

# 无机粒子填充硅橡胶基介电弹性体的研究进展

李 飞<sup>1</sup> 张子靖<sup>1</sup> 盛玲艳<sup>1</sup> 吴崇刚<sup>1</sup> 龚兴厚<sup>1</sup> 隋 刚<sup>2</sup> 胡 涛<sup>1\*</sup>

(1.湖北工业大学绿色轻工材料湖北省重点实验室,绿色轻质材料与加工湖北工业大学协同创新中心,材料与化学工程学院,武汉 430068;2.北京化工大学有机无机复合材料国家重点实验室,北京 100029)

**摘 要** 硅橡胶具有模量低、弹性好、响应快,且其模量在较大温度范围内保持恒定的优点,受到了介电弹性体研究者的广泛关注。然而,硅橡胶介电常数低,用于驱动器时驱动电压高、电致应变小,应用范围受到限制。采用高介电常数的无机粒子填充硅橡胶是提高其介电常数的有效手段之一。综述了常用的高介电无机粒子填充硅橡胶基介电弹性体的研究进展、电致应变性能的影响因素,以及复合介电弹性体的模量增大、介电损耗升高问题及其解决办法。

**关键词** 介电弹性体,硅橡胶,无机粒子,模量,介电损耗

## Advance in dielectric elastomer based on inorganic particle filled silicone rubber

Li Fei<sup>1</sup> Zhang Zijing<sup>1</sup> Sheng Lingyan<sup>1</sup> Wu Chonggang<sup>1</sup> Gong Xinghou<sup>1</sup>  
Sui Gang<sup>2</sup> Hu Tao<sup>1</sup>

(1.Hubei Provincial Key Laboratory of Green Materials for Light Industry, Collaborative Innovation Center of Green Light-weight Materials and Processing, School of Materials and Chemical Engineering, Hubei University of Technology, Wuhan 430068;  
2.State Key Laboratory of Organic-Inorganic Composites, College of Materials Science and Engineering, Beijing University of Chemical Technology, Beijing 100029)

**Abstract** Silicone rubbers have been the focus of researchers in dielectric elastomers due to the well-known characteristics like low modulus, good elasticity, fast response and the ability to maintain their modulus under a wide range of temperatures. However, the intrinsic low dielectric constant of silicone rubbers have contributed to their inadequacy in that high actuation voltage is demanded or low actuation strain is produced while used as an actuator. Filling in high dielectric constant inorganic particles is one of the most effective approaches to improve silicone rubbers' dielectric constants. Research developments of normally used inorganic particles filled silicone rubber systems and factors that may influence the composites' actuation performance were reviewed. Problems as well as solutions related with increase of modulus and dielectric loss of the composites were also summarized.

**Key words** dielectric elastomer, silicone rubber, inorganic particle, modulus, dielectric loss

介电弹性体(DE)是一种经表面涂覆柔性电极后,在外界电刺激下能够发生厚度方向压缩、平面方向伸展应变,当外界电刺激撤销后,又能恢复到原始形状将电能转换成机械能的一种智能弹性体材料。DE材料在人工肌肉、驱动器、传感器、能量收集器、盲文显示等领域有着广泛的应用前景,是近年来电活性聚合物和电介质材料领域的研究热点<sup>[1-3]</sup>。

满足上述应用的DE材料需在低电压下快速响应,并产生高电致应变。一般认为,在低应变下,弹性体厚度方向的应变满足式(1)。

$$S_z = -p/Y = -\epsilon_0 \epsilon_z E^2/Y = -\epsilon_0 \epsilon_z (U/z)^2/Y \quad (1)$$

式中, $Y$ 为弹性体的弹性模量,MPa; $U$ 为驱动电压,V; $z$ 为弹性体的厚度,m; $\epsilon_0$ 为真空介电常数, $8.85 \times 10^{-12}$  F/m; $\epsilon_z$ 为弹性体的相对介电常

基金项目:国家自然科学基金(51703053);湖北省自然科学基金(2016CFB205)

作者简介:李飞(1994-),男,硕士研究生,主要从事有机无机复合材料的制备及性能研究。

联系人:胡涛,讲师,硕士研究生导师,主要研究方向为有机硅功能材料及其衍生物。

数<sup>[4]</sup>。因此,性能优异的介电弹性体须满足介电常数( $\epsilon_z$ )高、弹性好、模量( $Y$ )低的特点。此外,考虑到实际使用条件,介电弹性体还须满足介电损耗( $\tan\delta$ )低、击穿场强( $E_B$ )高(电-机转换稳定性强)的特性。

常用的介电弹性体材料主要有丙烯酸酯类(如 3M 公司的 VHB-4910)、硅橡胶及聚氨酯类,近年来羧化丁腈橡胶(XNBR)、苯乙烯-丁二烯-苯乙烯嵌段共聚物(SBS)、氢化丁腈橡胶(HNBR)等弹性体也受到了一定关注<sup>[5-8]</sup>。硅橡胶作为介电弹性体的一种,其特有的 Si—O—Si 主链及内部交联网络结构,使其具有电致应变高、温度适应性好及其他介电弹性体材料所不能企及的回弹速率高及生物相容性优异等优点。然而,未经改性的硅橡胶介电常数低(2~3)而导致驱动电压高、电致应变小不利于其广泛应用。为提高硅橡胶介电弹性体的电致应变性能,国内外学者主要采用了化学改性法及物理填充法以提高硅橡胶的介电常数。化学改性法主要是向硅橡胶中引入极性基团,物理填充法则指向硅橡胶中填充高介电常数的无机/有机填料。研究表明,化学改性法确实能够有效提高介电常数,但通常随极性基团含量的增大,硅橡胶的  $\tan\delta$  和  $E_B$  均会受到影响,即其含量需控制在一定范围内,对电致应变性能的提高作用不显著。物理填充法操作简便,且无机高介电填料的选择范围较宽,有利于大规模推广和应用。笔者主要介绍了近年来物理填充法制备硅橡胶基介电弹性体的研究进展。

## 1 常用无机粒子

常用的高介电无机填料主要有炭系导体、半导体、陶瓷粒子三大类。炭系导体填料的导电性能优异、介电常数高,主要包括石墨烯、碳纳米管及碳纤维等;半导体填料主要为  $\text{TiO}_2$ ,其介电常数较高,且为常用的硅橡胶填充剂,与橡胶的相容性较好;陶瓷粒子主要为高介电常数的钛酸钡( $\text{BaTiO}_3$ )<sup>[9]</sup>、铌镁酸铅(PMN)<sup>[10]</sup>及铜钛箐( $\text{CuPc}$ )<sup>[11-12]</sup>等化合物。

### 1.1 炭系导体填料

填充炭系导体是提高硅橡胶电致应变性能的重要途径之一,该方法的优点在于当无机粒子的填充量较低时即可显著提高硅橡胶的介电常数。Romasanta 等<sup>[13]</sup>首次报道了向硅橡胶中填充石墨烯以提高其介电常数,当石墨烯的含量为 2%(wt,质量分数,下同)时,复合材料的介电常数从纯硅橡胶的 3 提高到了 23(在  $10^3\text{ Hz}$  条件下)。Tian 等<sup>[14]</sup>向

硅橡胶中引入热胀石墨烯纳米片(TGNPs),所制复合材料的介电常数显著提高。在  $10^3\text{ Hz}$  下,当填充量为 2.0%时,复合体系的介电常数由纯硅橡胶的 3.1 增至 89.5,介电损耗相应提高至 1.5,模量由 0.5MPa 增至 1.9MPa。但同时,击穿场强  $E_B$  由  $45\text{ V}/\mu\text{m}$  迅速降至  $15\text{ V}/\mu\text{m}$ 。当驱动场强为  $15\text{ V}/\mu\text{m}$  时,驱动应变由纯硅橡胶的 1.4%仅增至 3.6%,这可能是因为直流导电性增大和样品出现缺陷所致。填充炭系填料的复合体系可采用 Tian 等<sup>[14]</sup>提出的微电容器模型描述,当填料含量逐渐增至逾渗阈值时,体系中出现相互连接的电容器,介电常数显著提高,同时直流导电性明显提高,介电损耗亦提高,击穿场强降低。

### 1.2 半导体填料

Carpi 等<sup>[15]</sup>首次报道了向硅橡胶中掺入高介电的  $\text{TiO}_2$ ,发现复合物具有更低的弹性模量、更高的介电常数。由该复合物制备的驱动器,驱动电压低,当场强为  $10\text{ V}/\mu\text{m}$  时横向应变可达 11%,高于纯硅橡胶 8 倍。Kashani 等<sup>[16]</sup>发现  $\text{TiO}_2$  的加入能提高硅橡胶的介电常数,且在填料取向方向上硅橡胶的介电损耗有所降低。

### 1.3 陶瓷粒子

这种方法在填充量较高时虽然可以明显提高材料的介电常数,但同时也会增大复合材料的介电损耗。此外,形成的微米级薄膜材料缺陷增多,容易被电击穿。更为重要的,大量填充无机填料势必显著提高弹性体的弹性模量,严重降低弹性体固有的弹性和柔韧性,导致电致应变反而很小,并且这种方法对弹性体介电常数的提高也有限,很难制备出高电致应变的介电弹性体。Zhang 等<sup>[17]</sup>将  $\text{BaTiO}_3$  填充到硅橡胶基体中,发现复合材料的介电常数和模量均随填料用量增加而增大,而击穿场强却随填料用量的增加而降低。Gallone 等<sup>[10]</sup>将铌镁酸铅-钛酸铅(PMN-PT)铁电陶瓷颗粒加入到硅橡胶中,复合材料的介电常数和介电损耗均随填料含量的增加而增大,弹性模量也相应增大。当填料的含量达 30%时,复合体系在  $10\text{ Hz}$  下的介电常数增大了 4 倍,弹性模量亦增大了 2 倍。Bele 等<sup>[18]</sup>发现纳米棒状  $\text{BaTiO}_3$  填充的硅橡胶在其含量为 5%时,可使复合体系的介电常数较纯硅橡胶显著提高,同时模量基本不变,电致应变特性参数较纯硅橡胶提高了 3 倍。

## 2 无机粒子填充型硅橡胶介电弹性体性能的影响因素

影响无机粒子填充型硅橡胶介电弹性体电致应

变性能的因素主要有无机粒子的含量、种类与形态、在硅橡胶中的分散状态。

## 2.1 无机粒子含量

用于填充硅橡胶的无机粒子含量愈高,复合材料的介电常数愈大。但无机粒子的引入一方面会导致复合体系的模量增大,弹性降低;另一方面,无机粒子与硅橡胶基体的组成及电性能差异较大,相容性较差,易导致介电损耗较大,击穿场强较低,电-机转换稳定性降低。因此,无机粒子的含量存在一个最佳范围。Stoyanov 等<sup>[19]</sup>将纳米  $\text{TiO}_2$  填充到硅橡胶中制备了介电弹性体传感器。发现当  $\text{TiO}_2$  含量较低( $<10\%$ )时,填料对复合体系介电常数提高的效应超过其对模量的提高效应,从而使复合体系的电致应变高于纯硅橡胶;当  $\text{TiO}_2$  含量较高( $>10\%$ )时,填料对硅橡胶的模量提高效应超过其对介电常数的提高效应,电致应变反而低于纯硅橡胶体系。

## 2.2 无机粒子种类与形态

即使是相同化学组成的无机粒子,当其内部结构不同时,其介电常数差异较大,在改性硅橡胶时的效果亦存在差异。如金红石型  $\text{TiO}_2$  较锐钛矿型  $\text{TiO}_2$  介电常数高 300%。刘浩亮<sup>[20]</sup>首次研究了纳米金红石型、微米金红石型和混合型这 3 种晶型的  $\text{TiO}_2$  填充硅橡胶的介电性能和电致应变性能。发现微米级金红石型  $\text{TiO}_2$  对复合材料的电致应变性能提高最为显著;当其含量为 30% 时,复合体系的介电常数为 5.95,比纯硅橡胶提高了 63%;在 50 V/ $\mu\text{m}$  的驱动场强下其电致应变可达 18%,比纯硅橡胶高出 50%。Bele 等<sup>[18]</sup>分别研究了商业化、立方晶型及纳米线状这 3 种形态的  $\text{BaTiO}_3$  粒子(5%)填充硅橡胶复合体系的电致应变特性。发现与商业化及立方晶型的  $\text{BaTiO}_3$  相比,纳米线状  $\text{BaTiO}_3$  填充体系的介电常数增大最多(3.11 至 9.04 在 10Hz 条件下),介电损耗增大最多(0.21 至 0.3 在 10Hz 条件下,商业化和立方晶型的分别为 0.15 和 0.07),击穿场强均随  $\text{BaTiO}_3$  的加入大幅降低(从 102.3 V/ $\mu\text{m}$  至纳米线状的 18.3,商业化和立方的分别为 21.7 和 5.8)。

## 2.3 无机粒子在硅橡胶中的分散状态

无机粒子在硅橡胶中的分散状态一方面会影响复合体系的介电常数;另一方面,填料分散状态亦会影响复合体系的介电损耗。Bele 等<sup>[18]</sup>发现与商业化及立方晶型的  $\text{BaTiO}_3$  相比,纳米线状  $\text{BaTiO}_3$  粒子长径比大,在基体中分散良好,复合体系的模量增

加最少(0.0095MPa 至 0.0196MPa),介电常数增加最多。Galantini 等<sup>[21]</sup>研究发现,表面经化学改性的多壁碳纳米管(MWCNTs)能够在聚合物中更好地分散,从而有利于复合体系产生极化现象以提高硅橡胶的介电常数。此外,未改性的 MWCNTs 在提高复合体系介电常数的同时会使介电损耗显著提高,而改性 MWCNTs 填充的复合体系与聚合物基体的介电损耗相当。

## 3 无机粒子/硅橡胶复合介电弹性体面临的问题及解决途径

### 3.1 模量增大效应

为缓解无机粒子引入引起的模量升高效应,研究人员发展了向硅橡胶中引入增塑剂或降低交联密度的方法。Yang 等<sup>[22]</sup>发现随着铅镁铈酸盐量的增加,复合体系的介电常数增加,但是电致应变未增加,原因为弹性模量也同时增大;通过降低交联密度或添加增塑剂,硅橡胶的弹性模量下降,导致驱动应变明显增加;通过优化介电填料的含量、增塑剂用量和弹性体的交联密度,可使铅镁铈酸盐填充的硅橡胶在 45 V/ $\mu\text{m}$  下具有最大电致应变 7.4%。Zhao 等<sup>[23]</sup>向  $\text{BaTiO}_3$ /硅橡胶复合体系中加入二甲基硅油(DMSO),制备了硬度可调的复合体系。研究表明:DMSO 的加入可使介电常数小幅度减少,弹性模量大幅度降低,在较宽的测试温度范围内,复合体系表现出优异的介电性能和机械性能;复合体系的驱动灵敏性和电致应变性能均得到了显著提高。Yang 等<sup>[24]</sup>为了降低  $\text{BaTiO}_3$  填充硅橡胶引起的模量增大效应,引入了硅油作为增塑剂以减弱分子间的相互作用并破坏填料的网络结构。所得的复合体系,在  $\text{BaTiO}_3$  含量为 20 份,硅油含量为 50 份时,25 V/ $\mu\text{m}$  的场强下驱动应变可达 10.6%,比纯硅橡胶提高了 380%。值得一提的是,增塑剂的引入或交联密度的降低虽然能够缓解复合体系模量的升高,但亦会对其力学性能及长期使用的稳定性造成不利影响。

### 3.2 介电损耗增大效应

介电损耗愈大,生热量愈大,击穿场强愈低,易出现过早击穿现象。介电损耗的高低主要取决于填料在硅橡胶中的分散状态。未经表面处理或改性的无机粒子与硅橡胶间电性能差异大、相容性差,因界面极化(也称 Maxwell-Wagner 效应)导致的介电损耗大、稳定性差,在电致应变过程中可能会产生过早击穿。此外,介电损耗随着电导率的提高而快速增

大,因此材料的电导率不能太高。对填料进行表面化学改性或物理包覆一方面可以提高填料与聚合物基体的相容性,另一方面亦可降低直流导电性,从而降低介电损耗。其中,采用硅烷偶联剂对无机粒子进行预处理、无机粒子表面接枝与基体作用强的化合物是研究者主要采用的两种方法。硅烷偶联剂亲有机、无机的特性使其在提高有机/无机复合体系相容性方面发挥了重要作用。如 Chen 等<sup>[25]</sup>采用不同的硅烷偶联剂对石墨烯纳米片进行表面处理并与硅橡胶复合。发现当石墨烯含量相同时,经表面处理的石墨烯纳米片/硅橡胶复合物较未处理复合物具有更高的介电常数(为纯硅橡胶的 7.4 倍)和更低的介电损耗(与纯硅橡胶相当);当改性硅烷偶联剂与硅橡胶基体有相互作用(氢键)时,复合物的介电常数最高。这可能是因为改性剂与基体之间的相互作用促进了石墨烯纳米片在橡胶中的均匀分散。Jiang 等<sup>[26]</sup>研究了十五烷基三甲基溴化铵(CTAB)与氨丙基三乙氧基硅烷(KH-550)改性的 MWCNTs 与硅橡胶复合物的形态与电性能。结果表明,当 MWCNTs 含量达 2.5%(体积分数)时,仍能很好地分散在硅橡胶中,CTAB 能够提高 MWCNTs 在硅橡胶中的分散性,但未能显著提高二者的界面相互作用,而 KH-550 则能同时改善上述两方面。对于 KH-550 改性的体系,MWCNTs 与橡胶紧密结合从而在二者之间形成了较厚的橡胶层,阻碍了电子传导的隧道电流使其导电性仍较低。Guo 等<sup>[27]</sup>采用一种与硅橡胶组成类似的长链硅烷偶联剂与 BaTiO<sub>3</sub> 表面的羟基在超临界己烷中反应制备了改性 BaTiO<sub>3</sub>,并与硅橡胶复合。发现改性后的 BaTiO<sub>3</sub> 能更均匀地分散在硅橡胶中,且相同含量下,改性 BaTiO<sub>3</sub> 填充的体系介电常数高于未改性填充体系,当 BaTiO<sub>3</sub> 含量为 40%(体积分数),复合体系的介电常数由纯硅橡胶的 8 增至 35(在 10<sup>4</sup> Hz 条件下),而介电损耗几乎与纯硅橡胶相当。在无机粒子表面接枝与硅橡胶基体相容性好或有相互作用的化合物亦是提高两相相容性,降低介电损耗,提高复合体系电致应变性能的有效途径。如 Jang 等<sup>[28]</sup>采用 MWCNT-COOH 与不同链长的烷基氨反应制备了烷基改性 MWCNT,并与硅橡胶复合,发现改性后 MWCNT 在含量小于 1%时均能很好地分散于基体中。当选择改性剂为十一烷基氨、无机填料含量为 0.75%时,介电常数从 2.8 升至 8.0(在 10<sup>5</sup> Hz 条件下),介电损耗为仍可低至 0.01。Chadwick 等<sup>[29]</sup>制备了不同链长聚硅氧烷改性的单壁碳

纳米管(SWCNT),并与硅橡胶复合。研究发现,经过改性,SWCNT 含量可由 0.03%提至 1%而无显著的逾渗现象及模量增大效应。Yadav 等<sup>[30]</sup>制备了聚硅氧烷含量高达 30%、厚度为 10~12nm 的改性 MWCNTs,并与硅橡胶复合制备了含量分别为 0.01%、0.05%和 0.1%的复合体系。改性后的 MWCNTs 在含量为 0.1%时仍能在基体中分散良好而无团聚,复合体系的模量均高于纯硅橡胶,且随 MWCNTs 含量增加而增大,杨氏模量从 0.2MPa 分别增至 0.24MPa、0.26MPa 和 0.4MPa,介电常数随含量增加从 3.3(在 10<sup>5</sup> Hz 条件下)分别至 3.45、3.56 和 3.7,而介电损耗几乎不变( $\sim 10^{-4}$ ),电致应变随填料含量增加,27V/ $\mu\text{m}$  时,含改性 MWCNTs 0.05%和 0.1%体系的电致应变分别为纯硅橡胶的 2 和 1.5 倍。Yang 等<sup>[31]</sup>利用聚多巴胺(PDA)对有机和无机物的良好粘附性,在 BaTiO<sub>3</sub> 粒子表面形成一层 PDA 包覆层,而后利用 KH-570 的羟基与 PDA 上的吡啶基团反应,制备了表面改性的 BaTiO<sub>3</sub> 粒子。KH-570 不仅可以增强粒子与硅橡胶的相容性,其中的乙烯基还可参与硅橡胶的硫化,从而增强粒子与基体的相互作用。研究发现:改性后的 BaTiO<sub>3</sub> 粒子在低含量时分散良好无团聚,且在相同含量下,改性后的复合体系弹性模量低于未改性复合体系;10<sup>3</sup> Hz 下,改性体系的介电常数高于未改性体系,表明均匀分散的 BaTiO<sub>3</sub> 粒子能够有效提高介电常数;在测试频率下,复合体系的介电损耗均低于 0.055,且填料含量相同时,改性体系击穿场强高于未改性体系;当填料含量为 10 份时电致应变最大,且相同场强下,改性体系应变大于未改性体系。Jiang 等<sup>[32]</sup>采用多巴胺(DP)包覆的 BaTiO<sub>3</sub> 填充硅橡胶,与纯 BaTiO<sub>3</sub> 填充相比可以进一步提高复合体系的介电常数,降低介电损耗,且电致应变、电-机转换效率均提高。当 DP/BaTiO<sub>3</sub> 含量为 20%时,在场强为 53V/ $\mu\text{m}$  下,面积应变最大可达 78%,较未改性 BaTiO<sub>3</sub> 填充体系提高了 30%。

## 4 展望

硅橡胶自身的优良特性使其在介电弹性体领域有良好的应用前景。在硅橡胶基体中添加高介电无机粒子,并通过填料形态、用量及两相界面的调控,可以在一定程度上改善无机粒子填充引起的模量增加和介电损耗增大效应。但目前的研究仍然很难同时兼顾高介电常数、低模量、低介电损耗与高击穿场强,且理论研究严重滞后。研发新型高介电无机粒

子,并合理调控其与硅橡胶复合时的界面效应,从理论角度进一步优化复合体系的结构,是发展高电致应变、低驱动电压硅橡胶基介电弹性体的发展方向之一。

### 参考文献

- [1] Pelrine R, Kornbluh R, Joseph J P, et al. High-speed electrically actuated elastomers with strain greater than 100% [J]. *Science*, 2000, 287(5454): 836-839.
- [2] Zhang Q M, Li H, Huang C, et al. An all-organic composite actuator material with a high dielectric constant [J]. *Nature*, 2002, 419(6904): 284-287.
- [3] Kim B, Park Y D, Koo C M, et al. Electric actuation of nanostructured thermoplastic elastomer gels with ultralarge electrostriction coefficient [J]. *Advanced Functional Materials*, 2011, 21(17): 3242-3249.
- [4] Pelrine R E, Kornbluh R D, Joseph J P. Electrostriction of polymer dielectrics with compliant electrodes as a means of actuation [J]. *Sensors and Actuators A: Physical*, 1998, 64(1): 77-85.
- [5] Ning N Y, Zhang L Q, Tian M, et al. Tailoring dielectric and actuated properties of elastomer composites by bioinspired poly(dopamine) encapsulated graphene oxide [J]. *ACS Applied Material Interfaces*, 2015, 7(20): 10755-10762.
- [6] Sun H B, Ning N Y, Tian M, et al. Homogeneous dielectric elastomers with dramatically improved actuated strain by grafting dipoles onto SBS using thiol-ene click chemistry [J]. *Polymer Chemistry*, 2016, 7(24): 4072-4080.
- [7] Tian M, Zhang L Q, Ning N Y, et al. Largely improved electromechanical properties of thermoplastic dielectric elastomers by grafting carboxyl onto SBS through thiol-ene click chemistry [J]. *RSC Advances*, 2016, 6(98): 96190-96195.
- [8] Yang D, Zhang L Q, Tian M, et al. Large increase in actuated strain of HNBR dielectric elastomer by controlling molecular interaction and dielectric filler network [J]. *RSC Advances*, 2013, 3(44): 21896-21904.
- [9] Jeffrey P S, Johnathan A H, Colin G C, et al. Elastomeric composites with high-dielectric constant for use in Maxwell stress actuators [J]. *Proceedings of SPIE*, 2003, 5051: 180-190.
- [10] Gallone G, Carpi F, Rossi D D, et al. Dielectric constant enhancement in a silicone elastomer filled with lead magnesium niobate-lead titanate [J]. *Materials Science and Engineering: C*, 2007, 27(1): 110-116.
- [11] Zhang X Q, Wissler M, Jaehne B, et al. Effects of crosslinking, prestrain, and dielectric filler on the electromechanical response of a new silicone and comparison with acrylic elastomer [J]. *Smart Structures and Materials*, 2004, 5385: 78-86.
- [12] Huang C, Zhang Q M, Botton G, et al. All-organic dielectric-percolative three-component composite materials with high electromechanical response [J]. *Applied Physics Letters*, 2004, 84(22): 4391-4393.
- [13] Romasanta L J, Hernandez M, Lopez-Manchado M A, et al. Functionalized graphene sheets as effective high dielectric constant fillers [J]. *Nanoscale Research Letters*, 2011, 6: 508.
- [14] Tian M, Wei Z, Zan X, et al. Thermally expanded graphene nanoplates/polydimethylsiloxane composites with high dielectric constant, low dielectric loss and improved actuated strain [J]. *Composites Science and Technology*, 2014, 99: 37-44.
- [15] Carpi F, Rossi D D. Improvement of electromechanical actuating performances of a silicone dielectric elastomer by dispersion of titanium dioxide powder [J]. *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, 2005, 12(4): 835-843.
- [16] Kashani M R, Javadi S, Gharavi N. Dielectric properties of silicone rubber-titanium dioxide composites prepared by dielectrophoretic assembly of filler particles [J]. *Smart Materials and Structures*, 2010, 19(3): 35019.
- [17] Zhang Z, Liu L, Yu K, et al. New silicone dielectric elastomers with a high dielectric constant [J]. *Proceedings of SPIE-the International Society for Optical Engineering*, 2008, 6926: 692610.
- [18] Bele A, Cazacu M, Stiubianu G, et al. Silicone-barium titanate composites with increased electromechanical sensitivity. The effects of the filler morphology [J]. *RSC Advances*, 2014, 4(102): 58522-58529.
- [19] Stoyanov H, Brochu P, Niu X F, et al. Dielectric elastomer transducers with enhanced force output and work density [J]. *Applied Physics Letters*, 2012, 100(26): 262902-262904.
- [20] 刘浩亮. 硅橡胶介电弹性体复合材料的制备与性能研究 [D]. 北京: 北京化工大学, 2012.
- [21] Galantini F, Bianchi S, Gallone G, et al. Functionalized carbon nanotubes as a filler for dielectric elastomer composites with improved actuation performance [J]. *Smart Materials and Structures*, 2013, 22(5): 055025.
- [22] Yang D, Zhang L Q, Liu H L, et al. Lead magnesium niobate-filled silicone dielectric elastomer with large actuated strain [J]. *Journal of Applied Polymer Science*, 2012, 125(3): 2196-2201.
- [23] Zhao H, Zhang L, Yang M H, et al. Temperature-dependent electromechanical actuation sensitivity in stiffness-tunable BaTiO<sub>3</sub>/polydimethylsiloxane dielectric elastomer nanocomposites [J]. *Applied Physics Letters*, 2015, 106(9): 092904.
- [24] Yang D, Huang S, Zhang L Q. Improved electromechanical properties of silicone dielectric elastomer composites by tuning molecular flexibility [J]. *Composites Science and Technology*, 2018, 155: 160-168.
- [25] Chen T, Liu B. A combination of silicone dielectric elastomer and graphene nanosheets for the preparation of bending flexible transducers [J]. *Materials Letters*, 2018, 211: 69-73.
- [26] Jiang M J, Dang Z M, Bai J B, et al. Effects of surface modification of carbon nanotubes on the microstructure and electrical properties of carbon nanotubes/rubber nanocomposites [J]. *Chemical Physics Letters*, 2008, 457: 352-356.