第 50 卷 第 6 期：2283-2296 高电压技术 Vol.50, No.6: 2283-2296
2024 年 6 月 30 日 High Voltage Engineering June 30, 2024
DOI: 10.13336/j.1003-6520.hve.20231622

基于电介质薄膜的器件自愈性能的研究现状

吴 锴，徐子航，张 琛，吕泽鹏
（西安交通大学电工材料电气绝缘全国重点实验室，西安 710049）

摘 要：随着能源与电力技术的不断发展，对电容器的需求越来越大，而各种资源的稀缺强调了利用各种能源的必要性，对于各种储能器件如金属化薄膜电容器以及基于电活性聚合物(electroactive polymers, EAP)的能量转换装置提出了更高的要求。然而这两类装置却极易发生电击穿，在工作循环中有着极高的故障率，因此器件的自愈性具有十分重要的意义。文中综述了金属化薄膜电容器和 EAP 能量转换装置自愈性能的国内外研究现状，首先重点关注了金属化薄膜电容器中自愈理论发展以及各种关键参数对自愈的影响，其自愈最为稳定且研究相对完善。随着介电弹性体的兴起，想要其拥有自愈性能，参考金属化薄膜电容器的结构是一个可行的思路。但如何使得金属电极满足大应力大形变的需求成为一种柔性电极是一个很大的挑战。碳电极是弹性体中应用最为广泛的电极材料，它拥有极好的形变能力，但对于其自愈性能的深入研究较少且缺乏成熟的理论支撑，使得其在工业领域中难以应用和改善。最后总结对比了金属电极以及碳电极在自愈性能上的差异，并预测了可自愈柔性电极新的发展方向，进一步拓展自愈性的器件在工业领域中的应用。

关键词：自愈性能；金属化薄膜电容器；电活性聚合物；金属电极；碳基电极

Research Status of Self-healing Performance of Devices Based on Dielectric Films

WU Kai, XU Zihang, ZHANG Chen, LÜ Zepeng
(State Key Laboratory of Electrical Insulation and Power Equipment, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China)

Abstract: With the continuous development of energy and power technology, the demand for capacitors is increasing, and the usage of various energy sources is emphatically required due to the scarcity of various resources. Higher requirements have been put forward for various energy storage devices such as metallized thin film capacitors and energy conversion devices based on electroactive polymers (EAP). However, such devices are highly susceptible to electrical breakdown and have a high failure rate during the working cycle. Therefore, the self-healing performance of devices is of great significance. This paper reviews the current research status of self-healing performance of metallized thin film capacitors and EAP energy conversion devices both domestically and internationally. Firstly, this paper focuses on the development of self-healing theory in metallized thin film capacitors and the influence of various key parameters on self-healing. Its self-healing is the most stable and relatively well-researched. With the rise of dielectric elastomers, it is a feasible approach to refer to the structure of metallized thin film capacitors if the self-healing performance is required. However, how to enable metal electrodes to meet the needs of large stress and deformation as a flexible electrode is a big challenge. Carbon electrodes are the most widely used electrode material in elastomers, with excellent deformation ability. However, the in-depth research on their self-healing performance is limited and there is a lack of mature theoretical support, making it difficult to apply and improve them in the industrial field. Finally, the differences in self-healing performance between metal electrodes and carbon electrode devices were summarized and compared, and some new development directions regarding compliant electrodes were predicted to further expand the application of self-healing devices in the industrial field.

Key words: self-healing performance; metallized film capacitor; electroactive polymer; metal electrodes; carbon-based electrodes

0 引言

近年来，人类社会面临着巨大的环境压力，资源的稀缺强调了利用各种能源的必要性。金属化薄膜电容器作为储能元器件是高压直流输电装置、电动汽车等装备的核心器件。同样地，电活性聚合物是一种能实现电能和机械能相互转换的介电弹性体材料，它的实质是一种电容可变的储能器件。20 世纪 90 年代，应变大于 100% 的介电弹性体材料研制成功，因其优异的变形和能量密度而受到广泛关注[1]。介电弹性体致动器(dielectric elastomer actuator, DEA)利用 EAP 材料将电能转换为机械能，被广泛

应用于机器人[2]、生物假体[3]等领域。此外，更为意义重大的是介电弹性体发电机(dielectric elastomer generator，DEG)在海洋能[4]和潮汐能[5]的利用方面也显示出非凡的潜力。然而，由于部分击穿后电极之间的短路，这些器件总是在工作循环中有很高的故障率[6]。在不考虑介质材料与电极机械疲劳的情况下，这类器件由于高故障率导致服役寿命短，并且故障通常发生在需要实现最大应变或实现最大能量输出的场合[7-8]。比如，据 Pelrine 等人的研究，聚丙烯酸及硅弹性体在在低频工作条件下，性能仅能维持几千次的循环[1]。值得注意的是，在相对较低频率的机械循环下，电击穿是限制器件服役寿命的主要失效形式[9]。

为了防止整个系统在能量转换过程中由于电击穿而崩溃，器件的自愈性能具有重要意义，可以大大降低故障率，延长设备的使用寿命。值得注意的是，材料的自修复以及器件的自愈虽然在有些文献中都用“自愈(self-healing)”来表示，但它们是两个概念。材料的自修复指的是材料通过某种方式自我修复机械损伤与破损，最终愈合。而器件在发生电击穿后的自愈指的是当电介质存在缺陷并发生局部击穿时，电介质两侧的电极通过吸收电弧的能量而蒸发或燃烧。因此，形成了一个不导电的区域使得电弧熄灭，电弱点被隔离，最后整个系统恢复到绝缘和工作状态。自愈的过程就是电极在发生电击穿后逐渐蒸发或降解的过程，如图 1 所示，而这个现象也被越来越多的学者称之为“电极自清除(self-clearing)”。

众所周知，关于自愈的研究在金属化薄膜电容器领域已经积累了大量的学术成果，是一项较为成熟的技术。这为基于 EAP 材料的能量转换装置的自愈研究提供了一定的思路和基础。采用金属薄膜电极可以实现自愈，但金属电极形变能力差，限制了其在 EAP 材料中的应用。尽管金属电极具有优异的自愈性能并且具有一定的延展性，硅膜上的金薄膜(50 nm 厚)仅可以在 20%的应变下进行可逆拉伸[10]。然而，随着介电弹性体技术的发展，弹性体的形变范围越来越大，对电极材料应变的需求也越来越高。因此利用金属电极在 EAP 材料上实现自愈功能还面临诸多挑战。

目前，碳是 DEA 和 DEG 器件中应用最广泛的电极材料。与金属电极相比，碳基电极具有更好的柔性。此外，由单壁碳纳米管(single walled carbon nanotube, SWCNT)、石墨烯，炭粉等材料构成的电极由于其在特定情况下展现出的自清除能力而被认为是有潜力的电极材料。然而，现有的研究缺乏对碳电极自清除特性的深入讨论。对于碳基电极可自清除的原因和条件，目前还没有权威的解释和统一的结论。这使得碳基电极在特定工程环境下难以应用和优化。除此之外，高分子聚合物电极也是介电弹性体器件中常用的电极，但鲜有人关注这类器件的自愈性能。

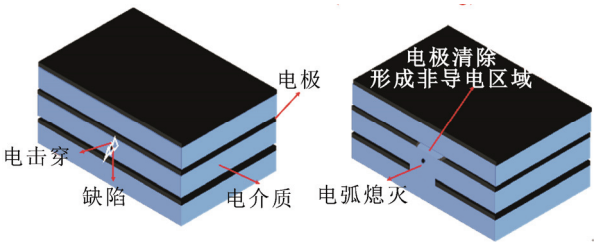


图 1 自愈过程的示意图

Fig.1 Schematic diagram of electrode self-clearing

文中梳理了目前国内外储能器件的自愈性能的相关研究，首先着手于金属化薄膜电容器中的发展概况，再拓展到有着形变需求的 EAP 换能器件，讨论分析了应用不同种类电极材料的器件自愈性能。最后对比了金属电极和碳基电极两类电极自清除的特点和关键条件。并对未来柔性电极的发展方向进行了讨论和展望。

1 金属化薄膜电容器

自愈的概念的应用最早出现在 20 世纪 70 年代对金属化薄膜电容器的研究中[11]。也正是从这个时候开始，逐渐展开了对自愈特性的研究。对金属化膜自愈特性的研究主要可分为 3 个方向：一是自愈模型的建立以及自愈过程的探究，整个过程包括从电击穿的瞬间到金属电极的清除，最后到电弧的熄灭，试图从机理上寻找提高自愈性能的方法；二是针对不同的工况研究影响自愈过程的关键参数，包括电极形状参数、电容器工作电压、绕组压力等，通过调节这些影响因素使电容器拥有更小的能量损失，更稳定的自愈性能；三是从自愈的机制入手，分析不同情况下的自愈对器件寿命的影响。

1.1 自愈模型和理论的发展

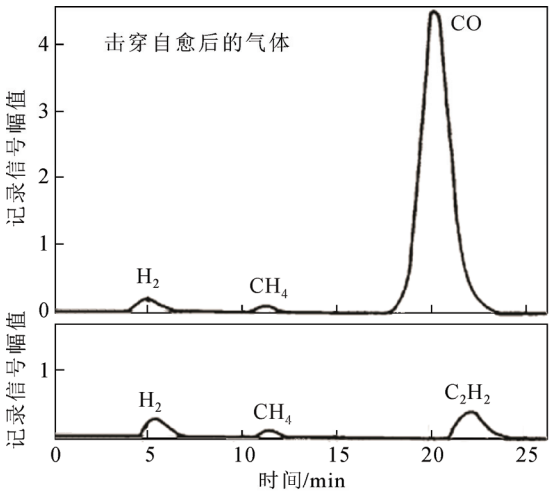
金属电极的自愈过程是一个复杂的过程，充斥着各种物理变化甚至还有化学反应。H.Heyang 等人在 1970 年代着手于金属化膜的自愈机理研究，首先

提出了电弧放电模型，为后续的研究奠定了基础。该模型认为电击穿会使介质材料分解成原子态，并产生含有无定形石墨的气体，随着电弧的熄灭和温度的降低，石墨将在击穿通道附近沉积，而石墨的大量积聚是自愈失败的关键原因[12]。随后有研究学者在气相色谱分析中观测到了击穿自愈过程中产生了大量碳氢化合物气体[13]。这一发现符合 J. Kammermarie 在 20 世纪 80 年代提出的一种模型，该模型认为放电不仅导致金属电极被加热蒸发，有机介电材料也将受热分解从而形成金属离子和各种碳、氢、氧原子，在击穿区域造成放电，如图 2 所示。如果输入能量不足以维持其放电，则放电将逐渐消失[14]。随着电弧的熄灭温度的降低，各种元素原子逐渐形成各种化合物气体。这个模型相较于电弧放电模型进一步完善了自愈的过程，特别是对于电弧熄灭的解释，并且更加深入地考虑到了介质材料对自愈过程的影响。

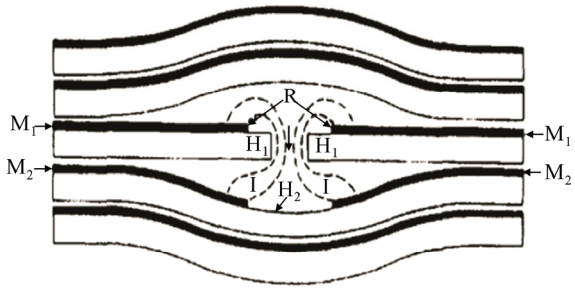
21 世纪初，JH tortai 建立了等离子体热力学模型。该模型建立在热力学的基础之上，认为放电产生的焦耳热效应使得金属电极蒸发并电离形成金属等离子体，并且通过实验验证了放电电弧就是高密度的金属离子[15]。他们通过实验以及计算得出在自愈过程中的临界功率密度如图 3 所示(R 为方阻)，并且发现了临界功率密度 K，一旦功率密度小于这个临界值，电弧就将熄灭，该功率密度是维持等离子体电离放电的最小值[16]。V.O.Bel'ko 等人通过计算模拟出了电击穿发生时在金属层上的电流数值，并由此计算出放电电流的功率密度，仿真得出的结果与 JH tortai 的结论一致[17]。

随后，学者们针对金属化薄膜电容器自愈的研究也大都建立在热力学模型的基础上，从能量损失的角度进一步分析自愈过程和熄弧机理，S.A.Boggs 在电弧的能量损失和电弧产生的气体产物相关的物理过程的背景下分析了自愈过程，发现电弧的熄灭与界面压力，施加的电压有关，弧阻以及弧长的增加是促进电弧熄灭的主要原因[18]。Guoyong Xie 等人列举出了 4 种取决于电极厚度的自愈模式，并通过微观形貌和电性能进行了验证[19]。

综上所述，在所有金属化薄膜电容器自愈模型中，基于热力学的等离子体放电模型较为完善，对其自愈机理和灭弧的原因都有系统性的解释，后续对于自愈的研究大都基于热力学模型开展。然而这些模型都有其局限性，大多针对压强等单一因素对自愈的影响，尚未综合考虑不同工况的影响。比如，模型在不同厚度的不同击穿电压下进行自愈面积的理论计算时，理论值与实际值之间可能会出现极大



(a) 金属电极击穿自愈后的气相色谱分析[13]



(b) 金属化薄膜电容器自愈模型图[14]

图 2　自愈模型

Fig.2　Model of self-healing

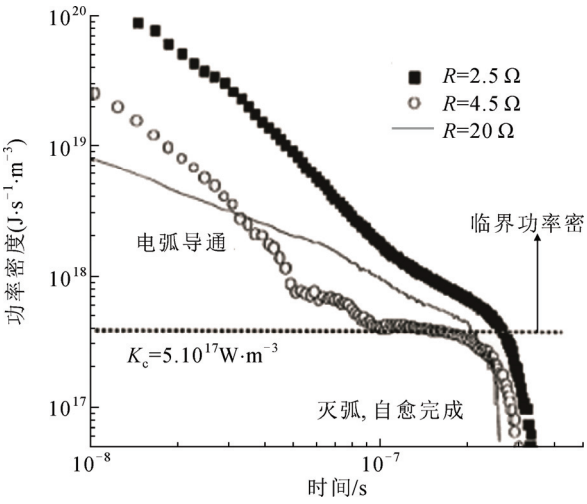


图 3　等离子体模型中的临界功率密度[16]

Fig.3　Critical power density in plasma models

的误差。误差的来源可能主要来自于模型忽略了金属电极的氧化过程以及电极的参数取值不准确等。所以在后续的研究中，研究者们针对不同工况下影响自愈性能的关键性因素做了更加细致的研究。

1.2 影响自愈的关键性因素

研究影响金属化薄膜电容器自愈性能的关键性因素是另一个研究方向。通常情况下主要通过自愈损失的能量、自愈损失的电极面积、自愈时间以及自愈的频次等多个参数来评估自愈性能。卓越的自愈性能意味着，较小的自愈能量，较小的损失面积，更快的绝缘恢复速度。其中自愈的能量是最为重要的指标。工程应用中，电压测试法是比较常用的自愈性能测试方法[20]。声压测试法和光测量法主要利用对自愈发生时的声学或光学信号进行捕捉和处理，便于故障定位以及确定自愈频次，而电压测试法主要针对电流波形等对自愈情况进行分析[21-22]。

通过大量的对金属化薄膜电容器的研究，影响自愈性能的关键性因素主要有电介质材料的种类以及元素含量，电极的形状参数与图案，工作电压以及层间压强等。

1.2.1 电介质材料

按照电弧放电模型的说法，石墨气体会在灭弧后沉积，这是自愈失败的主要原因之一。Walgenwitz B 发现氧元素含量高的电介质材料更有助于清除沉积的碳元素，从而提高自愈的成功率[23]。而含碳量高的介质材料显然具有更差的自愈能力。Bettacchi 等人的研究进一步发现在电介质材料中，影响自愈能力的不仅仅是碳元素以及氧元素的含量，而是碳元素与氢氧元素含量的比值。实验表明碳元素含量相对较高时，器件整体的自愈能力较差；而氢氧元素含量较高时，自愈能力则较强。如图 4 所示，双向拉伸聚丙烯薄膜材料(biaxially-oriented Polypropylene, BOPP)中氢氧元素含量相对较高，它被认为是金属化薄膜电容器介电材料中自愈性能最好的材料之一[24-25]。这一结果符合氢氧模型的理论，高含量的氢氧元素有助于使得原本沉积的碳元素在降温过程中形成甲烷、一氧化碳等气体，从而提高器件在电击穿之后的自愈成功率。

除了介电材料的元素含量，研究学者们还发现自愈过程中耗散的能量与介电电容成正比，在保证电极面积与电极间距离一定的情况下，拥有更大介电常数的介电材料，在自愈过程中会造成更大的能量损失[26-28]。介质材料介电常数的升高还会导致自愈所需时间的延长[26]。

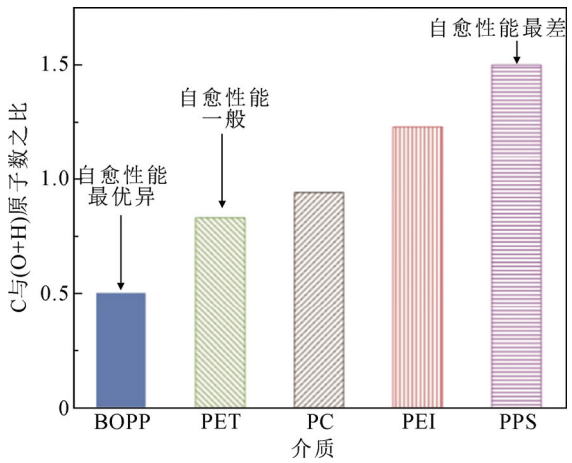


图 4 介质材料不同碳元素与氢氧元素的比值对自愈性能的影响[25]

Fig.4 Effect of C/H+O on self-healing performance of dielectric materials

由此可见，虽然器件的自愈性能是由金属电极的蒸发而体现，但自愈性能还受到了介电材料的影响。作为储能器件，追求高介电常数一直是金属化薄膜电容器的目标之一，但需要平衡自愈性能和介电性能，使其在兼顾自愈的同时获得更大的储能密度。

1.2.2 电极图案与电极厚度

对于金属化薄膜电容器，电极的形状参数主要包含两个方面，分别是电极的厚度与电极的图案。金属膜的厚度通常用其方阻 R(每平方米的薄膜电阻)表征，电极的厚度与电极的方阻成反比。D.G.Shaw 研究了小方阻、大厚度的金属电极(R<10 Ω)的自愈性能，研究表明自愈损失的能量与自愈损失的面积随着方阻的增加而减少[27]。C.W.Reed 认为，电极方阻与自愈损失的能量之间的关系比较复杂，但总体变化趋势是自愈能量随着方阻的增加而减少[28-29]。后来随着电容器技术不断发展和电极制作工艺的成熟，越来越薄的金属电极被应用于金属化薄膜电容器中。对于这类具有相对较高方阻的金属电极，李化等人观察到随着方阻的改变与自愈损失的能量具有更大的变化范围[30-31]。虽然电极厚度的减少有利于自愈性能的提升，但也会带来更严重的发热问题，因此对于电极厚度的选择还应该根据具体的实验条件和工况而定。

除了电极的厚度，电极本身的图案也可以改变以优化自愈性能。通常情况下，电容器中都采用平

板薄膜电极。研究表明，金属化膜电容器采用安全膜结构可有效防止电容器内部短路故障的发生，提高自愈稳定性[32]。所谓安全膜(如图 5 所示)即是采用分体式金属电极设计，将整个金属电极分成许多小块。各块间采用去金属化绝缘区进行隔离，不同金属块之间仅通过电流栅连接。当金属电极区域发生电击穿时，一方面在击穿点发生自愈现象，另一方面，击穿时的大电流使得电流栅熔断[33-34]。如此一来，金属分隔电极可以进一步地限制局部击穿后的放电电流，从而提高自愈能力，保证可靠性[35]。

1.2.3　工作电压与工作压强

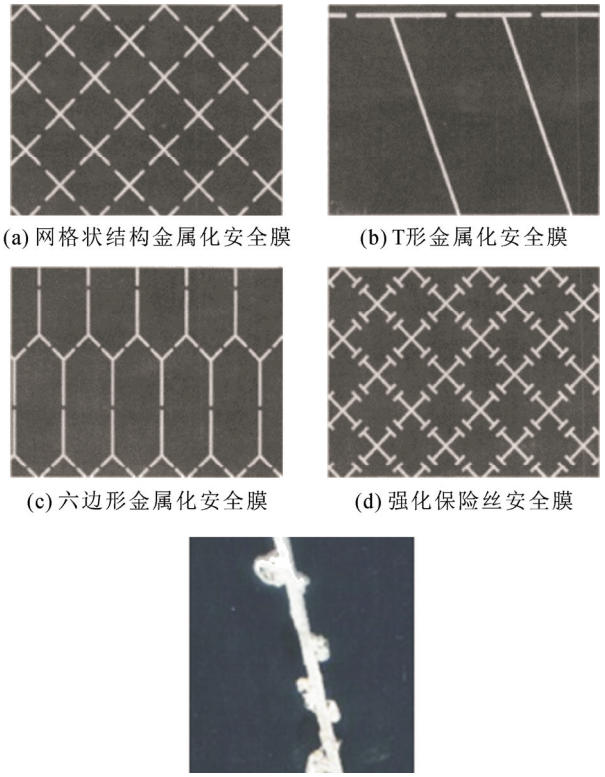
除了电容器本身的材料性质之外，电容器工作环境也对自愈有着较大的影响。工作电压的影响，主要可以分为交直流以及工作电压大小。王荀的研究发现与直流条件下的自愈对比[36]，交流条件下，自愈电流的峰值和自愈能量相对较高而自愈时间较短。除此之外，汲胜昌等人在对金属化薄膜电容器进行交直流加速劣化后发现，直流电压下电容器劣化主要由于金属镀层自愈蒸发导致电极有效面积减少，而交流电压下自愈现象往往伴随着电化学腐蚀造成金属镀层的氧化[37]。几乎所有研究结果都表明自愈损失的能量和自愈的面积随着工作电压(击穿电压)增加而增加[27,30-31]。

然而工作绕组压强对自愈性能的影响较为复杂，有些学者发现耗散能量和自愈面积随着压强的增加而减小[16,38]。他们认为压强增加使得电容器绕组中击穿的区域空腔体积减少，按照等离子体模型的解释，等离子体密度会增加，导致等离子体区域扩散需要的功率密度增加，从而有利于电弧的熄灭以及自愈的完成。林福昌等人通过增加电容器绕组压力，直观地得到了寿命更长的电容器机组[38]。然而，过大的压力则会对自愈产生极大的影响，甚至导致电容器持续击穿而自愈失败[30-31]。

除了上述影响因素，温度等因素同样对自愈性能有极大的影响。例如，温度的升高加速了电容器老化的同时，会促进自愈的完成[36]，降低自愈的时间。综上，不同的实验条件会导致自愈性能的实验结果不同。介电材料、电极材料、不同的工作环境共同影响着自愈的性能。为此，学者们一般利用经验公式对自愈能量进行表征[31]：

$$W=\frac{kU^{a}C}{R^{b}f(p)} \tag{1}$$

式中：W 为自愈能量，是衡量自愈性能最重要的指标之一；k 是比例系数；U 为击穿电压；C 为电容器电容值；R 为电极方阻；$f(p)$为代表压强的函数；a 与 b 为随着实验条件的不同而变化的常数。几乎可以达成共识的是通过增加介电材料的氢氧含量，降低介电常数，或在一定范围内适当减小电极厚度，降低电容器工作电压和适当的增加绕组压强都能够降低自愈能量优化其自愈性能。



(a) 网格状结构金属化安全膜　(b) T形金属化安全膜

(c) 六边形金属化安全膜　(d) 强化保险丝安全膜

(e) 安全膜电极边缘的自愈现象

图 5　安全膜的常见结构以及电极边缘的自愈现象[32]

Fig.5　Structure of safety film and the self-clearing phenomena at the edge of the segment electrode

1.3　自愈与电容器寿命预测

金属化膜电容器的失效有两种形式，一是电容量损失大于额定电容的 5% ，二是电容器电极之间短路[39]。目前的寿命的预测模型主要利用概率论和数理统计相关模型如最小二乘法、Weibull 分布模型法、Birnbaum-Saunders 等方法对击穿自愈后电容量进行采集和数据处理[40]。从影响自愈的机制和关键性影响因素着手也是预测金属化薄膜电容器寿命的手段之一。例如，于成龙等人通过研究自愈过程中的自愈面积、自愈能量和击穿电压的关联性，得出电压幅值和电压反峰比对电容器的寿命影响程度并归纳出寿命的经验公式[41]。李志元等人通过图像识别技术提取大量加速老化后自愈点的形貌，建立了

直流作用下自愈面积和自愈分布模型，结果表明自愈面积和自愈的频次共同决定了电容器的寿命[42]。

总结来看，针对金属化薄膜电容器中的金属电极，其自愈性能的理论与模型研究已经相对完善。针对特定工作环境，不同参数的电容器，自愈性能变化规律比较依赖于大量实验总结而出的经验公式。关于金属化薄膜电容器自愈特性的相关研究确定了自愈性能的研究方法，为后续柔性换能器件的研究奠定了基础，并且为提高自愈性能提供了广阔的思路。

2 基于 EAP 的能量转换器件

基于 EAP 的能量转换装置，如 DEA 与 DEG 同样需要有一定的自愈性。一方面避免单次电击穿对系统的破坏，延长使用寿命；另一方面为了获得更大的介电强度，提高能量的转化效率。而在此类装置自愈性能研究之初，部分学者沿用并参考了上述金属化薄膜电容器的结构，同样采用了金属电极来实现自愈，重点关注如何提升金属电极形变能力的问题；部分学者仍继续采用弹性体常用的碳基电极或者高分子聚合物电极，通过选用不同的电极材料与弹性体材料的组合来使得器件拥有自愈性能。但使用不同电极材料时，器件的自愈过程和原理会有些许不同。

2.1 金属电极

利用金属电极在电弧中的自清除可解决基于介电弹性体器件的可靠性问题，当缺陷通过自愈被隔离后，器件的击穿极限有所提高。在对样品进行预处理后，电击穿的改善高达 42%[43]。自愈以及预处理后的介电弹性体致动器不仅表现出了更大的介电强度，还有更大的阻塞力和自由位移[44]。一般而言，介电弹性体的材料大多数都以聚二甲基硅氧烷等硅胶和其改性材料为基础，电介质材料含有丰富的氧元素。而为了满足 EAP 拉伸的需求，金属薄膜电极的厚度通常都较小。在真实 DEA 或者 DEG 器件中，多层结构也类似于金属化薄膜电容器的绕组结构，满足了自愈过程中的压力条件。由 1.2 节总结的影响因素可以推测，即使在介电弹性体基底上，金属电极也能通过蒸发完成器件的自愈。唯一不同的是，想要在介电弹性体致动器或者介电弹性体发电机运行状态中直接应用金属薄膜电极仍然有非常大的挑战。亟待解决的问题就是如何使得金属电极满足弹性体越来越高的循环形变的需求，例如双轴拉伸，弯曲甚至折叠等情况。

就平面薄膜金属电极而言，采用无电沉积技术(electroless deposition, ELD)制成的银电极，可以获得高达 50%的面应变(见图 6)[45]。这种 ELD 银电极可以完成自愈，并且在 33%的单轴应变下保持导电。然而，随着介电弹性体致动器的发展，电极材料的应变需求也在增加。

值得一提的是，弹性体基底上的金属薄膜已被证明是一种可靠且可以具有更好拉伸性能的电极。但它需要满足两个条件：一是薄膜需要具备一定的微观结构，二是基底必须是可拉伸的[46]。这种微观结构可以是波浪形、锯齿形，甚至是各种裂纹状，通过在拉伸中产生偏转或扭转使金属薄膜脱离一个平面，达到金属薄膜在平面内的拉伸的目的。Ron Pelrine 等人在弹性体聚合物上形成锯齿形金线，使器件应变超过 30% 。此外，该电极结构分别使用极高和极低电导率的电极以此来限制泄漏电流，从而提高自愈的可靠性和稳定性(见图 7)[47]。但大面积低电导率电极的引入增加了能量转换过程中损耗。与锯齿状电极类似的是蛇形图案电极(见图 8)，它可以使弹性体上的金属线在平面内拉伸 50%~100%[48-49]。虽然通过锯齿形或蛇形的结构可以提升金属电极的拉伸能力，但作为电容器的电极而言，电极覆盖面积是一个重要的指标，它关系着能量转换的效率。蛇形或锯齿状电极线具有极小的电极覆盖面积，所以其不适用于大型发电装置之中。

采用波纹银薄膜电极的设计可以达到 80% 的线性应变[50-51]。由于波纹金属电极具有较大的覆盖面积且具有自清除的能力，因此更适合于大规模发电装置。然而，波纹电极的限制是只能在一个方向上实现单轴拉伸。在波纹电极的基础上，如果在制作过程中采用双轴拉伸，如图 9 所示，电极将获得更大的双轴拉伸能力，形成皱褶电极。褶皱银薄膜电极的径向拉伸应变可达 110%以上。当发生电击

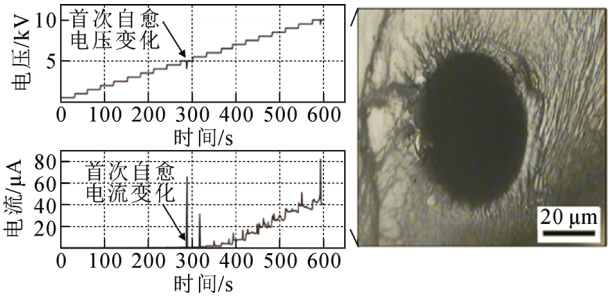


图 6 ELD 银电极的自愈现象[45]

Fig.6 Self-clearing phenomena of ELD silver electrode

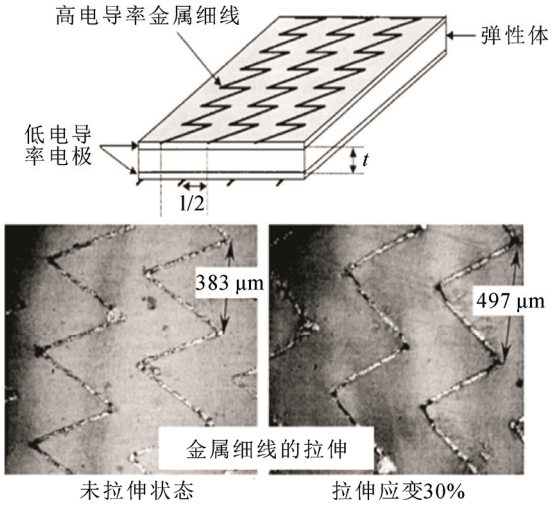


图 7　高/低电导率结构电极及锯齿状金属电极拉伸性能[47]

Fig.7　High/low conductivity structure electrodes and tensile properties of serrated metal electrodes

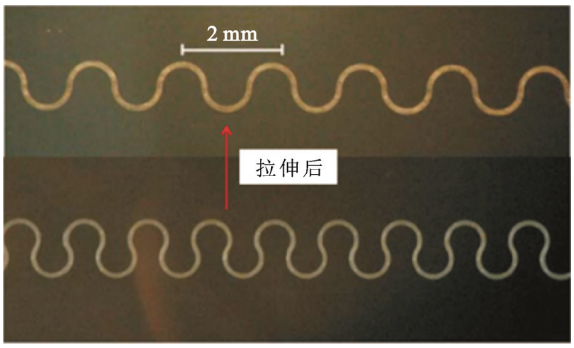
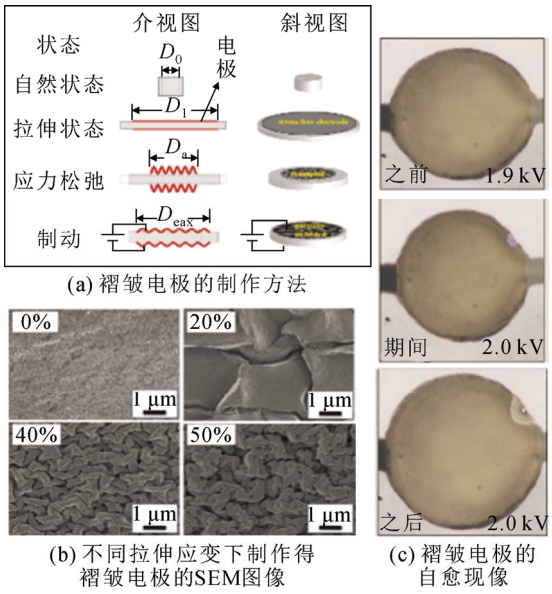


图 8　蛇形金属电极的拉伸[48]

Fig.8　Stretching of snake shaped electrodes

穿时，击穿点周围的银被氧化，从而完成自愈过程，使系统恢复工作状态[52]。当金属层厚度极小时，由于金属的固有压缩性质，在 EAP 材料上金属电极会自然形成褶皱电极。对于介电材料极薄的弹性体换能器，工作电压可以很低，这种褶皱电极在 10%应变之内具有非常良好的拉伸性质[53]。

目前，金属电极的采用普遍使得弹性体器件具有优异的自愈性能，在一定条件下也能具有一定的形变能力。但这类金属电极结构加工过程通常需要光刻、电子束沉积、反应离子刻蚀等微加工手段，操作复杂，成本高昂，不宜于大规模应用。且由于金属本身的性质，只能承受一定程度的机械应力，当其在受到动态循环应力的作用时会出现开裂、脱落现象，在微观缺陷处产生应力集中，最后疲劳失效使之失去自愈性能甚至导电性能。比如 Jason 小组对沉积在柔性基底上的铜导线进行多次数、多角



(a) 褶皱电极的制作方法

(b) 不同拉伸应变下制作得褶皱电极的SEM图像

(c) 褶皱电极的自愈现象

图 9　褶皱电极的制作方法、SEM 图像、自愈现象[52]

Fig.9　Creation method, SEM Images, and self-clearing phenomenon of crumpled electrodes

度挤压弯曲后，电导率下降 40% [54]。采用纳米尺度的金属线和液体金属也可以显著提高金属的形变能力和抗疲劳能力。Chen 等人研究的纳米银线(silver nano wire, AgNW)不仅具有高电导率，在经过 4000 次弯折后，电导率几乎没有变化[55]。Bekim Osmani 将三甲基硅氧烷作为分子粘合剂应用于溅射金电极和氧等离子体活化的聚二甲基硅氧烷(polydimethylsiloxane, PDMS)表面之间。在机械应变下，金薄膜电极与 PDMS 的附着力显著提高，裂纹的形成减少，这是一种很有前途的在 PDMS 基底上制作金属电极的方法[56]。目前，关于金属柔性电极研究也已发展到纳米银与碳材料复合，电极的拉伸性能，抗疲劳性能得到了极大地增强，但其是否还能使得器件具有自愈功能还尚不明确[57-58]。

表 1 总结了各种类型应用于 EAP 材料的金属电极的优势和局限性。不难发现，随着工艺的发展，金属电极的拉伸性能也日渐提升，已基本能满足 EAP 材料拉伸的需求。但是不同于金属化薄膜电容器，介电弹性体器件面对了复杂的应用环境。除了金属电极的形变能力，金属电极的机械疲劳也是阻碍其实际应用的一大挑战，关于疲劳后的自愈特性研究也鲜有关注。

2.2　碳基电极

碳材料是 DEA 应用中最广泛使用的电极材料。与金属电极相比，碳基电极具有更好的拉伸性能[59]。

目前，应用于弹性体上的碳电极主要有：以炭黑为基体的各类材料，主要包括油脂类电极、固体粉末类电极、导电橡胶电极[60]，以及石墨烯、碳纳米管等。目前，对碳电极的研究主要集中在材料的选择上，影响自愈性能的理论和因素尚未得到系统的研究。

2.2.1 电介质材料

迄今为止，不少碳电极的自清除现象被发现，然而关于其原因和机理没有一个统一的定论。Simon J 观察到[61]，用具有高有机含量的基底构建的致动器能够在故障后进行自我修复(自愈)，并恢复性能，然而使用 Elastosil 和 VHB 两种型号的基底在相同的电极材料(炭黑粉末)的情况下，并且没有展现出自愈行为。并且 Yauhen Sheima 用炭黑粉末电极在相同的基底上再一次观测到自愈，验证了 Simon J 的结论[62]。Opris 等人观察到硅/石墨烯复合结构的自愈现象，这在炭黑电极和非交联石墨烯纳米片电极中没有被发现。结果表明，在击穿过程中，部分电极和电介质材料被烧毁。击穿前后电极表面的能谱分析表明，击穿后的表面比完整的电极表面含有更多的氧元素和更少的碳残留[63]。油脂电极是与 PDMS 混合的炭黑或悬浮在硅油上。Kinoshita 将科琴黑(ketjen black, KB)与橡胶混合制成柔性橡胶电极，其中 KB 是一种由特殊工艺制成的炭黑，其导电性比普通炭黑更好[64]；它们都是柔性的，不会阻碍弹性体的变形，与基底 VHB 组成的 DEA 并没有表现出自愈性能。但同样使用油脂电极，当介质材料是浸满硅油的硅橡胶海绵，自愈现象就可发生[65]。学者们认为碳电极的降解或燃烧是自愈的原因，电介质材料是影响这一过程的主要因素。

2.2.2 电极材料

Gih Keong Lau 等人报道了一种使用木炭粉末作为介电弹性体的电极实现了自愈，如图 10 所示。与石墨相比，木炭更容易吸收能量并燃烧，这也是木炭完成自清除的原因，并且器件由于自愈特性会产生较大的致动应力[66]。

SWCNT 由于其高机械柔顺性、高导电性、高稳定性、易于加工以及可图案化的特点，已经成为一种性能优异的电极[67-70]。Yuan 已经验证了 SWCNT 电极在 VHB 基底上的自愈性能，与碳脂电极相比，喷涂而成的 SWCNT 电极仅有 30 nm 厚且使 DEA 具有卓越的自愈性能[71]。在发生电击穿之后，SWCNT 电极能够自清除并使 DEA 完成接下来的动作。具体原因尚未有权威的解释，仅有报道发现 SWCNT 甚至能在闪光灯下发生爆燃的现象[72]。虽然多壁碳纳米管(multi walled carbon nanotube, MWCNT)在结构上与 SWCNT 相似，但自愈性能却相差巨大。在 Gih Keong Lau 的研究中，使用柔性 MWCNT 电极的 DEA 没有显示出自愈性能[73]。然而在 Gabor Kovacs 的研究中使用喷墨打印而制成的薄 MWCNT 电极在大击穿电压下显示出了自愈性能，如图 11 所示[74]。但由于两次实验使用的弹性体材料不同，所以很难判断出，究竟是否是由于电极厚度或者电压大小造成自愈结果不同。

但由此可以推测的是，碳纳米管因其特殊的管状结构，使得容易爆燃，少量的碳纳米管在大击穿电压的作用下产生瞬间的燃烧，达到了自愈的目的，而 MWCNT 由于管壁更厚，条件更为苛刻，可能需要更大的能量注入。

以上在碳基电极上的实验结果为寻找性能更好的材料以及解释自愈的原因提供了一定的指导。

表 1 应用于 EAP 材料金属电极的性能

Table 1 Performance of metal electrodes applied to EAP materials

电极类型	优势	局限
薄膜电极	制备工艺简单 电极覆盖面极广 高导电性能	拉伸性能有限(33%应变)
线性电极(锯齿状，蛇形等)	较好的拉伸性能 (30%~100%应变)	复杂的制备工艺 电极覆盖面积小 仅限单轴拉伸
波浪形电极	电极覆盖面极广 优异的拉伸性能 (80%应变)	仅限单轴拉伸 电极易脱落
褶皱电极	电极覆盖面极广 较好的拉伸性能 双轴拉伸 (110%面应变)	较为复杂的制备工艺 电极易脱落
金属纳米线	抗机械疲劳 高透光性	自愈性能未知 成本高昂

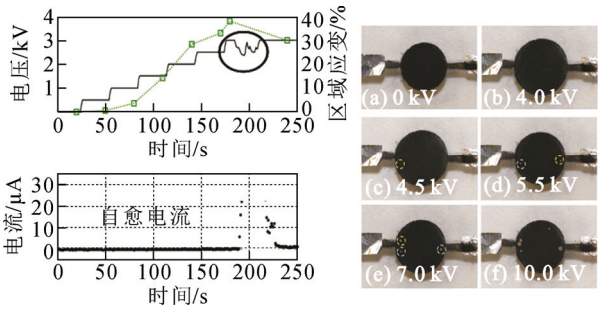


图 10 木炭电极的自愈现象[66]

Fig.10 Self-clearing phenomenon of charcoal electrodes

结果都表明，碳电极的自清除过程与氧气、燃烧、降解密切相关，这几乎已经达成了普遍共识。电介质材料的性质和电极材料的类型都将对器件能否完成自愈起决定性作用。

2.2.3　堆叠结构中的自愈

由于对涉及碳电极的器件自愈过程的研究并没有很深入，大量的研究仅停留在寻找其他的碳基电极，缺乏对自愈过程中的碳电极物化变化的认识。因此，碳电极的自清除还存在着许多问题与挑战亟待解决。在实际的工业应用中，对于 DEA 和 DEG 而言，为了尽可能提高能量转换的效率，多层堆叠结构的使用是必不可少的。然而在多层介质中，器件自愈特性明显不如单层介质。综合来看 SWCNT 电极拥有非常优异的导电性，柔性和较为稳定的特性，大量的研究围绕其展开。Songwen Jiang 利用极薄的 SWCNT 电极研究了多层堆叠结构器件的自愈性能，实现了多层堆叠结构中使用 SWCNT 电极后自愈过程的可观察性和可控性[75]。但在高电场下纳米管的尖锐尖端将在引发放电[71]，造成这种问题的根本原因也可能是多层堆叠结构中，碳电极不完全清除使得更容易引发放电。为了解决这个问题，Pei 的研究已经报道了两种方案如图 12 所示。图 12(a)与绝缘油结合的 SWCNT 电极[76]。这种复合电极利用了极薄的 SWCNT 电极层实现了自愈，并利用绝缘油抑制了后续的放电。然而电极的厚度仅有 25~50 nm，这极大增加了电极制作的难度。图 12(b)由超薄 SWCNT 电极层和水性聚氨酯(water polyurethane, WPU)薄层组成的互穿双层柔性电极[77]。他们已经证明，使用这些结构不仅可以避免后续放电，还可以避免由厚度不均匀和气孔引起的电晕放电，提高自愈的稳定性。Dorina Opris 将石墨烯纳米粒子与 PDMS 混合得到导电硅氧烷复合柔性电极，在堆叠结构中也观测到了一次自愈现象[78]。在他们的实验中，电极的厚度甚至可以达到微米级别。由此看来，使用碳基电极后自愈的条件也可能随着实验环境的不同而变化。但总而言之，想要在堆叠结构中实现自愈功能，自愈的条件会更加苛刻。

表 2 总结了不同弹性体材料上不同种类碳电极的自愈情况。可以看出碳电极的自愈主要分为两种思路：一种是碳电极依靠本身的燃烧或者降解，此类自愈与弹性体的性质和电极的性质息息相关；另一种则是依靠绝缘油等绝缘物质在击穿之后能够迅速填满击穿区域达到自愈的目的。使用碳基电极的

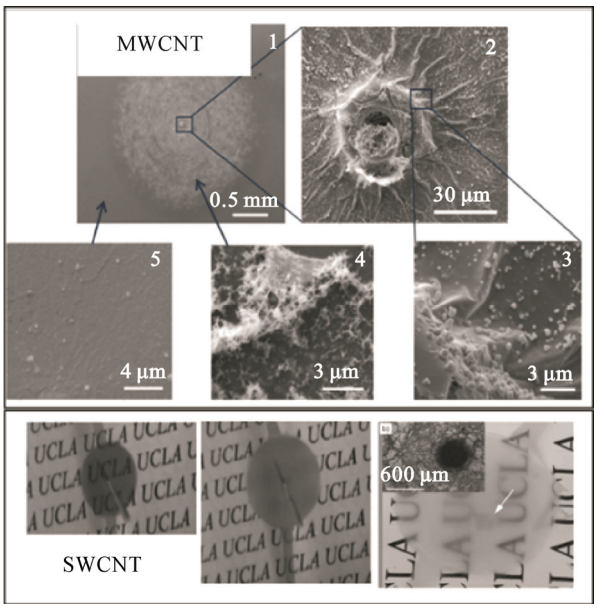
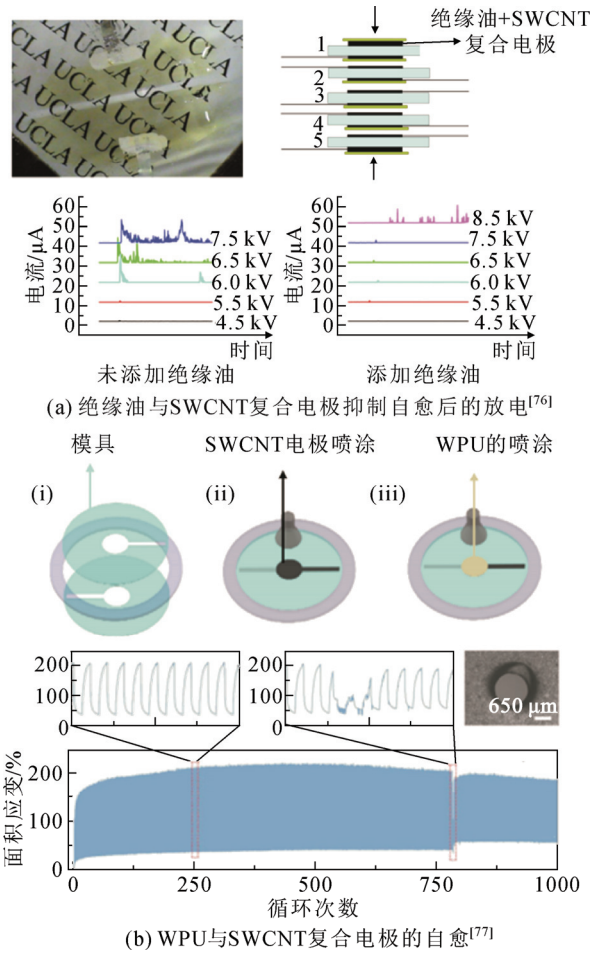


图 11　MWCNT[74]与 SWCNT[71]自愈

Fig.11　Self-clearing phenomenon of MWCNT and SWCNT electrodes respectively



(a) 绝缘油与SWCNT复合电极抑制自愈后的放电[76]

(b) WPU与SWCNT复合电极的自愈[77]

图 12　堆叠结构中 SWCNT 电极的改进措施

Fig.12　Improvement measures for SWCNT electrodes self-clearing in stacked structures

介电弹性体器件的自愈大多处于功能验证阶段，尚未实现工程应用。最大的难题在于堆叠结构中的自愈功能的实现，虽然发现了许多拥有潜力的碳电极，想要找到一种最优的碳电极与弹性体的组合犹如大海捞针。主要的问题就是未从根本上解决技术的局限性，缺乏对碳电极的自愈理论和影响因素深入的研究。因此寻找影响自愈的关键因素，并借此提高堆叠结构器件的自愈性能是未来研究亟须解决的问题之一。

2.3 高分子聚合物电极

高分子聚合物由于分子间作用力较弱，并且长线性链的性质而使得它们具有固有的柔性。一些导电聚合物，如聚苯胺、聚吡咯、聚酰亚胺等，已被广泛用于各种电池储能系统中[79-82]。然而制备过程中需要使用各种导电添加剂，这些材料无形中会影响电极的各项性能。并且使得柔性电极的柔韧性主要归功于粘结剂的使用，而不是聚合物本身的柔性。利用高分子聚合物与盐水制成的水凝胶是一种透明的离子导体，这种电极能在电致形变中达到 167%的形变率[83]。导电水凝胶因为其优异形变能力和高透明度，能够在柔性发光电子器件中具有较好的应用前景。但少有学者关注介电弹性体装置使用此类电极后的自愈性能。目前，仅有聚苯胺纳米纤维电极被发现了使 DEA 拥有一定的自愈特性[84]。

2.4 金属电极与碳电极自愈特点对比分析

无论是金属还是碳都是有潜力的能够实现自愈功能的电极材料，为此对这两类电极材料做了对比分析，其总结对比如表 3 所示。

金属电极与碳电极的自愈过程有着许多相似之处。比如他们都利用到了焦耳热效应，并且电极厚度，击穿电压的大小都影响着自愈的性能甚至是自愈的成功率。然而，涂覆碳电极的器件自愈的条件似乎更加苛刻，由 1.1 节我们注意到在金属电极中，自愈失败的原因之一就是石墨在击穿处的积累。对于碳电极而言，相比于金属电极自愈更难实现，一旦电极燃烧或者分解不完全，自愈就有很大概率失败。再考虑到碳材料例如炭黑、石墨等都相对稳定且难以分解。类似于金属化薄膜电容器中，高含氧的介质材料有助于自愈，想要完成碳电极的清除也需要更多的氧气或者氧元素的存在帮助其燃烧或者氧化。这也解释了为何堆叠结构中自愈性能下降尤为严重，因为堆叠结构是一个缺氧环境。对于氧元素更强的依赖性可能是碳电极区别于金属电极的蒸发自愈最为明显的一点。

表 2 应用于不同 EAP 材料碳电极的自愈性能

Table 2 Self-clearing performance of carbon electrodes applied to different EAP materials

碳电极	弹性体材料	自愈	文献
炭黑	极性腈基功能化聚甲基乙烯硅氧烷	成功	[61], [62]
炭黑	Elastosil——德国瓦克公司生产的商业硅胶	失败	[61]
炭黑	VHB——由 3M 公司生产的商业用丙烯酸泡沫胶	失败	[61]
炭黑(油脂类电极)	普通介电弹性体	失败	[64]
炭黑(油脂类电极)	浸满硅油的硅橡胶海绵	成功	[65]
木炭	VHB——由 3M 公司生产的商业用丙烯酸泡沫胶	成功	[66]
SWCNT	VHB——由 3M 公司生产的商业用丙烯酸泡沫胶	成功	[71]
SWCNT+绝缘油	VHB——由 3M 公司生产的商业用丙烯酸泡沫胶	成功	[76]
SWCNT+WPU	VHB——由 3M 公司生产的商业用丙烯酸泡沫胶	成功	[77]
MWCNT	VHB——由 3M 公司生产的商业用丙烯酸泡沫胶	失败	[73]
MWCNT	两种聚二甲基硅氧烷(PDMS)1:1 复合	成功	[74]
石墨烯纳米片	由 Neukasil 公司生产的商业聚二甲基硅氧烷(PDMS)	失败	[63]
石墨烯/硅复合材料	由 Neukasil 公司生产的商业聚二甲基硅氧烷(PDMS)	成功	[63]
石墨烯/硅复合材料	两种聚二甲基硅氧烷(PDMS)1:1 复合	成功	[61]

表 3 金属电极与碳电极自愈过程中特点分析

Table 3 Analysis of self-clearing characteristics of metal and carbon electrodes

项目	金属电极	碳电极
自愈的原理	焦耳热效应导致金属蒸发，并形成等离子体，随着电极的清除电弧熄灭	焦耳热导致电极燃烧分解，随着电极的清除电弧熄灭
自愈失败原因	1.碳元素在击穿区域的沉积；2.击穿电压或者压强太大造成连续击穿	击穿区域碳燃烧不彻底或无法被清除
自愈的条件	1.产生的热量足以使的金属蒸发；2.含碳少的电介质材料	1.极薄的电极； 2.单层介质； 3.较高的击穿电压； 4.含氧量高的弹性体材料
主要影响因素	1.电极厚度；2.击穿电压； 3.层间压强；4.电介质材料	1.电极厚度；2.击穿电压； 3.电介质材料所含氧元素；4.电极材料是否易被分解或燃烧；5.堆叠结构
局限性	拉伸性能有限且容易疲劳失效	自愈条件苛刻且缺乏相关理论

3 结论

本文综述了两类应用于储能器件中的电极系

统的自愈性能。金属电极在金属化薄膜电容器中具有优异的自愈性能且理论相对成熟。其自愈主要依靠焦耳热效应，电容器介电材料、电极材料、工作环境共同影响着自愈性能。更优异的自愈性能意味着更长的电容器储能服役寿命。但金属想要突破其本身柔性的局限性还需要材料和结构上的突破，才能在 EAP 换能器件中得以应用。如何提高其拉伸性能是一个关键问题，并逐渐成为一个日益发展的研究领域。在寻找碳基电极的过程中，SWCNT 电极是应用于大形变应用环境下储能器件中最有潜力的电极。各种复合材料或与碳纳米管的复合结构被用来提高自愈性能。然而，不同碳基电极的自愈机制和影响因素尚不清楚。而对于高分子聚合物电极而言，仅有一种电极被发现使器件展现出了自愈特性，想要寻找其他聚合物电极材料，可以借鉴金属与碳基电极的经验。从综合的角度来看，针对 EAP 换能器件，未来几个可能的研究方向为：

1）在使用金属电极的情况下，使金属获得更大的形变能力和抗疲劳性能，并重点关注金属在不同形式的机械疲劳后对器件自愈性能的影响。

2）对碳基电极的自愈机制的理解有待完善。适当了解自愈过程中从电极燃烧到电弧熄灭的物理和化学变化。并且优化电极结构是提高性能的有效途径，除电极类型外，电极的各种参数对自愈也有很大的影响。因此对于碳电极而言，效仿金属电极研究思路，根据不同工作环境调整电极参数或制作不同的电极图案也是值得研究的方向之一。

3）在所有现有的材料系统中，寻找价格更低、自愈性能更稳定的可替代材料也是一个值得研究的领域。

总的来说，自 20 世纪 70 年代以来，对自愈的理解有了很大的发展，其应用范围从金属化薄膜电容器到 EAP 材料。无论对于传统电容器还是介电弹性体而言，通过自愈实现更高的可靠性是十分有意义的。与传统的金属化薄膜电容器相比，EAP 的大应变要求以及如何在工业产品中实现自愈都是巨大的挑战，探索碳基电极的自清除机制和条件是一个值得研究的领域，这将为现有材料的优化提供理论依据。此外，在工业应用中稳定实现碳基电极的自清除是未来的目标。进行基于碳电极的自愈过程的热力学分析和关注器件在特殊条件下的自愈特性也十分必要。

参考文献　References

[1] PELRINE R, KORNBLUH R, PEI Q B, et al. High-speed electrically actuated elastomers with strain greater than 100%[J]. Science, 2000, 287(5454): 836-839.

[2] PEI Q B, ROSENTHAL M, STANFORD S, et al. Multiple-degrees-of-freedom electroelastomer roll actuators[J]. Smart Materials and Structures, 2004, 13(5): N86-N92.

[3] CHUC N H, VUONG N H L, KIM D S, et al. Design and control of a multi-jointed robot finger driven by an artificial muscle actuator[J]. Advanced Robotics, 2012, 24(14): 1983-2003.

[4] MAAS J, GRAF C. Dielectric elastomers for hydro power harvesting[J]. Smart Materials and Structures, 2012, 21(6): 064006.

[5] VERTECHY R, ROSATI G P P, FONTANA M. Reduced model and application of inflating circular diaphragm dielectric elastomer generators for wave energy harvesting[J]. Journal of Vibration and Acoustics, 2015, 137(1): 011004.

[6] PLANTE J S, DUBOWSKY S. Large-scale failure modes of dielectric elastomer actuators[J]. International Journal of Solids and Structures, 2006, 43(25/26): 7727-7751.

[7] KORNBLUH R, WONG-FOY A, PELRINE R, et al. Long-lifetime all-polymer artificial muscle transducers[J]. MRS Online Proceedings Library, 2010, 1271(1): 301.

[8] LIU Y M, REN K L, HOFMANN H F, et al. Investigation of electrostrictive polymers for energy harvesting[J]. IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control, 2005, 52(12): 2411-2417.

[9] 钟林威，王永泉，陈花玲. 基于介电弹性软体材料的能量收集：现状、趋势与挑战[J]. 中国科学：技术科学，2016，46(10)：987-1004. ZHONG Linwei, WANG Yongquan, CHEN Hualing. Energy harvesting based on soft material of dielectric elastomers: Status, trends and challenges[J]. SCIENTIA SINICA Technologica, 2016, 46(10): 987-1004.

[10] GRAZ I M, COTTON D P J, LACOUR S P. Extended cyclic uniaxial loading of stretchable gold thin-films on elastomeric substrates[J]. Applied Physics Letters, 2009, 94(7): 071902.

[11] KLEIN N. The mechanism of self healing electrical breakdown in MOS structures[C]//1965 International Electron Devices Meeting. Washington, USA: IEEE, 1965: 58.

[12] HEYWANG H. Physical and chemical processes in self-curing plastic capacitors[J]. Colloid and Polymer Science, 1976, 254(12): 138-147.

[13] REED C W, CICHANOWSKIL S W. The fundamentals of aging in HV polymer-film capacitors[J]. IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, 1994, 1(5): 904-922.

[14] KAMMERMAIER J. Chemical prpcesses during electrical breakdown in an organic dielectric with evaporated thin electrodes[J]. IEEE Transactions on Electrical Insulation, 1987, 22(2): 145-149.

[15] TORTAI J H, BONIFACI N, DENAT A, et al. Diagnostic of the self-healing of metallized polypropylene film by modeling of the broadening emission lines of aluminum emitted by plasma discharge[J]. Journal of Applied Physics, 2005, 97(5): 053304.

[16] TORTAI J H, DENAT A, BONIFACI N. Self-healing of capacitors with metallized film technology:: experimental observations and theoretical model[J]. Journal of Electrostatics, 2001, 53(2): 159-169.

[17] BEL'KO V O, BONDARENKO P N, EMEL'YANOV O A. The dynamic characteristics of self-healing processes in metal film capacitors[J]. Russian Electrical Engineering, 2007, 78(3): 138-142.

[18] QIN S S, MA S L, BOGGS S A. The mechanism of clearing in metalized film capacitors[C] // 2012 IEEE International Symposium on

Electrical Insulation. San Juan, USA: IEEE, 2012: 592-595.

[19] XIE G Y, FAN D L, WANG H C, et al. Strong reliable electrostatic actuation based on self-clearing using a thin conductive layer[J]. Soft Robotics, 2023, 10(4): 36854131.

[20] 王永州. 金属化薄膜电容器自愈测试方法[J]. 电子世界，2016(13)：118-119.
WANG Yongzhou. Self-healing testing method for metallized thin film capacitors[J]. Electronics World, 2016(13): 118-119.

[21] 王意飞，张海龙，胡今昶，等. 基于声压测试的方法研究金属化薄膜电容器元件自愈[J]. 电力电容器与无功补偿，2021，42(6)：88-93.
WANG Yifei, ZHANG Hailong, HU Jinchang, et al. Study on self-healing of metallized film capacitor element based on sound pressure test method[J]. Power Capacitor & Reactive Power Compensation, 2021, 42(6): 88-93.

[22] YAN F, WANG Z J, YIN T. Research on the self-healing failure characteristics and its protection methods of high-voltage self-healing capacitors[J]. The Journal of Engineering, 2019(16): 3371-3377.

[23] WALGENWITZ B, TORTAI J H, BONIFACI N, et al. Self-healing of metallized polymer films of different nature[C]//Proceedings of the 2004 IEEE International Conference on Solid Dielectrics. Toulouse, France: IEEE, 2004: 29-32.

[24] CALIARI L, BETTACCHI P, BONI E. KEMET film capacitors for high temperature, high voltage and high current[C]//Proceedings - CARTS International 2013: The 33rd Symposium for Passive Electronic Components. 2013: 101-116.

[25] PFEIFFENBERGER N, MILANDOU F, NIEMEYER M, et al. High temperature dielectric polyetherimide film development[J]. IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, 2018, 25(1): 120-126.

[26] 刘泳斌，张　阳，高景晖，等. 聚偏氟乙烯基金属化膜电容器自愈特性的研究[J]. 电力电容器与无功补偿，2020，41(4)：37-41，46.
LIU Yongbin, ZHANG Yang, GAO Jinghui, et al. Study on self-healing of poly vinylidene-fluoride-based metallized film capacitors[J]. Power Capacitor & Reactive Power Compensation, 2020, 41(4): 37-41, 46.

[27] SHAW D G, CICHANOWSKI S W, YIALIZIS A. A changing capacitor technology - failure mechanisms and design innovations[J]. IEEE Transactions on Electrical Insulation, 1981, EI-16(5): 399-413.

[28] RABUFFI M, PICCI G. Status quo and future prospects for metallized polypropylene energy storage capacitors[J]. IEEE Transactions on Plasma Science, 2002, 30(5): 1939-1942.

[29] HU Z, MU F. Self-healing mechanism and improvement of reliability of metallized film capacitors[J]. Electronic Components & Materials, 1998, 17(4): 17-18.

[30] CHEN Y H, LI H, LIN F C, et al. Study on self-healing and lifetime characteristics of metallized-film capacitor under high electric field[J]. IEEE Transactions on Plasma Science, 2012, 40(8): 2014-2019.

[31] 李　化，章　妙，林福昌，等. 金属化膜电容器自愈理论及规律研究[J]. 电工技术学报，2012，27(9)：218-223，230.
LI Hua, ZHANG Miao, LIN Fuchang, et al. Study on theory and influence factors of self-healing in metallized film capacitors[J]. Transactions of China Electrotechnical Society, 2012, 27(9): 218-223, 230.

[32] 许　峰，高　鹏. 金属化安全膜防爆电容器的防爆原理及发展概况[J]. 电力电容器，2006(5)：34-38.
XU Feng, GAO Peng. Principle of explosion proof and general situation of development for metallized safety film explosion proof capacitors[J]. Power Capacitor, 2006(5): 34-38.

[33] 刘学敏，厉海涛，张　威，等. 金属化膜电容器 Gamma 过程性能退化建模的自助法[J]. 高电压技术，2011，37(1)：198-202.
LIU Xuemin, LI Haitao, ZHANG Wei, et al. Bootstrap method of metallized film capacitor gamma process degradation modeling[J]. High Voltage Engineering, 2011, 37(1): 198-202.

[34] 徐梦蕾，王召盟，王　荀，等. T 型金属化安全膜电容器温度场仿真[J]. 电力电容器与无功补偿，2018，39(3)：75-81.
XU Menglei, WANG Zhaomeng, WANG Xun, et al. Temperature field simulation of T pattern metallized safety film capacitor[J]. Power Capacitor & Reactive Power Compensation, 2018, 39(3): 75-81.

[35] PENG B, LIN F C, LI H, et al. Calculation of electric field in safety film capacitors[J]. IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, 2009, 16(3): 882-886.

[36] 王　荀，王召盟，徐梦蕾，等. 交流电压条件下温度对金属化膜自愈特性影响规律研究[J]. 电力电容器与无功补偿，2018，39(3)：87-91，95.
WANG Xun, WANG Zhaomeng, XU Menglei, et al. Study on the effect of temperature on self-healing properties of metallized film under AC voltage[J]. Power Capacitor & Reactive Power Compensation, 2018, 39(3): 87-91, 95.

[37] 杜一鸣，潘　亮，祝令瑜，等. 金属化膜电容器交流和直流电压劣化特性分析[J]. 电力工程技术，2020，39(6)：151-158.
DU Yiming, PAN Liang, ZHU Lingyu, et al. AC and DC voltage degradation characteristics of metallized film capacitors[J]. Electric Power Engineering Technology, 2020, 39(6): 151-158.

[38] 王文娟，李　化，李智威，等. 通过电容器层间压强的增强提高电容器寿命[J]. 强激光与粒子束，2014，26(4)：045015.
WANG Wenjuan, LI Hua, LI Zhiwei, et al. Lifetime improvement of metallized film capacitors by inner pressure strengthening[J]. High Power Laser and Particle Beams, 2014, 26(4): 045015.

[39] SARJEANT W J, ZIRNHELD J, MACDOUGALL F W. Capacitors[J]. IEEE Transactions on Plasma Science, 1998, 26(5): 1368-1392.

[40] 熊诗成，鲁军勇，郑宇锋，等. 金属化膜电容器寿命预测方法[J]. 高电压技术，2018，44(7)：2378-2384.
XIONG Shicheng, LU Junyong, ZHENG Yufeng, et al. Lifetime prediction of metallized film capacitor based on particle filter[J]. High Voltage Engineering, 2018, 44(7): 2378-2384.

[41] 于成龙，杜　涛，李　化，等. 基于金属化膜自愈特性的电容器寿命研究[J]. 高压电器，2015，51(4)：124-128.
YU Chenglong, DU Tao, LI Hua, et al. Study on lifetime characteristics of metallized film capacitors based on self-healing property[J]. High Voltage Apparatus, 2015, 51(4): 124-128.

[42] 李志元，王镜然，徐　哲，等. 直流电压作用下金属化膜电容器的自愈特性及寿命预测[J]. 高电压技术，2023，49(7)：2929-2937.
LI Zhiyuan, WANG Jingran, XU Zhe, et al. Self-healing characteristics and life prediction of metallized film capacitor under DC voltage[J]. High Voltage Engineering, 2023, 49(7): 2929-2937.

[43] AHMED S, OUNAIES Z. Self-clearing of metalized electrodes and its impact on electroactive polymer (EAP) based actuators[C]//ASME 2016 Conference on Smart Materials, Adaptive Structures and Intelligent Systems. Stowe, USA: ASME, 2016.

[44] AHMED S, OUNAIES Z, LANAGAN M T. On the impact of self-clearing on electroactive polymer (EAP) actuators[J]. Smart Materials and Structures, 2017, 26(10): 105024.

[45] LOW S H, SHIAU L L, LAU G K. Large actuation and high dielectric strength in metallized dielectric elastomer actuators[J]. Applied Physics Letters, 2012, 100(18): 182901.

[46] LACOUR S P, CHAN D, WAGNER S, et al. Mechanisms of reversible stretchability of thin metal films on elastomeric substrates[J]. Applied Physics Letters, 2006, 88(20): 204103.

[47] PELRINE R, KORNBLUH R, JOSEPH J, et al. High-field deformation of elastomeric dielectrics for actuators[J]. Materials Science and Engineering: C, 2000, 11(2): 89-100.

[48] BROSTEAUX D, AXISA F, GONZALEZ M, et al. Design and fabrication of elastic interconnections for stretchable electronic circuits[J]. IEEE Electron Device Letters, 2007, 28(7): 552-554.

[49] HU X L, KRULL P, DE GRAFF B, et al. Stretchable inorganic-semiconductor electronic systems[J]. Advanced Materials, 2011, 23(26): 2933-2936.

[50] BENSLIMANE M, KIIL H E, TRYSON M J. Electromechanical properties of novel large strain PolyPower film and laminate components for DEAP actuator and sensor applications[C]//Proceedings of the SPIE 7642, Electroactive Polymer Actuators and Devices. San Diego, USA: SPIE, 2010: 579-595.

[51] BENSLIMANE M Y, KIIL H E, TRYSON M J. Dielectric electro-active polymer push actuators: performance and challenges[J]. Polymer International, 2010, 59(3): 415-421.

[52] LOW S H, LAU G K. Bi-axially crumpled silver thin-film electrodes for dielectric elastomer actuators[J]. Smart Materials and Structures, 2014, 23(12): 125021.

[53] OSMANI B, DEYHLE H, TÖPPER T, et al. Gold layers on elastomers near the critical stress regime[J]. Advanced Materials Technologies, 2017, 2(10): 1700105.

[54] JASON N N, SHEN W, CHENG W L. Copper nanowires as conductive ink for low-cost draw-on electronics[J]. ACS Applied Materials & Interfaces, 2015, 7(30): 16760-16766.

[55] GU J H, WANG X L, CHEN H T, et al. Conductivity enhancement of silver nanowire networks via simple electrolyte solution treatment and solvent washing[J]. Nanotechnology, 2018, 29(26): 265703.

[56] OSMANI B, DEYHLE H, WEISS F M, et al. Morphology and conductivity of Au films on polydimethylsiloxane using (3-mercaptopropyl) trimethoxysilane (MPTMS) as an adhesion promoter[C]//Proceedings of the SPIE 9798, Electroactive Polymer Actuators and Devices (EAPAD) 2016. Las Vegas, USA: SPIE, 2016: 979822.

[57] CHUN K Y, OH Y, RHO J, et al. Highly conductive, printable and stretchable composite films of carbon nanotubes and silver[J]. Nature Nanotechnology, 2010, 5(12): 853-857.

[58] LEE J, WOO J Y, KIM J T, et al. Synergistically enhanced stability of highly flexible silver nanowire/carbon nanotube hybrid transparent electrodes by plasmonic welding[J]. ACS Applied Materials & Interfaces, 2014, 6(14): 10974-10980.

[59] 武畏志鹏，邹 华，宁南英，等. 柔性电极材料的国内外研究进展[J]. 功能材料，2021，52(2)：2039-2049.
WU Weizhipeng, ZOU Hua, NING Nanying, et al. Research progress of flexible electrode materials at home and abroad[J]. Journal of Functional Materials, 2021, 52(2): 2039-2049.

[60] 曹建波，任钰雪，鄂世举，等. 介电弹性体驱动器柔性电极技术发展动态[J]. 电子元件与材料，2017，36(7)：9-16.
CAO Jianbo, REN Yuxue, E Shiju, et al. Development trends of flexible electrode technology for dielectric elastomer actuator[J]. Electronic Components and Materials, 2017, 36(7): 9-16.

[61] DÜNKI S J, KO Y S, NÜESCH F A, et al. Self-repairable, high permittivity dielectric elastomers with large actuation strains at low electric fields[J]. Advanced Functional Materials, 2015, 25(16): 2467-2475.

[62] SHEIMA Y, CASPARI P, OPRIS D M. Artificial muscles: dielectric elastomers responsive to low voltages[J]. Macromolecular Rapid Communications, 2019, 40(16): 1900205.

[63] MICHEL S, CHU B T T, GRIMM S, et al. Self-healing electrodes for dielectric elastomer actuators[J]. Journal of Materials Chemistry, 2012, 22(38): 20736-20741.

[64] KINOSHITA Y S, TSUCHITANI S, KIKUCHI K. Development of flexible rubber electrode for dielectric elastomer actuator[C]//2010 IEEE/SICE International Symposium on System Integration. Sendai, Japan: IEEE, 2010: 282-286.

[65] HUNT S, MCKAY T G, ANDERSON I A. A self-healing dielectric elastomer actuator[J]. Applied Physics Letters, 2014, 104(11): 113701.

[66] LAU G K, CHUA S L, SHIAU L L, et al. Self-clearing dielectric elastomer actuators using charcoal-powder electrodes[C]//Proceedings of the SPIE 8340, Electroactive Polymer Actuators and Devices (EAPAD) 2012. San Diego, USA: SPIE, 2012: 834016.

[67] BROCHU P, PEI Q B. Advances in dielectric elastomers for actuators and artificial muscles[J]. Macromolecular Rapid Communications, 2010, 31(1): 10-36.

[68] QIU Y, ZHANG E, PLAMTHOTTAM R, et al. Dielectric elastomer artificial muscle: materials innovations and device explorations[J]. Accounts of Chemical Research, 2019, 52(2): 316-325.

[69] BEECHER P, SERVATI P, ROZHIN A, et al. Ink-jet printing of carbon nanotube thin film transistors[J]. Journal of Applied Physics, 2007, 102(4): 043710.

[70] TORTORICH R P, CHOI J W. Inkjet printing of carbon nanotubes[J]. Nanomaterials, 2013, 3(3): 453-468.

[71] YUAN W, HU L B, YU Z B, et al. Fault-tolerant dielectric elastomer actuators using single-walled carbon nanotube electrodes[J]. Advanced Materials, 2008, 20(3): 621-625.

[72] AJAYAN P M, TERRONES M, DE LA GUARDIA A, et al. Nanotubes in a flash-ignition and reconstruction[J]. Science, 2002, 296(5568): 705.

[73] CHUA S L, NEO X H, LAU G K. Multi-walled carbon nanotubes (MWCNT) as compliant electrodes for dielectric elastomer actuators[C]//Proceedings of the SPIE 7976, Electroactive Polymer Actuators and Devices (EAPAD) 2011. San Diego, USA: SPIE, 2011: 79760V.

[74] BAECHLER C, GARDIN S, ABUHIMD H, et al. Inkjet printed multiwall carbon nanotube electrodes for dielectric elastomer actuators[J]. Smart Materials and Structures, 2016, 25(5): 055009.

[75] JIANG S W, TANG C, LIU X J, et al. Long-life-cycle and damage-recovery artificial muscles via controllable and observable self-clearing process[J]. Advanced Engineering Materials, 2022, 24(4): 2101017.

[76] YUAN W, BROCHU P, HA S M, et al. Dielectric oil coated single-walled carbon nanotube electrodes for stable, large-strain actuation with dielectric elastomers[J]. Sensors and Actuators A: Physical, 2009, 155(2): 278-284.

[77] PENG Z H, SHI Y, CHEN N, et al. Stable and high-strain dielectric elastomer actuators based on a carbon nanotube-polymer bilayer electrode[J]. Advanced Functional Materials, 2021, 31(9): 2008321.

[78] DANNER P M, IACOB M, SASSO G, et al. Solvent-free synthesis and processing of conductive elastomer composites for green dielectric elastomer transducers[J]. Macromolecular Rapid Communications, 2022, 43(6): 2100823.

[79] HUANG Y, LI H F, WANG Z F, et al. Nanostructured Polypyrrole as a flexible electrode material of supercapacitor[J]. Nano Energy, 2016, 22: 422-438.

[80] LI P X, SHI E Z, YANG Y B, et al. Carbon nanotube-polypyrrole core-shell sponge and its application as highly compressible supercapacitor electrode[J]. Nano Research, 2014, 7(2): 209-218.

[81] LIN H J, LI L, REN J, et al. Conducting polymer composite film incorporated with aligned carbon nanotubes for transparent, flexible and efficient supercapacitor[J]. Scientific Reports, 2013, 3(1): 1353.
[82] YANG Y, WANG C Y, YUE B B, et al. Electrochemically synthesized polypyrrole/graphene composite film for lithium batteries[J]. Advanced Energy Materials, 2012, 2(2): 266-272.
[83] KEPLINGER C, SUN J Y, FOO C C, et al. Stretchable, transparent, ionic conductors[J]. Science, 2013, 341(6149): 984-987.
[84] LAM T, TRAN H, YUAN W, et al. Polyaniline nanofibers as a novel electrode material for fault-tolerant dielectric elastomer actuators[C]//Proceedings of the SPIE 6927, Electroactive Polymer Actuators and Devices (EAPAD) 2008. San Diego, USA: SPIE, 2008: 69270O.



吴 锴
1969—，男，博士，教授，博导
从事绝缘材料电老化及击穿理论、局部放电检测及内在机理研究和城市能源系统的合理优化的研究工作
E-mail: wukai@xjtu.edu.cn

WU Kai
Ph.D., Professor



徐子航(通信作者)
1997—，男，博士生
主要研究方向为电容器自愈性能与柔性电极
E-mail: xzh987334426@stu.xjtu.edu.cn

XU Zihang
Ph.D. candidate
Corresponding author



张 琛
1997—，女，博士生
主要研究方向为 EAP 材料的空间电荷特性与模拟
E-mail: zhangchen0204@stu.xjtu.edu.cn

ZHANG Chen
Ph.D. candidate



吕泽鹏
1987— ，男，博士，教授，博导
主要研究方向为介电绝缘材料的电荷输运、电流树、局部放电和老化过程
E-mail: lv.zepeng.insu@xjtu.edu.cn

LÜ Zepeng
Ph.D., Professor

收稿日期 2023-09-06 修回日期 2024-03-15 编辑 曹昭君