

柔性 PDMS 基介电复合材料的电场及 击穿损伤形貌演变规律研究

陈雷, 胡海龙

(中南大学 航空航天技术研究院, 长沙 410083)

摘要: 与其它储能设备相比, 由介电复合材料制得的介质电容器在快速充放电能力与高功率密度方面极具优势, 如何提高介电复合材料能量密度与优化其击穿性能已成为当前研究热点之一。为进一步调控并兼顾介电常数与击穿性能, 本工作基于 DBM(Dielectric Breakdown Model, 介电击穿模型), 采用有限元数值模拟, 研究了无机填料的分布对柔性聚二甲硅氧烷(PDMS)基介电复合材料体系的电场与发生介电击穿时击穿损伤形貌演变的具体影响。研究表明: 填料与基体边界处存在较大的介电差异, 可以使用较大介电常数的聚合物基体或较小介电常数的无机填料来减小其界面处的高电场区域, 继而提高复合材料的耐击穿能力; 同时发现当无机填料分散更均匀时, 其树状损伤通道更容易产生分支, 此种情况将使介电击穿的树状损伤通道的损伤位点增多, 延缓其损伤速度, 继而提高复合材料的耐击穿性能。该研究结果将为开发高储能密度且具有优异击穿性能的有机-无机复合电介质材料提供坚实的理论依据。

关键词: 介电性能; 复合材料; 电场分析; DBM 模型; 有限元法

中图分类号: TB332 文献标志码: A

Evolution of Electric Field and Breakdown Damage Morphology for Flexible PDMS Based Dielectric Composites

CHEN Lei, HU Hailong

(1. Research Institute of Aerospace Technology, Central South University, Changsha 410083, China)

Abstract: Compared with other electric energy storage devices, dielectric capacitors made of dielectric composites have great advantages in fast charging and discharging capacity with high power density. A dilemma of improving the energy density of dielectric composites and synchronous optimizing their breakdown performance is becoming an intriguing research direction. To further adjust the contradiction between dielectric constant and dielectric breakdown performance, here a finite element numerical simulation based on dielectric breakdown model (DBM) was proposed to study the effect of the distribution of inorganic fillers on the electric field and breakdown damage morphology in flexible polydimethylsiloxane(PDMS) based dielectric composite system. The results show that a large dielectric difference is observed between filler and matrix, which indicates that polymer matrix with a large dielectric constant or

收稿日期: 2022-06-11; 收到修改稿日期: 2022-08-08; 网络出版日期: 2022-09-15

基金项目: 湖南省长沙市自然科学基金 (kq2202093); 湖南省自然科学基金 (2022JJ30722)

Natural Science Foundation of Changsha, Hunan Province (kq2202093); Natural Science Foundation of Hunan Province (2022JJ30722)

作者简介: 陈雷(1999-), 男, 硕士研究生. E-mail: sccl@mail.ustc.edu.cn

CHEN Lei (1999-), male, Master candidate. E-mail: sccl@mail.ustc.edu.cn

通信作者: 胡海龙, 副教授. E-mail: hailonghu@csu.edu.cn

HU Hailong, associate professor. E-mail: hailonghu@csu.edu.cn

inorganic filler with a small dielectric constant can realize reducing the size of the high electric field area at the interface and improving the breakdown resistance of the material. This study further reveals that the more dispersed structure of inorganic fillers, the more likely its dendritic damage channels tend to branch, indicating that this situation is conducive to the increase of damage sites of dielectric breakdown dendritic damage channels, the decrease of damage rate, and the improvement of breakdown resistance of materials. All above data demonstrate that this study provides certain guidance for the development of organic-inorganic dielectric composites with both high energy storage and excellent breakdown performance.

Key words: dielectric property; composite material; electric field analysis; DBM model; finite element analysis

随着现代工业的不断发展与进步,为了满足日益增长的能源系统需求,人们对性能更加优异的储能材料与机理更加新颖的电能存储系统有着巨大的需求^[1]。对于如何提高供电系统功率密度,并同时降低其尺寸和成本的研究引起了工业技术领域和储能领域的高度重视。与其他电能存储设备相比,由介电复合材料所制得的介质电容器在快速充放电能力与高功率密度方面极具优势,受到了越来越多的关注与研究。

介质电容器的能量密度与电池和双层超级电容器等电化学设备相比仍有较大差距^[2],因此,具有高能量密度的聚合物基介电复合材料的研究一直受到广泛关注。线性电介质的能量密度可以表示为:

$$U_e = \int_0^{D_{\max}} E dD \quad (1)$$

进而表示为:

$$U_e = 1/2 \varepsilon_0 \varepsilon_r E_b^2 \quad (2)$$

其中, ε_0 是真空介电常数, ε_r 是相对介电常数, E_b 是击穿强度。其能量密度同时依赖于介电常数与击穿强度。与传统的介电材料相比,有机/无机介电复合材料可同时具有高介电常数的无机填料与高击穿强度的聚合物基体进行复合,引起了人们对其在电能存储应用上的广泛关注^[3]。但介电复合材料中介电常数增大通常以降低击穿强度为代价,此两种特性难以兼顾^[4]。如何在提高介电复合材料能量密度的同时优化其击穿性能也成为重要的研究热点之一。

为解决上述问题,研究者们分别基于无机填料的尺寸、形状和排布三方面对介电复合材料的介电常数与击穿强度进行调控。例如王立等^[5]使用两步熔盐法控制无机填料的平均尺寸,通过填充一定尺寸的无机填料提升了介电复合材料的介电性能;刘晓林等^[6]合成了珊瑚状和树枝状的无机填料,通过其垂直于外电场的分支增加击穿强度,平行于外电场的分支增大介电常数;王逸飞等^[7]通过调控无机

填料的分布,设计了一种类似三明治的宏观结构,使其夹层结构中相邻层之间形成了更强的界面势垒,从而实现了更优的击穿强度。上述研究都为改善介电复合材料介电常数与击穿强度之间的矛盾提供了新的途径。但是对于介电复合材料发生击穿损伤时,如何通过其内部电场与击穿损伤形貌的演变规律优化介电及耐击穿性能的研究较少。

本研究通过有限元数值模拟,基于 DBM 模型,调控无机填料的体积含量,改变其分布结构,以聚二甲硅氧烷(PDMS)聚合物为基体,设计出多种介电复合材料。探究了无机填料的分布对整个介电复合材料体系电场的影响,继而阐明发生介电击穿时树状损伤通道的击穿损伤形貌的演变规律与特性。该研究结果通过提升介电复合材料的耐击穿性能来进一步提升能量密度,为开发高储能密度的有机-无机介电复合材料提供理论指导。

1 实验方法

1.1 有限元数值模拟

有限元数值模拟法是由 Richard Courant^[8]于 1943 年首次提出,其基本原理是:将物理模型划分为由各个基本单元组成的集合,在每个基本单元内采用插值多项式代替微分方程的解,接着利用剖分插值,将微分方程离散为一组多元的线性方程组,最后以对单元节点插值的方式来得到计算区域内微分方程的近似解。

对介电复合材料在发生介电击穿时树状损伤通道生长的微观观察表明,在两电极间的距离为 1~2 mm 时,树枝伸展的增量通常为 5~10 μm ^[9],为了尽量符合实际情况,本研究通过仿真软件 COMSOL 设计了尺寸为 2 mm×2 mm 的正方形电介质模型。若保持无机填料在聚合物基体中的体积含量不变,正方形代表介电复合材料基体,圆形颗粒代表球形填料,则填料在基体中的分布如图 1 所示。

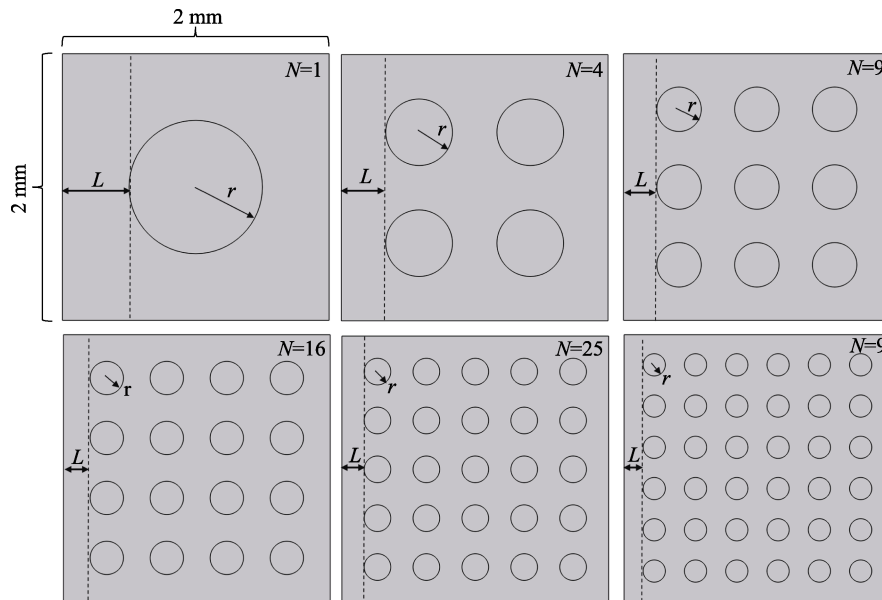


图 1 填料在基体中的分布情况示意图
Fig. 1 Distribution of fillers in matrix

根据几何原理计算得到:

$$L = \frac{2 - 2r\sqrt{N}}{\sqrt{N} + 1} \quad (3)$$

其中, L 为最边缘的球形填料同介电复合材料边缘的距离, r 为球形填料的半径, N 为球形填料的数量。

图 2 是类似于平行板电容器的几何模型, 以球形填料数量 $N=1$ 时为例, 在进行有限元计算时, 该介电复合材料填料与基体的介电常数分别为 ϵ_1 和 ϵ_2 , 在上极板施加 10 V 的电势, 下极板接地, 四周设定 $\frac{\partial U}{\partial n} = 0$ 的边界条件, 通过式 (4) 和 (5) 求解 Laplace 方程的方法在有限元网格中确定局部电位。

$$\nabla[\epsilon_0 \epsilon_r E(x, y, z)] = 0 \quad (4)$$

$$E = \nabla U(x, y, z) \quad (5)$$

其中, ϵ_0 为真空介电常数 (8.85×10^{-12} F/m), ϵ_r 为相对介电常数, E 为电场强度, U 为向模型中施加的电压。

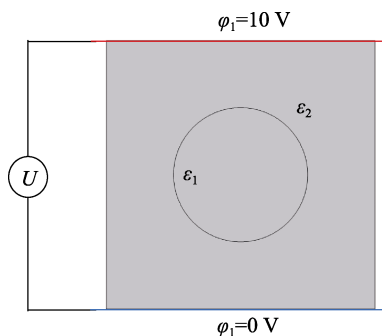


图 2 尺寸为 2 mm×2 mm 的正方形介电复合材料模型
Fig. 2 Model of square dielectric composite with size of 2 mm×2 mm

1.2 DBM 模型

在 DBM 模型中, 电介质由矩形点阵表示, 其中的每个点都代表了一个电介质点^[10]。如图 3(a, b), 将使用有限元计算得到的电场强度以矩阵的形式导入数学软件 MATLAB。再将其结果组成如图 3(c)所示的正方形网格, 代表网状结构的聚合物基复合材料, 最后将其离散为由 200×200 个网格点组成的二维阵列。在二维阵列中设置并标记一个网格点为初始击穿的损伤点。损伤点随着计算的进行而不断拓展形成树状损伤通道。在计算过程中, 根据上一步损伤点周边网格点的局部场强定义其损伤的概率, 因此该模型的树状损伤通道决定于通道周边的局部场强, 但又不一定是在局部场强最大处不断损伤, 而是在损伤概率最大处, 从而使树状损伤通道的生长受到电场的随机控制。

树状损伤通道在上个损伤点周边网格点生长的概率 P 与该点处电场强度 E 的指数 η 次幂成正比 ($P \propto E^\eta$), 电场强度 E 可以用 ϕ 表示, 因此有:

$$P(i, k \rightarrow i', k') = \frac{(\phi_{i', k'})^\eta}{\sum (\phi_{i', k'})^\eta} \quad (6)$$

其中, 在树状损伤通道周边所有可能的生长位点为 (i', k') , $\phi_{i', k'}$ 为位点的待生长电位, P 为每个待生长位点损伤的引发概率, η 也被称为生长系数。

2 结果与讨论

2.1 介电常数分析

本研究需要确定在有限元数值模拟中填料和基

体的介电常数 ϵ_1 和 ϵ_2 ，分别进行两组模拟计算：(a) 假设该介电复合材料填料为 BaTiO₃(介电常数为 ϵ_1 ^[11])，基体介电常数 $\epsilon_2 = \frac{\epsilon_1}{n}$ ；(b) 假设该介电复合材料基体为 PDMS(介电常数为 ϵ_2 ^[12])，填料介电常数 $\epsilon_1 = n\epsilon_2$ 。分别得到以 BaTiO₃ 为填料或以 PDMS 为基体的介电复合材料在改变填料与基体介电常数之比 n 时，其内部电位移的变化量，如图 4 所示。

当 n 从 1 到 50 变化时，介电复合材料的电位移变化速度呈现先快后慢，最后趋于平稳的趋势，尤其是当 $n > 20$ 时，电位移的变化趋缓。文献^[13]中向聚合物基体中加入一定含量(小于渗流阈值)的球形填料后，介电复合材料整体的介电常数不会大幅度提高，实验现象与本研究的计算结果吻合。而在介电复合材料内部，其电位移越大，极化强度

也越大，越有利于提高其介电常数。这表明当 $n > 20$ 时，介电复合材料内部的电位移变化不再明显，其内部电极化逐渐饱和。此时的填料介电常数对介电复合材料整体介电常数的贡献减小，这可能是由分散无机填料的去极化效应导致^[14]。因此，在本研究进行有限元计算并得到如图 3(a)所示的电场云图时，以 PDMS 为基体，BaTiO₃ 为填料，此时的无机填料与聚合物基体皆为常用在介电复合材料中的组分。这一方面更加符合实验中的实际情况，另一方面，无机填料与聚合物基体的介电常数之比 n 远大于 20，介电复合材料内部的电位移变化量最大，无机填料介电常数对介电复合材料整体介电常数提升的贡献也达到最大，为探究无机填料分布对介电复合材料体系电场及击穿损伤形貌的影响减小了聚合物基体的影响。

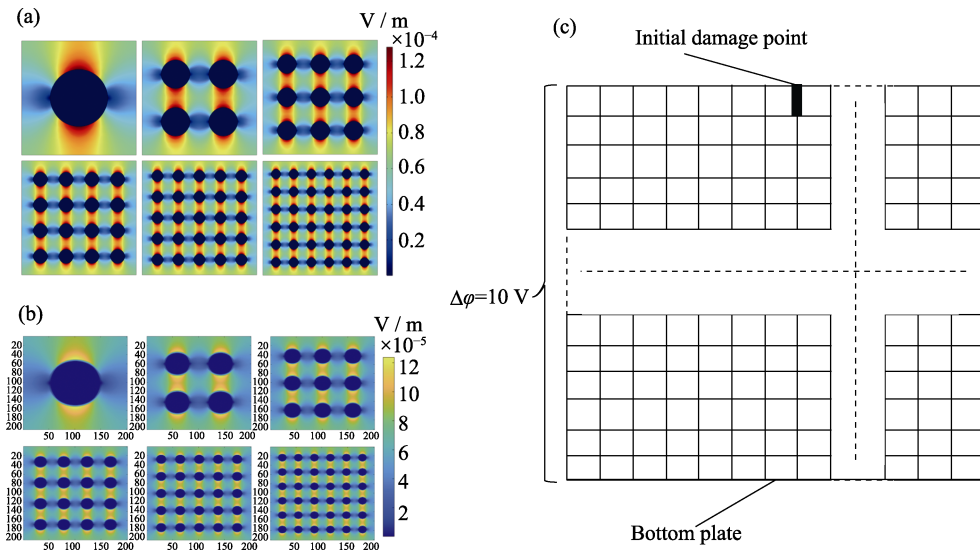


图 3 DBM 模型的计算方法

Fig. 3 Calculation method of DBM model

- (a) Electric field distribution determined by finite element analysis; (b) Electric field distribution determined by MATLAB;
 - (c) Two-dimensional array model consisting of 200×200 grid points
- Colorful figures are available on website

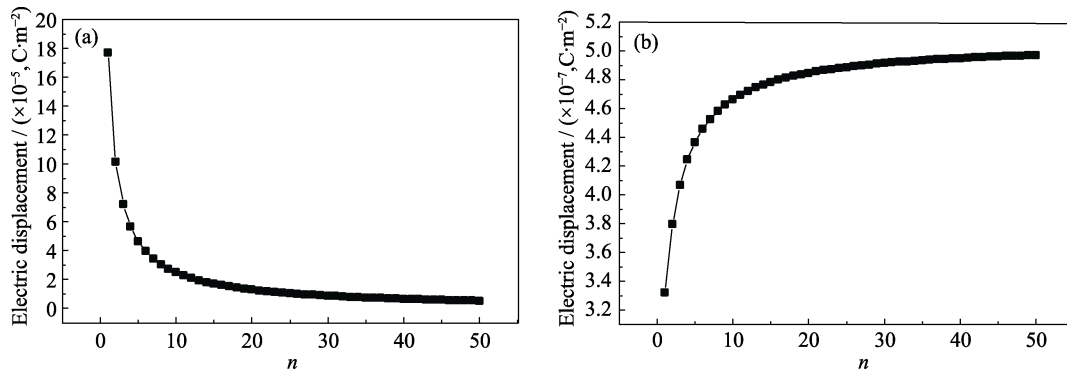


图 4 改变填料与基体介电常数之比时，介电复合材料电位移的变化

Fig. 4 Electrical displacement evolution of dielectric composite material with varied ratio n between fillers and matrix dielectric constant

- (a) When the dielectric composite filler is selected to be BaTiO₃; (b) When the dielectric composite matrix is selected to be PDMS

2.2 DBM 模型中生长系数分析

对纯聚合物基体进行 DBM 模型的计算, 观察生长系数 η 变化对其树状损伤通道造成的影响。将生长系数分别取为 0.5、1、2、3、4、5, 得到的树状损伤通道如图 5 所示。可以看出, 树状损伤通道的形成与其局部场强有关, 而局部场强与由网格点组成的二维阵列相邻格点间的电位有关。树状损伤通道的局部电场不直接决定其损伤路径, 而是通过式(6)的随机过程确定其损伤路径。树状损伤通道总是在其损伤概率最大的格点继续损伤。因此生长系数决定了树状损伤通道的损伤路径, 也从统计的角度决定了其击穿损伤形貌。

树状损伤通道的形态具有一定的随机特性和自相似性, 可以使用分形维数定量表征其在二维空间中的分布状态^[15]。在广义二维空间中, 分形维数可以表示为: 如果有一个正方形面积为 S , 用一个面积为 r^2 的正方形面积去测量, 若其结果为 N , 显然结果 N 与面积 r^2 有关。可以得到如下表达式^[16]:

$$N(r) = S / r^2 \sim r^{-2} \quad (7)$$

倘若该二维空间图形并不恰好是正方形, 而是具有特定形态的, 则此时式(8)中的 $N(r)$ 不一定反比于 r^2 , 便可以得到该二维空间图形的分形维数 D_f 为:

$$N(r) \sim r^{-D_f} \quad (8)$$

$$D_f = \lim_{r \rightarrow 0} \ln(r) / \ln(1/r) \quad (9)$$

对比图 5 可以直观看出随着树状损伤通道的生

长系数增大, 其分形维数减小。文献中实验得到的纯聚合物基体电树枝击穿损伤形貌^[17]同本研究生长系数为 3 时计算 DBM 模型得到的电树枝形态最为相似。使用 Matlab 软件由式(9)编程计算各分形维数的结果也同样说明了这一点, 计算结果如图 6 所示, 生长系数 η 的变化影响了电树枝的生长, 随着生长系数增大, 分形维数整体上呈现减小趋势, 这与在纯聚合物基体中计算得到的文献结论一致^[16]。此外, 计算文献中实际实验的击穿损伤形貌^[17]得到的电树枝分形维数为 1.4139, 接近生长系数为 3 时仿真计算结果的分形维数 1.4177。为了更加符合实际实验中的情况, 本研究在后续添加无机填料的分析中, DBM 模型中使用的生长系数 η 为 3。

2.3 电场分布云图分析

图 7(a)为无机填料数量 $N=16$ 时的模型示意图, 图 7(b)显示了外加电场 E 和相应电势 V 的电场等值线图。由于填料颗粒与基体边界处的介电响应发生突变, 电场和极化的变化很大^[18]。在图 8(a)中, 沿截线 AA'对电场进行的绘制, 可以发现, 无机填料和聚合物基体间的介电常数相差过大而导致介电差异, 无机填料内部的电场远低于外部, 且由于无机填料表面聚集较多的电荷, 材料内高电场集中分布在电场方向上的相邻填料之间, 从而形成了较高的局部电场^[19]。在图 8(b)中, 沿截线 AA'对电极化场进行的绘制也同样说明了这一结论。之后, 为了探寻减

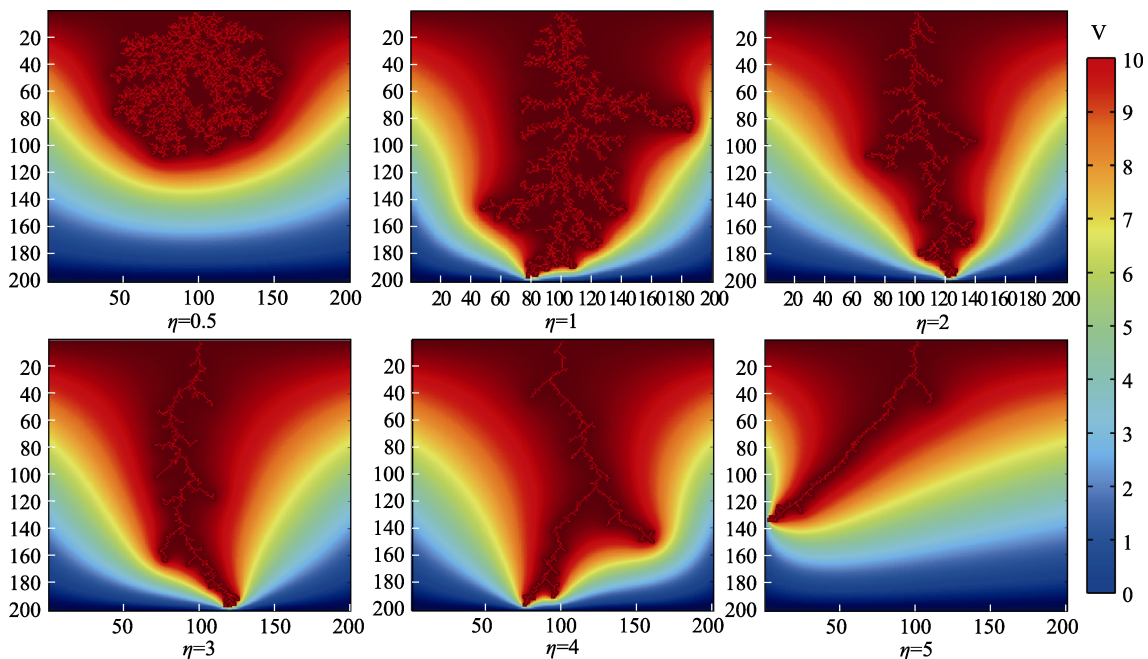


图 5 不同生长系数 η 时的树状损伤通道

Fig. 5 Dendritic damage channels with different growth coefficients(η)

Colorful figures are available on website

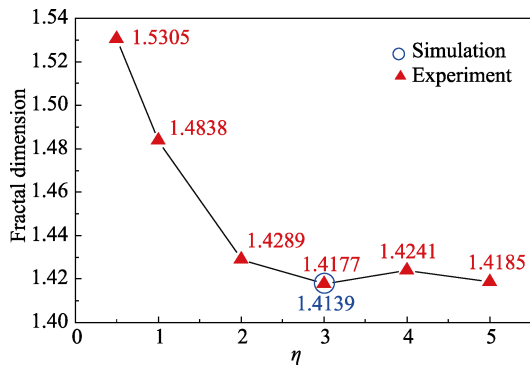


图 6 不同生长系数 η 时的电树枝分形维数
Fig. 6 Fractal dimension of electrical branche with growth coefficient η being altered

少高电场集中分布的方法, 本研究将无机填料的介电常数缩小一定倍数 m 后, 再次沿截线 AA'对复合电介质材料的电场与电极化场进行的绘制。由图 8(c, d) 可知, 聚合物基体和无机填料边界处的介电差异随着其介电常数的靠近而逐渐减小, 而由介电差异减小带来的高局部场强区域减小将增强介电复合材料的击穿强度^[20]。因此, 在进行介电复合材料的研究与制备中, 为减小其界面处高局部场强区域的大小, 提高材料的耐击穿能力, 应尽量选用介电常数较大的聚合物基体或介电常数较小的无机填料, 减小无机填料与聚合物基体边界处的介电差异。

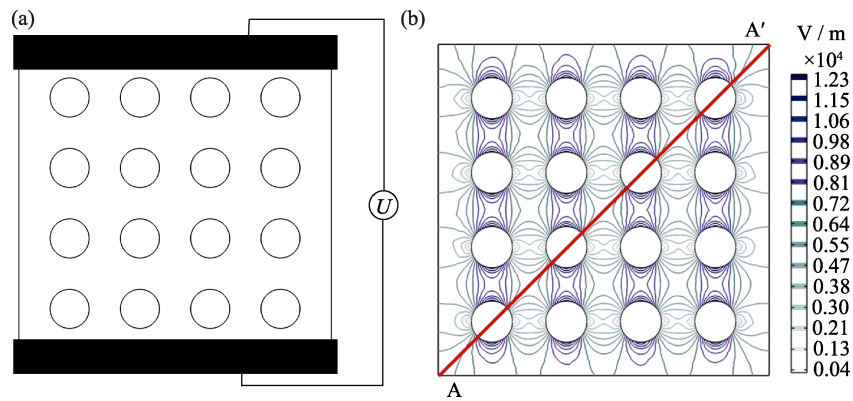


图 7 电场分布分析

Fig. 7 Analysis of electric field distribution

(a) Dielectric composites composed of filler particles and matrix; (b) Internal electric field distribution in dielectric composites
Colorful figures are available on website

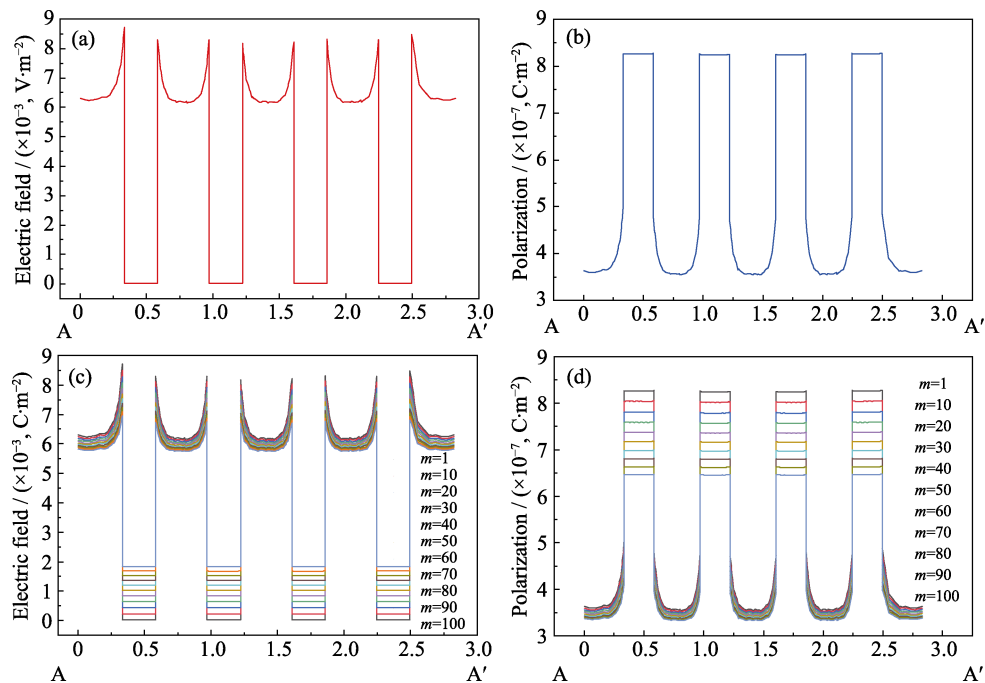


图 8 不同介电常数时的电场及电位移场分布

Fig. 8 Electric field and displacement field distribution with different dielectric constant

(a) Electric field distribution along AA' transversal; (b) Electric displacement field distribution along AA' transversal; (c) Electric field distribution along AA' transversal with dielectric constant of filler particles reduced by m times; (d) Electric displacement field distribution along AA' transversal with dielectric constant of filler particles reduced by m times

Colorful figures are available on website

2.4 击穿损伤形貌分析

在保持无机填料体积分数一定的情况下, 分别改变其分布结构, 使用 DBM 模型计算得到的击穿损伤形貌如图 9 所示。将得到的仿真结果进行分形维数与损伤长度的计算。使用 DBM 模型在 200×200 个网格点的计算过程中, 每一步都损伤了相同的长度, 因此以计算步数作为树状损伤通道的损伤路径长度。如图 10, 可以发现介电复合材料树状损伤通道的分形维数和损伤长度并没有很明显的规律, 这可能是由于 DBM 模型的随机特性和本研究计算程序尺度上的局限性所致。但将其与计算 6 次并取平均值的纯聚合物基体对比可以发现, 介电复合材料树状损伤通道的分形维数与损伤长度总是比纯基体高, 这一结果也与计算文献中纯聚合物基体和介电复合材料击穿损伤形貌的实验图像得到的结果相吻合^[17]。可以看出, 纯聚合物基体虽然由于介电

常数较低而无法达到高储能的目的, 但相较于介电复合材料有较高的耐击穿能力。结合图 9 的击穿损伤形貌可以直观得出, 这是由于添加无机填料后, 形成的介电复合材料中电场畸变对击穿损伤过程造成的影响。无机填料与基体边界处发生介电响应, 靠近无机填料且平行于电场方向的聚合物基体中的平均电场 E_A 增强(是外加电场的几倍), 同时大于其它区域的聚合物基体局部电场 E_B 与高介电常数的无机填料的局部电场 E_C (导电粒子为零), 而电击穿更容易在电场高的地方发生。因此, 击穿损伤形貌在演变时大概率向每个靠近无机填料且平行于电场方向的聚合物基体产生分支, 且距离越近概率越大, 介电复合材料的无机填料分散越均匀, 击穿时演变的分支就越多。结果表明, 在进行球形填料类聚合物基复合材料的研究与制备中, 可以通过分散无机填料的方法使介电击穿的树状损伤通道的损伤位点增多, 延缓其损伤速度, 提高材料的耐击穿能力。

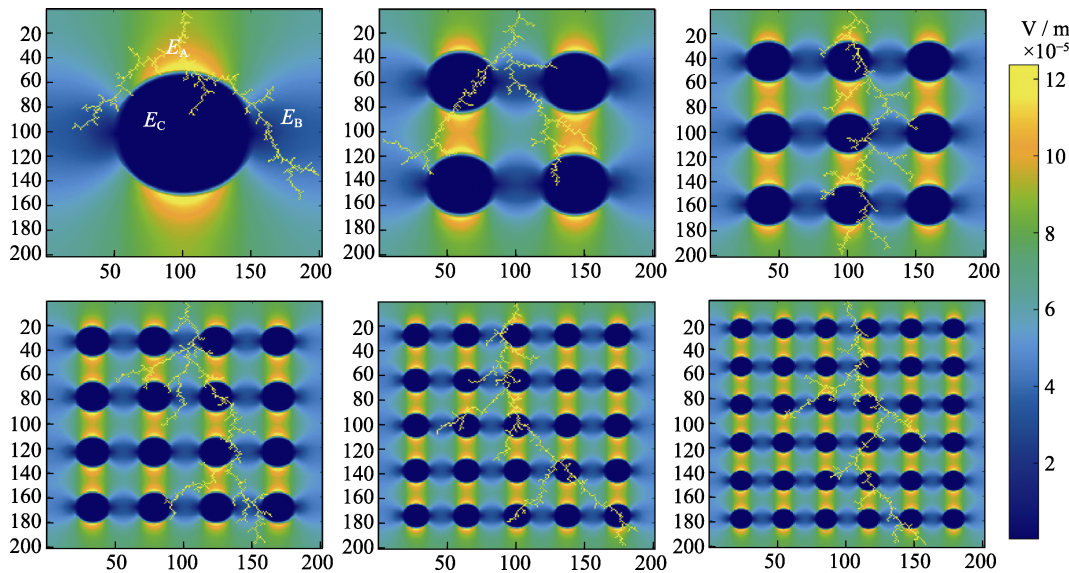


图 9 添加不同无机填料含量的介电复合材料的击穿损伤形貌

Fig. 9 Breakdown damage morphologies of dielectric composites with different contents of inorganic fillers
Colorful figures are available on website

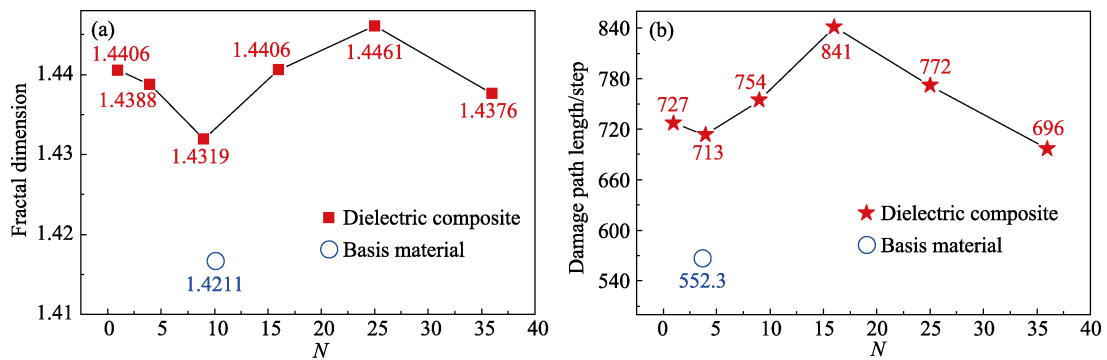


图 10 不同含量无机填料的介电复合材料与纯聚合物基体的损伤形貌量化对比分析

Fig. 10 Quantitative analysis of breakdown damage morphology between dielectric composite with different contents of filler particles and pure polymer matrix
(a) Fractal dimension; (b) Damage path length

3 结论

1)无机填料与基体边界处的介电响应发生突变,介电复合材料在填料颗粒与基体边界处电场和极化的变化很大,会在电场方向上的相邻填料间形成集中分布的高电场区域,从而增大其击穿损伤概率。通过使用较大介电常数的聚合物基体或较小介电常数的无机填料的方式可以减缓无机填料与基体边界处的介电差异,继而减小其界面处高电场区域,最终提升复合材料的耐击穿性能。

2)击穿损伤形貌在演变时大概率向每个靠近无机填料且平行于电场方向的聚合物基体产生分支,且距离越近概率越大。保持无机填料体积分数一定时,改变其分布结构,使之分散得更加均匀,介电复合材料的树状损伤通道会更容易产生分支,从而使介电击穿时树状损伤通道的损伤位点增多,延缓其损伤速度,最终提升复合材料的耐击穿性能。

参考文献:

- [1] LI D, ZENG X, LI Z, *et al.* Progress and perspectives in dielectric energy storage ceramics. *Journal of Advanced Ceramics*, 2021, **10(4)**: 675.
- [2] CHU B, XIN Z, REN K, *et al.* A dielectric polymer with high electric energy density and fast discharge speed. *Science*, 2006, **313(5785)**: 334.
- [3] HU H, ZHANG F, LUO S, *et al.* Recent advances in rational design of polymer nanocomposite dielectrics for energy storage. *Nano Energy*, 2020, **74**: 104844.
- [4] HU H, ZHANG F, LUO S, *et al.* Electrocaloric effect in relaxor ferroelectric polymer nanocomposites for solid-state cooling. *Journal of Materials Chemistry A*, 2020, **8(33)**: 16814.
- [5] WANG L, GAO F, XU J, *et al.* Enhanced dielectric tunability and energy storage properties of plate-like $\text{Ba}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{TiO}_3$ /poly(vinylidene fluoride) composites through texture arrangement. *Composites Science and Technology*, 2018, **158**: 112.
- [6] WANG SIJING, QU PENG, LI CHENG, *et al.* Hydrothermal synthesis of dendritic BaTiO_3 ceramic powders and its application in BaTiO_3 /P(VDF-TrFE) composites. *International Journal of Applied Ceramic Technology*, 2017, **14(5)**: 969.
- [7] WANG Y, WANG L, YUAN Q, *et al.* Ultrahigh energy density and greatly enhanced discharged efficiency of sandwich-structured polymer nanocomposites with optimized spatial organization. *Nano Energy*, 2018, **44**: 364.
- [8] HOLLAND I. Fundamentals of the finite element method. *Computers & Structures*, 1974, **4(1)**: 3.
- [9] BERGERO P, PERUANI F, SOLOVEY G, *et al.* Dielectric breakdown model for conductor-loaded and insulator-loaded composite materials. *Physical Review E*, 2004, **69(1)**: 016123.
- [10] NIEMEYER L, PIETRONERO L, WIESMANN H J. Fractal dimension of dielectric breakdown. *Physical Review Letters*, 1984, **52(12)**: 1033.
- [11] ADILA ISMAIL F, ROZANA A M O, SOBRI IDRIS M, *et al.* Dielectric and microstructural properties of BaTiO_3 and $\text{Ba}_{0.9925}\text{Er}_{0.0075}\text{TiO}_3$ ceramics. *EPJ Web of Conferences*, 2017, **162**: 01051.
- [12] MENG X, ZHANG Z, LIN D, *et al.* Effects of particle size of dielectric fillers on the output performance of piezoelectric and triboelectric nanogenerators. *Journal of Advanced Ceramics*, 2021, **10(5)**: 991.
- [13] FENG X J, LIU X L, ZHAO K, *et al.* Effects of dopamine-modified BaTiO_3 on breakdown strength of BaTiO_3 /PVDF composites. *Acta Materiae Compositae Sinica*, 2015, **32(3)**: 699.
- [14] CHEN S S, HU J, GAO L, *et al.* Enhanced breakdown strength and energy density in PVDF nanocomposites with functionalized MgO nanoparticles. *RSC Advances*, 2016, **6(40)**: 33231.
- [15] 迟晓红. 纳米蒙脱土/聚烯烃复合材料结构形态与电树生长机理研究. 哈尔滨: 哈尔滨理工大学博士学位论文, 2015.
- [16] 薛福明. 基于 WZ 模型的电树枝生长仿真分析. 哈尔滨: 哈尔滨理工大学硕士学位论文, 2012.
- [17] IMAI T, SAWA F, OZAKI T, *et al.* Influence of temperature on mechanical and insulation properties of epoxy-layered silicate nanocomposite. *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, 2006, **13(2)**: 445.
- [18] ZHOU K, BOGGS S A, RAMPRASAD R, *et al.* Dielectric response and tunability of a dielectric-paraelectric composite. *Applied Physics Letters*, 2008, **93(10)**: 325.
- [19] ZHU L. Exploring strategies for high dielectric constant and low loss polymer dielectrics. *Journal of Physical Chemistry Letters*, 2014, **5(21)**: 3677.
- [20] HUANG X, JIANG P. Core-shell structured high- k polymer nanocomposites for energy storage and dielectric applications. *Advanced Materials*, 2015, **27(3)**: 546.