并应用^[97–100]。然而,随着高新科技的迅猛发展,电磁环境也日益复杂,覆盖频段不断增大,对电磁屏蔽技术又提出了新的挑战。除了有一般设备较高的电磁干扰屏蔽性能外,透明度也是光学设备在光学窗领域的另一个重要参数,这种光学设备可应用于航空航天客舱、观测窗、电子显示等领域及可穿戴设备等电子领域。研制柔性透明电磁屏蔽材料已成为当前研究的热点。

将复合型嵌入式 Ag/Ni-mesh 电极(周期为 160 μm,线宽为 4 μm,槽深为 8 μm)作屏蔽薄膜,如图 18 所示,当镍的厚度从 0 增加至 7 μm 时,方阻从 0.8 Ω/sq 降到 0.07 Ω/sq,在 X-band(8.2 ~

12.4 GHz) 的屏蔽效能从 28 dB 增至 43 dB, 而透光率仅降低 2%。当环境温度从 20 °C 升至 70 °C 时, 电极屏蔽效能基本保持不变, 表明其对复杂环境有

较强的适应性。此外, 随电磁波入射角度变化(0~70°), 屏蔽效能不断增大, 入射角度变换不会引起屏蔽效能的降低。

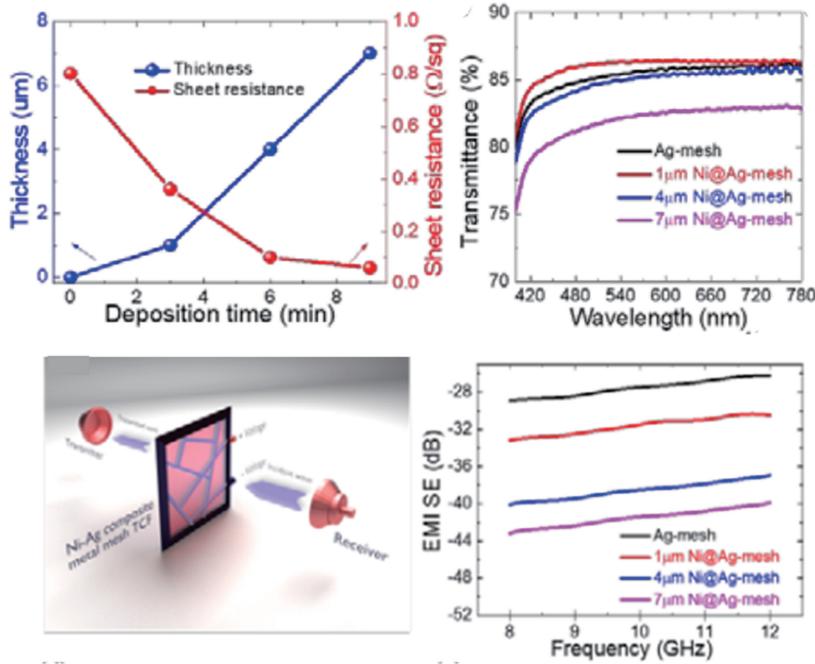


图 18 复合 Ag/Ni-mesh 电极沉积不同时间对应的厚度、方阻、透光率及屏蔽效能^[80]

Fig. 18 Thickness, square resistance, transmittance, and shielding effectiveness of composite Ag/Ni-mesh electrode deposited at different time^[80]

结合光刻技术和选择性电沉积技术制备的自支撑 Ni-mesh 电极无需衬底支撑, 从而避免了衬底的一系列缺陷, 如厚度大、透光率低、不耐高温等, 使制备的自支撑电极具备更高的光学透过率和超薄的厚度。如图 19 所示, 制备的电极周期为 150 μm, 线宽为 5 μm, 通过调控金属镍的沉积时间控制网栅厚度(2.5~6.0 μm), 电极透光率保持 92%~93%, 方阻由 0.7 Ω/sq 降至 0.24 Ω/sq, 屏蔽效能由 37.6 dB 增至 41 dB, 在透光率不变的情况下屏蔽效能有较大的提升。通过调控 Ni-mesh 电极厚度, 在保持高

透光率的同时, 可以达到高屏蔽效能的目的。同时, 超薄的自支撑镍网机械效能优良, 在弯曲、反复弯折状态下, 可以保持效能几乎不变, 可应用于复杂结构表面^[81]。

单层网栅深宽比有限, 且额外涂覆银纳米线, 对屏蔽效能的提高有限, 双层网栅的设计可以较大程度地提升器件的屏蔽效能, 以符合高屏蔽效能要求。设计的双层 Ni-mesh 结构如图 20 所示, 将制备的镍网分别转移至柔性透明衬底的两侧, 利用双层金属网栅的叠加实现屏蔽效能的增强^[101]。

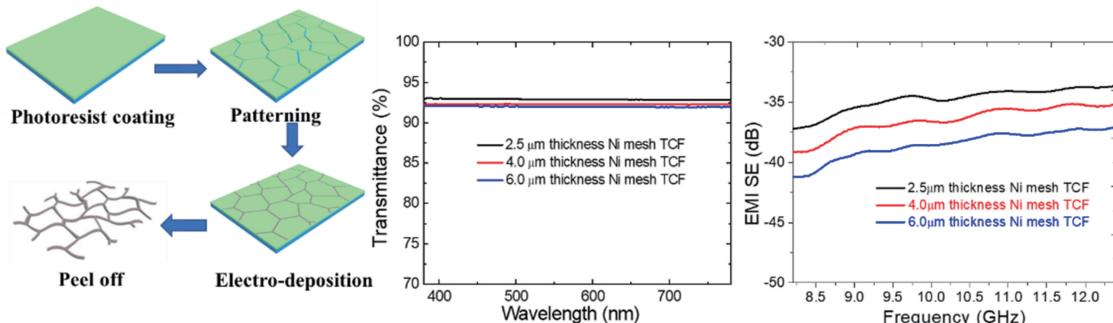


图 19 自支撑 Ni-mesh 电极透光率及屏蔽效能^[81]

Fig. 19 Transmittance and shielding effectiveness of self-supporting Ni-mesh electrode^[81]

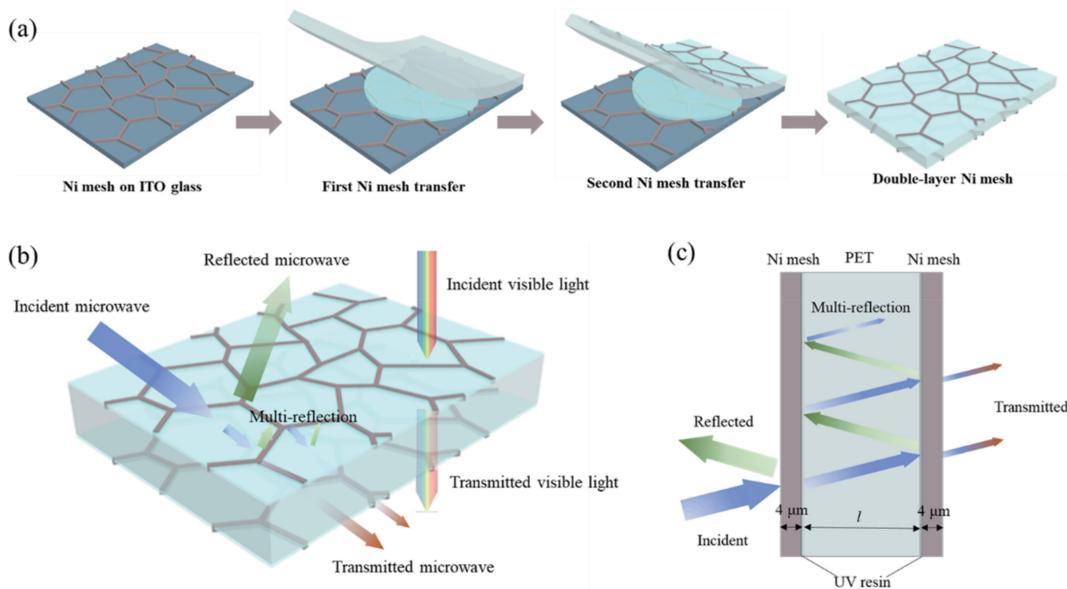


图 20 双层 Ni-mesh 器件结构示意图^[101]。(a)制备流程图;(b)屏蔽机制;(c)侧面屏蔽示意图

Fig. 20 Structure diagram of double-layer Ni-mesh device^[101]. (a) Fabrication process; (b) shielding mechanism; (c) side view of shielding mechanism

为增加网栅透光性,在薄膜的表面涂覆一层聚乙烯醇(PVA)凝胶,厚度为(20±5) μm ,可有效将

透光率提高5%~10%,如图21(a)所示。由不同周期单层以及双层Ni-mesh电极的屏蔽效能以及透

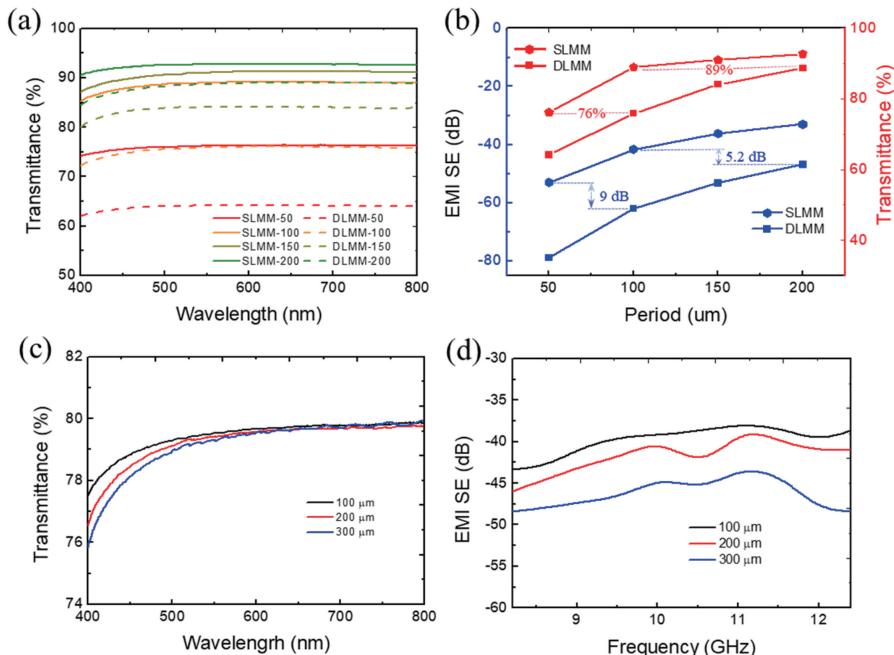


图 21 单层及双层 Ni-mesh 电极的透光性能和屏蔽效能^[101]。(a)经增透膜 PVA 涂覆,单层和双层 Ni-mesh 电极的透光率;(b)不同周期单层和双层 Ni-mesh 电极的透光率,屏蔽效能;(c)(d)随双层网栅层间距变化,双层 Ni-mesh 电极的透光率,屏蔽效能变化

Fig. 21 Optical transmittance and shielding efficiency of the single-layer and double-layer Ni-mesh electrodes^[101]. (a) Transmittance of the single-layer and double-layer Ni-mesh electrodes after PVA coating; (b) shielding effectiveness and transmittance of single-layer and double-layer Ni-mesh electrodes with various grid space; (c)(d) transmittance and shielding effectiveness of the double-layer Ni-mesh electrodes under different double-layer grid spacing

光率的汇总可见,较单层网栅而言,在透光率相同情况下,如周期为 $50\text{ }\mu\text{m}$ 的单层网栅与周期为 $100\text{ }\mu\text{m}$ 的双层网栅透光率皆为 76%,周期为 $100\text{ }\mu\text{m}$ 的单层网栅与周期为 $200\text{ }\mu\text{m}$ 的双层网栅透光率皆为 89%,整体屏蔽效能分别有 9 dB, 5.2 dB 的提升,如图 21(b)所示,双层网栅屏蔽效能可高达 80 dB,远高于单层网栅的屏蔽效能。此外,通过调节双层网栅间距($100\sim300\text{ }\mu\text{m}$),随间距增加,网栅间互感减弱,屏蔽效能逐渐增强(5 dB),且不会造成透光率的降低。双层金属网栅可较大程度提升屏蔽效能,具有很高的实际应用潜力。

5.2 超级电容器

随着可穿戴电子设备及智能产品的飞速发展,超薄、柔性、透明和智能可控的便携式多功能储能装置日益受到人们的广泛关注。超级电容器作为一种新型储能器件,因可填补电池功率密度与电容器能量密度的不足受到科技工作者的广泛关注^[102-106]。制备高性能柔性透明全固态超级电容器以调控其透

明性、机械力学性及储能性能,关键技术在于柔性透明高性能电极制备。以新型柔性透明导电薄膜为集流体,并负载高性能活性储能电极材料,并且通过微纳结构设计等实现高透明度及机械力学性质,良好的机械柔韧性确保器件可在任意形变时仍保持良好的储能性质,有望获得高性能柔性透明全固态超级电容器,以满足可穿戴电子产品的需求。

利用纳米压印技术和纳米银填充技术制备出的高性能埋入式 Ag-mesh 电极具有优异的光电性质(方阻 $\sim 2\text{ }\Omega/\text{sq}$,透光率 $\sim 89.74\%$)和机械力学性质(重复弯折十万次后电阻保持恒定)。如图 22 所示,以此高性能 Ag-mesh 电极为集流体,通过旋涂法制备 PEDOT:PSS 层并将其作为电化学活性层,基于此实现的全固态超级电容器器件表现出高透明度(透光率 $\sim 80.58\%$)、高电容值、长循环寿命及优异的耐弯折性质(以 2 mm 为曲率半径重复弯折 1000 次,电容值仅降低 2.6%),是未来高性能柔性透明全固态超级电容器的有力竞争者之一^[107]。

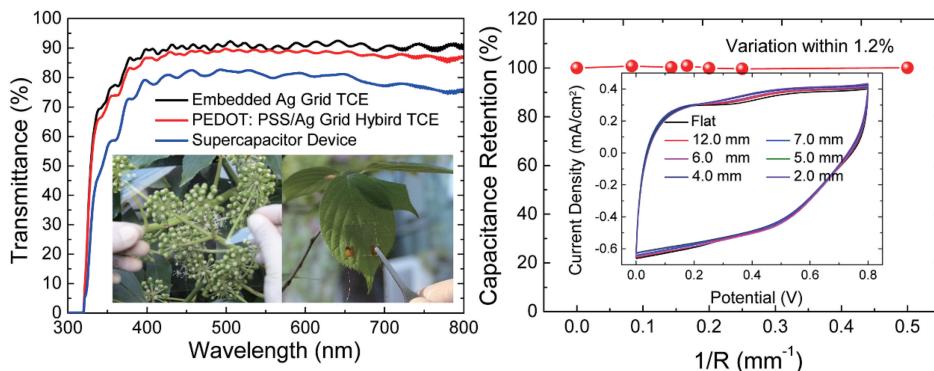


图 22 基于 Ag-mesh 电极的全固态超级电容器实物图、透过性、电化学储能及耐弯折特性^[107]

Fig. 22 Physical diagram, permeability, electrochemical energy storage, and bending resistance of all solid state supercapacitor based on Ag-mesh electrode^[107]

填入的纳米银的间隙等限制了上述电极的电阻值,需要进一步提升其导电性以提升集流体收集电流,从而提升储能性能。以低成本选择性电沉积工艺代替纳米银填充技术,结合倒置薄膜工艺技术,制备出新型埋入式金属栅型透明导电薄膜。如图 23 所示,在此电极中,选择性电镀工艺实现的金属网格具有比纳米银网格更低的电阻值,因此,该透明导电电极表现出更加优异的光电性质(方阻 $\sim 0.2\text{ }\Omega/\text{sq}$,透光率 $\sim 84\%$, FoM 为 10^4)和机械力学性质。同样,以此透明导电膜为集流体,溶液法制备的 PEDOT:PSS 活性储能材料实现了高性能柔性透明全固态超级电容器器件。

智能可穿戴电子设备的广泛应用对储能设备提

出了更高的要求,如透明性、可折叠性、透气性等。传统的超级电容电极需要衬底支撑,严重限制了透气性、柔性和透明性。如图 24 所示,拥有超薄($\sim 6\text{ }\mu\text{m}$)、高导电($4\times 10^5\text{ S/m}$)、高透明度($>91\%$)、空气渗透(2600 mm/s,压强为 10 Pa 条件下)等特性的自支撑金属网栅可用作良好的集流体,通过沉积氧化锰活性材料,构建透气透明可折叠的固态超级电容器。如图 25 所示,通过引入金纳米颗粒作为 Ni 和 MnO_2 之间的“纳米胶”,在 MnO_2 -Au-Ni 电极上获得了优异的电化学性能及循环稳定性。此外,基于 MnO_2 -Au-Ni 电极组装的固态超级电容器具有较高的透光性($\sim 83.6\%$)、优良的透气性(45.4 mm/s,压强为 100 Pa 条件下)、优异的电

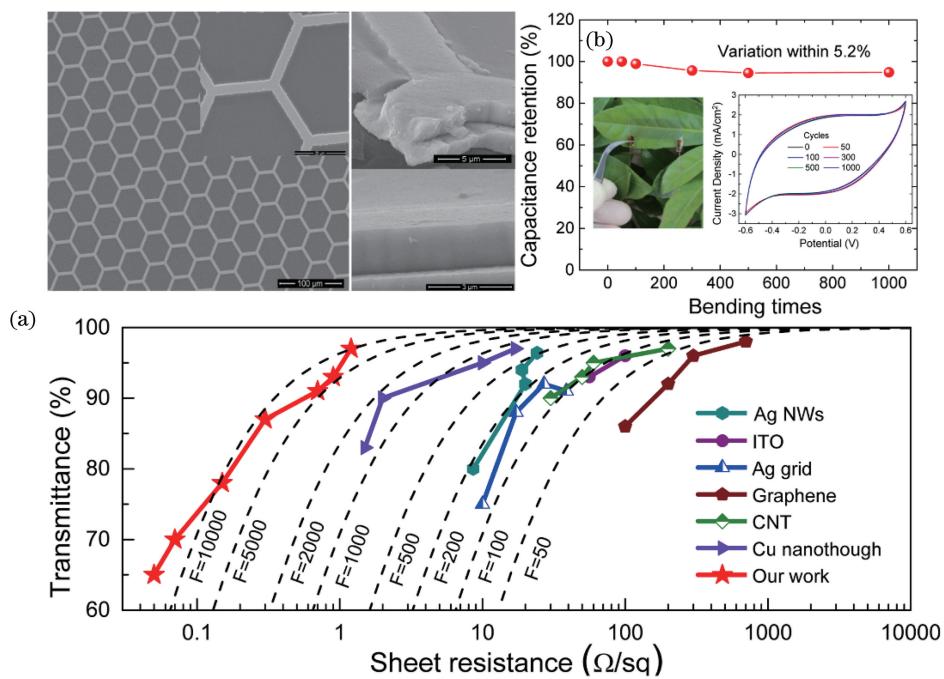


图 23 基于柔性透明自支撑电极的超级电容器的性能表征^[79]。(a)自支撑 Ni-mesh 电极及基于此构建的超级电容器的透光率;(b)超级电容器弯折之后的电化学性能

Fig. 23 Performance characterization of supercapacitor based on flexible transparent self-supporting electrode^[79]. (a) Self-supporting Ni-mesh electrode and the transmittance of supercapacitor based on this; (b) electrochemical energy storage properties of the supercapacitor after folding

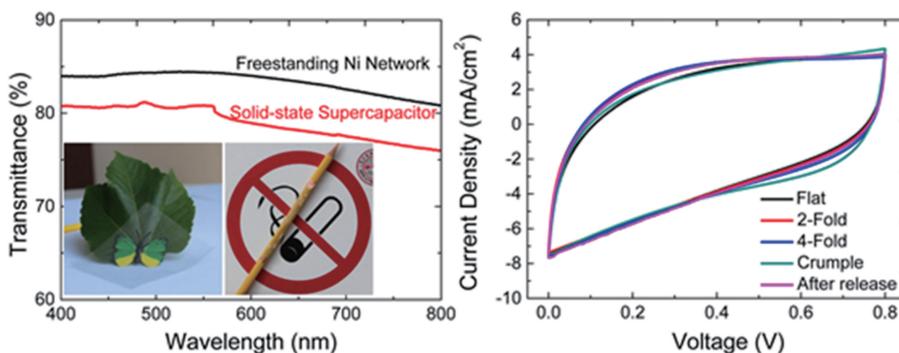


图 24 基于 Ni-mesh 的柔性透明导电薄膜光电性质、微纳结构及全固态超级电容器实物图、电化学储能及耐弯折特性^[108]

Fig. 24 Optoelectric properties, micro-nano-structure and solid state supercapacitor, electrochemical energy storage and bending resistance of flexible transparent conductive film based on Ni-mesh^[108]

化学性能($21.25 \text{ mF}/\text{cm}^2$)、稳定的机械性能，能够承受弯曲、折叠、压皱等各种变形。这种同时具备柔性和透明性和透气性的自支撑电极可以进一步开发或应用于各种潜在的应用，如离子电池、可穿戴传感器和保形医疗设备。

为提升电容器储能能力，单纯增加活化材料负载量对电化学性能调控有限，通过调控活化材料氧化锰的微观形貌，制备高性能柔性透明超级电容器电极。通过精确控制氧化锰沉积温度，形成

微纳结构氧化锰，进一步提高电极的比表面积，有效增加电解质和电极材料的接触面积，如图 26 所示。制备的 $\text{MnO}_2 @ \text{Au-Ni}$ 电极透过率为 69.4%，面积电容为 $1.15 \text{ F}/\text{cm}^2$ ($0.25 \text{ F}/\text{cm}^2$ ，常温状态下沉积氧化锰)，具有良好的循环稳定性。对应的固态超级电容器实现了高性能电化学储能($78.46 \text{ mF}/\text{cm}^2$)、稳定的充放电循环、高透光率(60%)及机械稳定性，实现了大容量柔性透明超级电容器的制备^[110]。

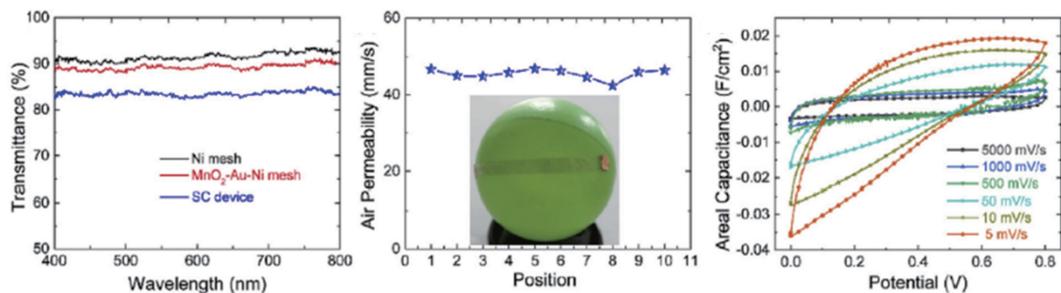
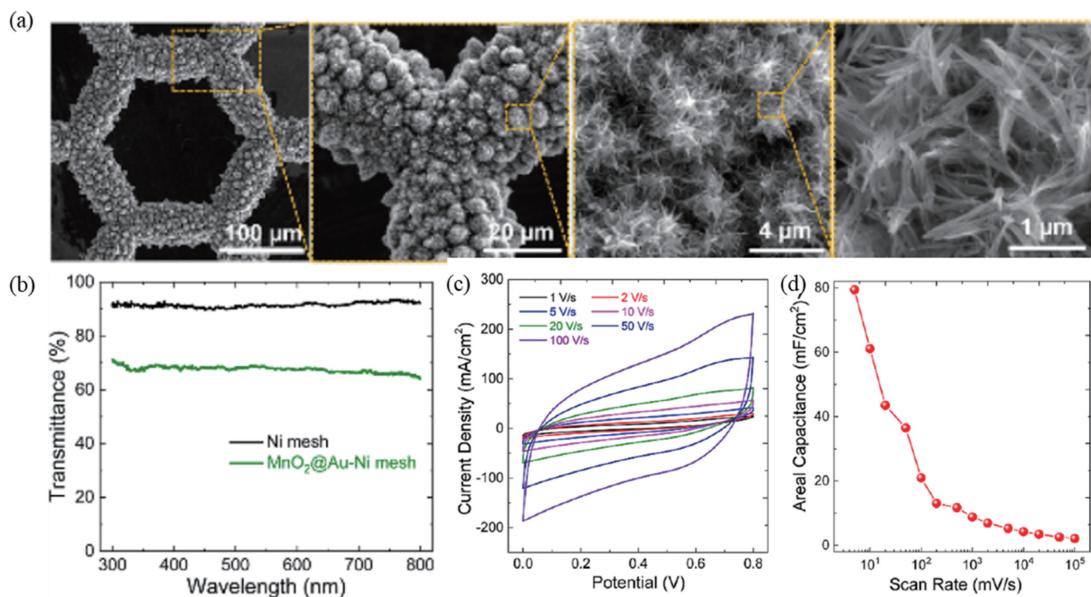
图 25 基于自支撑电极的超级电容器透光率、透气性及储能性能^[109]

Fig. 25 Transmittance, gas permeability, and energy storage performance of supercapacitor based on self-supporting electrode^[109]

图 26 MnO₂@Au-Ni 电极性能表征^[110]。(a) 不同比例尺下 MnO₂@Au-Ni 电极的 SEM 图;(b) Ni-mesh 电极与 MnO₂@Au-Ni 电极的透光率;

(c)(d) MnO₂@Au-Ni 电极构建的超级电容器在不同扫速下的循环伏安曲线和面积电容

Fig. 26 Characterization of MnO₂@Au-Ni electrode performance^[110].(a) SEM image of the MnO₂@Au-Ni electrode under various scale bar; (b) transmittance of the Ni-mesh electrode and MnO₂@Au-Ni electrode; (c) (d) cyclic voltammetry curves and areal capacitance of the supercapacitor structured by MnO₂@Au-Ni electrode with varying scanning rate

6 展望与挑战

柔性光电子器件在大幅面、3D 复杂结构、跨尺度、透明或柔性基底等方面的需求促使微纳光制造技术的持续发展。按照图形化、批量化、功能化的工艺步骤,依次介绍了 3D 光刻技术、紫外连续变频光刻技术及大面积微纳图像化的共性关键技术(海量数据处理技术、飞行曝光技术)。还介绍了多种基于限定性生长、涂布等工艺的微纳结构金属化方法与技术。借助微纳光制造平台,最后介绍了光吸收器件、电致变色器件、向量光场 3D 显示等新型微纳光学器件及电磁屏蔽器件、超级电容器等柔性电子材

料/器件的创新应用。

在微纳技术的推动下,光电子器件朝着柔性化、智能化、微小化、集成化方向发展,在显示、通讯、探测、储能等领域发挥越来越重要的作用,是国计民生的重要产业和研究领域。后疫情时代,国际环境复杂严峻,不稳定性、不确定性较大,我国作为制造大国,需形成以国内大循环为主体、国内国际双循环相互促进的新发展格局,以保障显示、半导体、传感等领域的安全。从微纳制造领域来看,依赖国际设备和材料现象仍比较严峻。坚定不移地自主研发微纳制造装备,并建立自主可控的微纳工艺制造平台,可为我国微纳柔性光电子产业发展提供核心竞争力。

参 考 文 献

- [1] Wu S L, Gu Y, Ye Y, et al. Omnidirectional broadband metasurface absorber operating in visible to near-infrared regime [J]. Optics Express, 2018, 26(17): 21479-21489.
- [2] Wu S L, Ye Y, Luo M H, et al. Polarization-dependent wide-angle color filter incorporating meta-dielectric nanostructures [J]. Applied Optics, 2018, 57(14): 3674-3678.
- [3] Wu S L, Ye Y, Gu Y, et al. Transmitted plasmonic colors with different overlays utilizing the Fano-resonance [J]. Optics Express, 2019, 27(7): 9570-9577.
- [4] Wu S L, Ye Y, Luo M H, et al. Ultrathin omnidirectional, broadband visible absorbers [J]. Journal of the Optical Society of America B, 2018, 35(8): 1825-1828.
- [5] Wu S L, Ye Y, Chen L S. A broadband omnidirectional absorber incorporating plasmonic metasurfaces [J]. Journal of Materials Chemistry C, 2018, 6(43): 11593-11597.
- [6] Wan W Q, Qiao W, Huang W B, et al. Efficient fabrication method of nano-grating for 3D holographic display with full parallax views [J]. Optics Express, 2016, 24(6): 6203-6212.
- [7] Wan W Q, Qiao W, Pu D L, et al. Holographic sampling display based on metagratings [J]. iScience, 2020, 23(1): 100773-100792.
- [8] Wan W Q, Qiao W, Huang W B, et al. Multiview holographic 3D dynamic display by combining a nano-grating patterned phase plate and LCD [J]. Optics Express, 2017, 25(2): 1114-1122.
- [9] Zhang Y L, Yi D H, Qiao W, et al. Directional backlight module based on pixelated nano-gratings [J]. Optics Communications, 2020, 459: 125034-125040.
- [10] Park B S, Hyung K H, Oh G J, et al. Dynamic change in color filter layers during the baking process by multi-speckle diffusing wave spectroscopy [J]. Chemical Engineering & Technology, 2017, 40(12): 2230-2238.
- [11] Bríñez-de León J C, Restrepo-Martínez A, Branch-Bedoya J W. Computational analysis of Bayer colour filter arrays and demosaicking algorithms in digital photoelasticity [J]. Optics and Lasers in Engineering, 2019, 122: 195-208.
- [12] Huang Y, Zhao Z Q, Wu B, et al. Visual object tracking with discriminative correlation filtering and hybrid color feature [J]. Multimedia Tools and Applications, 2019, 78(24): 34725-34744.
- [13] Sun Y, Zhang C, Yang Y L, et al. Improving the color gamut of a liquid-crystal display by using a bandpass filter [J]. Current Optics and Photonics, 2019, 3(6): 590-596.
- [14] Williams C, Gordon G S D, Wilkinson T D, et al. Grayscale-to-color: scalable fabrication of custom multispectral filter arrays [J]. ACS Photonics, 2019, 6(12): 3132-3141.
- [15] Arat K T, Zonnevylle A C, Ketelaars W S M M, et al. Electron beam lithography on curved or tilted surfaces: simulations and experiments [J]. Journal of Vacuum Science & Technology B, 2019, 37(5): 051604.
- [16] Dement D B, Quan M K, Ferry V E. Nanoscale patterning of colloidal nanocrystal films for nanophotonic applications using direct write electron beam lithography [J]. ACS Applied Materials & Interfaces, 2019, 11(16): 14970-14979.
- [17] Mahmoodian M, Hajihoseini H, Mohajerzadeh S, et al. Nano patterning and fabrication of single polypyrrole nanowires by electron beam lithography [J]. Synthetic Metals, 2019, 249: 14-24.
- [18] Rahmasari L, Abdullah M F, Md Zain A R, et al. Silicon nanohole arrays fabricated by electron beam lithography and reactive ion etching [J]. Sains Malaysiana, 2019, 48(6): 1157-1161.
- [19] Wang Y Y, Pan J A, Wu H Q, et al. Direct wavelength-selective optical and electron-beam lithography of functional inorganic nanomaterials [J]. ACS Nano, 2019, 13(12): 13917-13931.
- [20] Guang Y, Peng Y, Yan Z R, et al. Electron beam lithography of magnetic skyrmions [J]. Advanced Materials, 2020, 32(39): 2003003.
- [21] Kim H S, Son B H, Kim Y C, et al. Direct laser writing lithography using a negative-tone electron-beam resist [J]. Optical Materials Express, 2020, 10(11): 2813-2818.
- [22] Wang X D, Xu J, Quan X L, et al. Fast fabrication of silicon nanopillar array using electron beam lithography with two-layer exposure method [J]. Microelectronic Engineering, 2020, 227: 111311-111316.
- [23] Yan X L. Overview of ink-jet printing technology [J]. Optoelectronic Technology, 2018, 38(4): 217-221.
- 闫晓林. 印刷显示关键技术与发展 [J]. 光电子技术, 2018, 38(4): 217-221.
- [24] Zheng H. Application of printed electronics technology in OLED display devices [J]. Electronic Technology & Software Engineering, 2019 (23): 91-92.
- 郑华. 印刷电子技术在 OLED 显示器件中的应用

- [J]. 电子技术与软件工程, 2019(23): 91-92.
- [25] Gao W N, Bi Y, Liu X H, et al. Development strategy of key materials for novel display in China [J]. Strategic Study of CAE, 2020, 22(5): 44-50.
- 高伟男, 毕勇, 刘新厚, 等. 我国新型显示关键材料发展战略研究[J]. 中国工程科学, 2020, 22(5): 44-50.
- [26] Chen H N, Wu N. A DLP display unit with ultra thin front maintenance [J]. Technology and Economic Guide, 2017(21): 91, 89.
- 陈海宁, 武娜. 一种超薄前维护 DLP 显示单元[J]. 科技经济导刊, 2017(21): 91, 89.
- [27] Zhang G H. Study on ultra-thin liquid crystal display technology in wide color domain [J]. Electronic Test, 2019(7): 55-56.
- 张国洪. 广色域的超薄液晶显示技术研究[J]. 电子测试, 2019(7): 55-56.
- [28] Kara O K, Yardimci B N, Livanelioglu A, et al. Examination of touch-coordinate errors of adolescents with unilateral spastic cerebral palsy at an aiming-tapping task [J]. Journal of Back and Musculoskeletal Rehabilitation, 2020, 33(1): 81-89.
- [29] He Y F, Song X L, Gu H Y, et al. Research on the application of copper material in new touch technology and touch panel device[J]. Micro/Nano Electronics and Intelligent Manufacturing, 2020, 2 (2): 120-126.
- 何云富, 宋小来, 古海裕, 等. 铜材料在新型触控技术及触控器件应用的研究[J]. 微纳电子与智能制造, 2020, 2(2): 120-126.
- [30] Xu S C, Sun Y R, Zhao K D, et al. Gesture data extraction technology based on distance change[J]. Information Technology, 2020, 44(6): 1-4, 9.
- 许舒晨, 孙永荣, 赵科东, 等. 基于距离变化的手势数据提取技术研究[J]. 信息技术, 2020, 44(6): 1-4, 9.
- [31] Yan K L, Yu X. Overview of terminal function technology based on gesture action control [J]. Digital Communication World, 2020(1): 70.
- 严凯丽, 于潇. 基于手势动作控制终端功能技术综述[J]. 数字通信世界, 2020(1): 70.
- [32] Yan Y, Chen L S, Lou Y M, et al. Super resolution microscopic imaging method and system with continuously adjustable structured light illumination: CN201380081848.5[P]. 2018-11-06.
- 叶燕, 陈林森, 楼益民, 等. 连续可调结构光照明的超分辨显微成像方法与系统: CN201380081848.5[P]. 2018-11-06.
- [33] Yan Y, Xu F C, Wei G J, et al. Real time variable parameter micro nano field modulation system and interference lithography system: CN201610004778.9[P]. 2017-02-08.
- 叶燕, 许峰川, 魏国军, 等. 实时变参量微纳米光场调制系统和干涉光刻系统: CN201610004778.9 [P]. 2017-02-08.
- [34] Jones F, Voelker H R. Hybrid electron beam and optical lithography method: US4717644[P]. 1988-01-05.
- [35] Ye Y, Xu F C, Wei G J, et al. Real-time variable parameter micro-nano optical field modulation system and interference lithography system: US10054859[P]. 2018-08-21.
- [36] Banerji S, Sensale-Rodriguez B. A computational design framework for efficient, fabrication error-tolerant, planar THz diffractive optical elements [J]. Scientific Reports, 2019, 9(1): 5801-5810.
- [37] Hsu W F, Lin S T, Lin J F. Optimization of diffractive optical elements with millions of pixels using progressive error reduction algorithm (PERA) [J]. Optics and Lasers in Engineering, 2019, 122: 49-58.
- [38] Mi L T, Chen C P, Lu Y F, et al. Design of lensless retinal scanning display with diffractive optical element[J]. Optics Express, 2019, 27(15): 20493-20507.
- [39] Miao Y X, Zhao Y S, Ma H P, et al. Design of diffractive optical element projector for a pseudorandom dot array by an improved encoding method[J]. Applied Optics, 2019, 58(34): G169-G176.
- [40] Roeder M, Thiele S, Hera D, et al. Fabrication of curved diffractive optical elements by means of laser direct writing, electroplating, and injection compression molding[J]. Journal of Manufacturing Processes, 2019, 47: 402-409.
- [41] Long L, Guo Z H, Zhong S L. A MEMS accelerometer based on wavelength modulation using an integrated blazed grating [J]. IEEE Sensors Journal, 2019, 19(3): 877-884.
- [42] Mattelin M A, Radosavljevic A, Missinne J, et al. Design and fabrication of blazed gratings for a waveguide-type head mounted display [J]. Optics Express, 2020, 28(8): 11175-11190.
- [43] McCoy J A, McEntaffer R L, Miles D M. Extreme ultraviolet and soft X-ray diffraction efficiency of a blazed reflection grating fabricated by thermally activated selective topography equilibration[J]. The Astrophysical Journal Letters, 2020, 891(2): 114.
- [44] Nie Q Y, Xie Y Y, Chang F. MEMS blazed gratings fabricated using anisotropic etching and oxidation sharpening[J]. AIP Advances, 2020, 10

- (6): 065216.
- [45] Zhu J C, Zhou J K, Shen W M. Design of polarization-independent two-dimensional binary blazed grating [J]. Journal of Infrared and Millimeter Waves, 2020, 39(2): 149-156.
- [46] Zhang F, Yang Q, Bian H, et al. Fabrication of chalcogenide glass based hexagonal gapless microlens arrays via combining femtosecond laser assist chemical etching and precision glass molding processes[J]. Materials, 2020, 13(16): 3490.
- [47] Xue L, Pang Y F, Liu W J, et al. Fabrication of random microlens array for laser beam homogenization with high efficiency [J]. Micromachines, 2020, 11(3): 338.
- [48] Zhang T Y, Li P, Yu H B, et al. Fabrication of flexible microlens arrays for parallel super-resolution imaging[J]. Applied Surface Science, 2020, 504: 144375.
- [49] Kim C, Shin D, Koo G, et al. Fabrication of an electrowetting liquid microlens array for a focus tunable integral imaging system[J]. Optics Letters, 2020, 45(2): 511-514.
- [50] Mei L Y, Wang G X, Deng J, et al. Tunable fabrication of concave microlens arrays by initiative cooling-based water droplet condensation [J]. Soft Matter, 2019, 15(44): 9150-9156.
- [51] Qiao W, Huang W B, Liu Y H, et al. Photonics: toward scalable flexible nanomanufacturing for photonic structures and devices [J]. Advanced Materials, 2016, 28(47): 10353-10380.
- [52] You R, Han D D, Liu F M, et al. Fabrication of flexible room-temperature NO₂ sensors by direct laser writing of In₂O₃ and graphene oxide composites[J]. Sensors and Actuators B: Chemical, 2018, 277: 114-120.
- [53] Schmid M, Thiele S, Herkommer A, et al. Three-dimensional direct laser written achromatic axicons and multi-component microlenses [J]. Optics Letters, 2018, 43(23): 5837-5840.
- [54] Mao F, Davis A, Tong Q C, et al. Direct laser writing of gold nanostructures: application to data storage and color nanoprinting [J]. Plasmonics, 2018, 13(6): 2285-2291.
- [55] Yu S Y, Schrodj G, Mougin K, et al. Direct laser writing of crystallized TiO₂ and TiO₂/carbon microstructures with tunable conductive properties [J]. Advanced Materials, 2018, 30(51): e1805093.
- [56] Liu F X, Sun S F, Wang D X, et al. Research on technology with femtosecond laser direct-writing on PMMA microchannels [J]. Journal of Applied Optics, 2018, 39(3): 442-446.
- 刘方祥, 孙树峰, 王德祥, 等. 飞秒激光直写 PMMA 制备微流道的工艺技术研究 [J]. 应用光学, 2018, 39(3): 442-446.
- [57] Zhang F T, Nie Z G, Qiu J R. Realization of optical modulation in germanium oxide glass by femtosecond laser direct writing[J]. Chinese Journal of Lasers, 2018, 45(12): 1202006.
- 张芳腾, 聂兆刚, 邱建荣. 飞秒激光直写实现氧化锗玻璃内部光调制 [J]. 中国激光, 2018, 45(12): 1202006.
- [58] Li M K, Xiang X S, Zhou C H, et al. Two-dimensional grating fabrication based on ultra-precision laser direct writing system [J]. Acta Optica Sinica, 2019, 39(9): 0905001.
- 李民康, 向显嵩, 周常河, 等. 基于超精密激光直写系统制作二维光栅 [J]. 光学学报, 2019, 39(9): 0905001.
- [59] Liao J N, Wang X D, Zhou X W, et al. Femtosecond laser direct writing of copper microelectrodes [J]. Chinese Journal of Lasers, 2019, 46(10): 1002013.
- 廖嘉宁, 王欣达, 周兴汶, 等. 飞秒激光直写铜微电极研究 [J]. 中国激光, 2019, 46(10): 1002013.
- [60] Lettrichova I, Laurencikova A, Pudis D, et al. 2D periodic structures patterned on 3D surfaces by interference lithography for SERS [J]. Applied Surface Science, 2018, 461: 171-174.
- [61] Guo X D, Li L, Hu Y W, et al. Superlens-enhanced laser interference lithography [J]. Applied Physics Express, 2018, 11(12): 125201-125205.
- [62] Xue C F, Meng X Y, Wu Y Q, et al. The wave optical whole process design of the soft X-ray interference lithography beamline at SSRF [J]. Journal of Synchrotron Radiation, 2018, 25 (6): 1869-1876.
- [63] Pang Z Y, Tong H, Wu X X, et al. Theoretical study of multiexposure zeroth-order waveguide mode interference lithography [J]. Optical and Quantum Electronics, 2018, 50(9): 334-342.
- [64] Kim M, Park C, Je S, et al. Real-time compensation of simultaneous errors induced by optical phase difference and substrate motion in scanning beam laser interference lithography system [J]. IEEE/ASME Transactions on Mechatronics, 2018, 23(4): 1491-1500.
- [65] Ye Y, Xu F C, Wei G J, et al. Scalable Fourier transform system for instantly structured illumination in lithography [J]. Optics Letters, 2017, 42(10): 1978-1981.
- [66] Lou Y M, Chen L S, Wei G J, et al. Method and system of three-dimensional laser printing based on

- consecutive spatial frequency modulation [J]. Chinese Journal of Lasers, 2014, 41(2): 0209009.
- 楼益民, 陈林森, 魏国军, 等. 基于连续变频技术的三维图像激光打印方法与系统[J]. 中国激光, 2014, 41(2): 0209009.
- [67] Yang Y. Continuously variable spatial frequency 3D image lithography technology and application [D]. Suzhou: Soochow University, 2016.
- 杨颖. 连续变空频 3D 图像光刻制版技术与应用 [D]. 苏州: 苏州大学, 2016.
- [68] SVG Tech Group. High speed laser graphic direct writing equipment: iGrapher200/iGrapher820. [2020-12-10]. http://www.svgoptronics.com/index.php?route=product/product&path=4&product_id=19.
- 苏大维格. 高速激光图形化直写设备: iGrapher200/iGrapher820. [2020-12-10]. http://www.svgoptronics.com/index.php?route=product/product&path=4&product_id=19.
- [69] SVG Tech Group. Nano pattern lithography equipment: NanoCrystal. [2020-12-10]. http://www.svgoptronics.com/index.php?route=product/product&path=4&product_id=18.
- 苏大维格. 纳米图形光刻设备: NanoCrystal. [2020-12-10]. http://www.svgoptronics.com/index.php?route=product/product&path=4&product_id=18.
- [70] Huang W B, Wang J, Liu Y J, et al. Low-threshold triple-wavelength lasing from a subwavelength triangle microcavity polymer laser fabricated by imaging holography[J]. Organic Electronics, 2019, 75: 105319.
- Huang W B, Yu X T, Liu Y H, et al. A review of the scalable nano-manufacturing technology for flexible devices [J]. Frontiers of Mechanical Engineering, 2017, 12(1): 99-109.
- [72] Chung C H, Park T, Lee S. Thermal stability data of silver nanowire transparent conducting electrode [J]. Data in Brief, 2020, 30: 105422-105425.
- [73] Kim M, Nabeya S, Han S M, et al. Selective atomic layer deposition of metals on graphene for transparent conducting electrode application [J]. ACS Applied Materials & Interfaces, 2020, 12(12): 14331-14340.
- [74] Han Y, Chen X, Wei J, et al. Efficiency above 12% for 1 cm² flexible organic solar cells with Ag/Cu grid transparent conducting electrode [J]. Advanced Science, 2019, 6(22): 1901490-1901500.
- [75] Kim B K, Lee S Y. Development of amorphous SIZO/Ag/amorphous SIZO multilayer for high-performance transparent conducting electrode by controlling Ag layer thickness [J]. Journal of Nanoscience and Nanotechnology, 2019, 19(3): 1755-1758.
- [76] Mardiansyah D, Badloe T, Triyana K, et al. Effect of temperature on the oxidation of Cu nanowires and development of an easy to produce, oxidation-resistant transparent conducting electrode using a PEDOT: PSS coating[J]. Scientific Reports, 2018, 8(1): 10639-10647.
- [77] Tugba Camic B, Oytun F, Hasan Aslan M, et al. Fabrication of a transparent conducting electrode based on graphene/silver nanowires via layer-by-layer method for organic photovoltaic devices [J]. Journal of Colloid and Interface Science, 2017, 505: 79-86.
- [78] Liu Y H, Shen S, Hu J, et al. Embedded Ag mesh electrodes for polymer dispersed liquid crystal devices on flexible substrate[J]. Optics Express, 2016, 24(22): 25774-25784.
- [79] Liu Y H, Xu J L, Gao X, et al. Freestanding transparent metallic network based ultrathin, foldable and designable supercapacitors [J]. Energy & Environmental Science, 2017, 10(12): 2534-2543.
- [80] Shen S, Chen S Y, Zhang D Y, et al. High-performance composite Ag-Ni mesh based flexible transparent conductive film as multifunctional devices[J]. Optics Express, 2018, 26(21): 27545-27554.
- [81] Jiang Z Y, Huang W B, Chen L S, et al. Ultrathin, lightweight, and freestanding metallic mesh for transparent electromagnetic interference shielding [J]. Optics Express, 2019, 27(17): 24194-24206.
- [82] Wu S L, Ye Y, Jiang Z Y, et al. Broadband metasurface absorbers: large-area, ultrathin metasurface exhibiting strong unpolarized ultrabroadband absorption [J]. Advanced Optical Materials, 2019, 7(24): 1970091.
- [83] Wu S L, Ye Y, Duan H G, et al. Large-area, optical variable-color metasurfaces based on pixelated plasmonic nanogratings [J]. Advanced Optical Materials, 2019, 7(7): 1801302.
- [84] Hu F Q, Xue Y, Jian N N, et al. Pyrazine-EDOT D-A-D type hybrid polymer for patterned flexible electrochromic devices [J]. Electrochimica Acta, 2020, 357: 136859.
- [85] Kim Y, Park C, Im S, et al. Design of intrinsically stretchable and highly conductive polymers for fully stretchable electrochromic devices [J]. Scientific Reports, 2020, 10(1): 16488-16499.
- [86] Lin H T, Wu J T, Chen M H, et al. Novel

- electrochemical devices with high contrast ratios and simultaneous electrochromic and electrofluorochromic response capability behaviours [J]. *Journal of Materials Chemistry C*, 2020, 8 (36): 12656-12661.
- [87] Xue Z C, Li Q, Yu M F, et al. All-in-one, reversible yellow-green color switching tungsten oxide electrochromic devices[J]. *Physics Letters A*, 2020, 384(32): 126822-126826.
- [88] Zhang S H, Hu F, Chen S, et al. A dual-type electrochromic device based on complementary silica/conducting polymers nanocomposite films for excellent cycling stability[J]. *Journal of Electronic Materials*, 2019, 48(8): 4797-4805.
- [89] Zhao S Q, Liu Y H, Ming Z, et al. Highly flexible electrochromic devices enabled by electroplated nickel grid electrodes and multifunctional hydrogels [J]. *Optics Express*, 2019, 27(21): 29547-29557.
- [90] Lee C K, Park S G, Moon S, et al. Viewing zone duplication of multi-projection 3D display system using uniaxial crystal[J]. *Optics Express*, 2016, 24 (8): 8458-8470.
- [91] Sando Y, Barada D, Yatagai T. Optical rotation compensation for a holographic 3D display with a 360 degree horizontal viewing zone [J]. *Applied Optics*, 2016, 55(30): 8589-8595.
- [92] Wang Q H, Ji C C, Li L, et al. Dual-view integral imaging 3D display by using orthogonal polarizer array and polarization switcher[J]. *Optics Express*, 2016, 24(1): 9-16.
- [93] Yang L, Dong H W, Alelaiwi A, et al. See in 3D: state of the art of 3D display technologies [J]. *Multimedia Tools and Applications*, 2016, 75(24): 17121-17155.
- [94] Sando Y, Barada D, Yatagai T. Full-color holographic 3D display with horizontal full viewing zone by spatiotemporal-division multiplexing [J]. *Applied Optics*, 2018, 57(26): 7622-7626.
- [95] Zhou F, Hua J Y, Shi J C, et al. Pixelated blazed gratings for high brightness multiview holographic 3D display[J]. *IEEE Photonics Technology Letters*, 2020, 32(5): 283-286.
- [96] Shi J C, Qiao W, Hua J Y, et al. Spatial multiplexing holographic combiner for glasses-free augmented reality[J]. *Nanophotonics*, 2020, 9(9): 3003-3010.
- [97] Zeng S L, Huang Z X, Jiang H, et al. From waste to wealth: a lightweight and flexible leather solid waste/polyvinyl alcohol/silver paper for highly efficient electromagnetic interference shielding [J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2020, 12 (46): 52038-52049.
- [98] Rajavel K, Yu X C, Zhu P L, et al. Exfoliation and defect control of two-dimensional few-layer MXene Ti₃C₂T_x for electromagnetic interference shielding coatings[J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2020, 12(44): 49737-49747.
- [99] Wan Y J, Wang X Y, Li X M, et al. Ultrathin densified carbon nanotube film with "metal-like" conductivity, superior mechanical strength, and ultrahigh electromagnetic interference shielding effectiveness[J]. *ACS Nano*, 2020, 14(10): 14134-14145.
- [100] Lee D W, Kim H, Hyeon J S, et al. Bidirectional core sandwich structure of reduced graphene oxide and spinnable multiwalled carbon nanotubes for electromagnetic interference shielding effectiveness [J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2020, 12 (41): 46883-46891.
- [101] Jiang Z Y, Zhao S Q, Huang W B, et al. Embedded flexible and transparent double-layer nickel-mesh for high shielding efficiency[J]. *Optics Express*, 2020, 28(18): 26531-26542.
- [102] Du J, Liu L, Wu H X, et al. N-Doped yolk-shell carbon nanotube composite for enhanced electrochemical performance in a supercapacitor[J]. *Nanoscale*, 2019, 11(47): 22796-22803.
- [103] Lee J H, Chae J S, Jeong J H, et al. An ionic liquid incorporated in a quasi-solid-state electrolyte for high-temperature supercapacitor applications [J]. *Chemical Communications*, 2019, 55(100): 15081-15084.
- [104] Sun Y, Zhang J J, Sun X N, et al. The NH₄F-induced morphology control of hierarchical CoO@MnO₂ core-shell arrays for high performance supercapacitor electrodes [J]. *CrystEngComm*, 2019, 21(48): 7468-7475.
- [105] Wang X, He Y P, Guo Z C, et al. Enhanced electrochemical supercapacitor performance with a three-dimensional porous boron-doped diamond film [J]. *New Journal of Chemistry*, 2019, 43 (47): 18813-18822.
- [106] Zhang K J, Liu M R, Zhang T Z, et al. High-performance supercapacitor energy storage using a carbon material derived from lignin by bacterial activation before carbonization [J]. *Journal of Materials Chemistry A*, 2019, 7 (47): 26838-26848.
- [107] Xu J L, Liu Y H, Gao X, et al. Embedded Ag grid electrodes as current collector for ultraflexible transparent solid-state supercapacitor [J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2017, 9 (33):

27649-27656.

- [108] Liu Y H, Xu J L, Shen S, et al. High-performance, ultra-flexible and transparent embedded metallic mesh electrodes by selective electrodeposition for all-solid-state supercapacitor applications[J]. *Journal of Materials Chemistry A*, 2017, 5(19): 9032-9041.
- [109] Xu J L, Liu Y H, Gao X, et al. Toward wearable electronics: a lightweight all-solid-state

supercapacitor with outstanding transparency, foldability and breathability [J]. *Energy Storage Materials*, 2019, 22: 402-409.

- [110] Liu Y H, Jiang Z Y, Xu J L. Self-standing metallic mesh with MnO₂ multiscale microstructures for high-capacity flexible transparent energy storage[J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2019, 11(27): 24047-24056.