科学通报 2026 年 第 71 卷 第 15 期: 3498 ~ 3520
评 述
《中国科学》杂志社
SCIENCE CHINA PRESS

柔性复合电介质结构设计与储能优化

王陈[1], 田子悦[2], 刘俊东[3], 赵亮[3], 张帆[3*], 胡海龙[1*]

1. 中南大学航空航天技术研究院, 长沙 410083
2. 中南大学冶金与环境学院, 长沙 410083
3. 中南大学资源加工与生物工程学院, 长沙 410083
* 联系人, E-mail: fan.zhang@csu.edu.cn; hailonghu@csu.edu.cn

2025-11-10 收稿, 2026-02-12 修回, 2026-02-13 接受, 2026-02-14 网络版发表
国家自然科学基金(52402164)和省级大学生创新创业训练计划(S202510533450)资助

摘要 柔性复合介电材料凭借其快速充放电特性、成本效益优势及优异耐疲劳性能, 在航空航天器件及柔性可穿戴电子系统等领域展现出重要应用价值. 然而, 该类材料的储能密度显著低于电池与超级电容器, 这一关键瓶颈制约了电介质电容器的轻量化与微型化进程. 本文首先阐明极化调控与击穿强度的协同优化机制, 继而综述填料调控、界面工程和层级设计的最新进展: (1) 填料体系调控, 深入解析纳米填料含量梯度、维度效应(0维/1维/2维)及定向排列对介电响应与储能特性的构效关系; (2) 界面工程策略, 重点探讨表面改性、交联网络构建及核壳结构设计在界面极化强化与漏电流抑制方面的创新研究; (3) 宏观组装结构, 对比分析双层/三层/多层膜结构的层间耦合效应及其对击穿强度与能量密度的协同增强机制. 此外, 本文探讨了人工智能驱动的材料设计方法在介电储能体系中的突破性潜力, 同时还探讨了目前介电材料规模化制备的最新进展. 针对当前面临的储能性能不佳、人工智能驱动复杂材料的设计、规模化制备工艺等挑战, 提出高性能材料制备工艺革新、人工智能与跨尺度结构设计融合、仿生智能电介质设计等未来发展方向.

关键词 柔性复合电介质, 人工智能, 结构设计, 储能器件, 规模化制备

随着传统能源日益紧缺, 开发高效节能设备成为关键. 柔性复合介电材料虽具备快充、耐用、低成本等优势, 但其较低的储能密度难以满足电子设备轻量化、小型化的发展需求, 因此研发兼具高储能密度、低损耗与优异稳定性的新型柔性电介质已成为该领域的核心挑战.

介电材料体系可以分为陶瓷材料体系和聚合物材料体系. 陶瓷材料本质上是利用极化与去极化的过程实现能量的存储与释放, 因而陶瓷介电材料通常具有高介电常数. 然而陶瓷材料中具有较多的气孔和缺陷, 导致击穿强度较低, 极大地限制了储能性能的优化. 同时, 较差的力学性能和可加工性, 也进一步限制了陶瓷介电材料的广泛应用. 聚合物材料(如聚乙烯(PE)、聚丙烯(PP)、聚酰亚胺(PI)、聚偏氟乙烯(PVDF)、聚醚酰亚胺(PEI)等)的气孔和缺陷极少, 电场分布更加均匀, 同时聚合物通常具有宽带隙, 价带中的电子很难被激发成为自由电子, 电导率极低, 因而聚合物的击穿场强较高. 然而, 因其介电常数并不高, 储能密度的优化也会受到限制. 例如目前商用的双轴拉伸聚丙烯(BOPP), 尽管击穿场强在室温下可以达到730 MV/m, 但是由于介电常数低至2.25, 因而只具有5.3 J/cm^{3}的低储能密度[1], 不足以满足当前的电子和电气应用.

综上所述, 单一材料的电介质难以同时具有高介电常数和高击穿场强. 为了提高储能密度, 研究者们开

引用格式: 王陈, 田子悦, 刘俊东, 等. 柔性复合电介质结构设计与储能优化. 科学通报, 2026, 71: 3498–3520
Wang C, Tian Z, Liu J, et al. Structural design and energy storage optimization of flexible composite dielectrics (in Chinese). Chin Sci Bull, 2026, 71: 3498–3520, doi: 10.1360/CSB-2025-5768

© 2026《中国科学》杂志社

始广泛研究复合介电材料体系. 与陶瓷介电材料的优化更多依赖于元素掺杂不同[2,3], 复合介电材料的结构设计与储能优化更加多样与复杂. 目前大量研究已经证实合理的结构设计, 可以实现柔性复合电介质的储能优化. 本文在简要分析储能优化机制的基础上, 对实现储能优化的结构设计策略进行了归纳和总结, 包括填料调控、界面工程和宏观层级结构设计, 并探讨了目前人工智能AI驱动下介电储能结构设计及优化和介电材料的规模化制备.

1 储能优化机制

介电材料的储能性能从根本上由其本征介电参数决定, 介电常数和击穿强度是最关键的两个指标, 它们共同决定了材料单位体积内存储静电能量的理论上限.

相对介电常数ε_r(后文简称为介电常数)是衡量介电材料在外电场作用下极化能力的物理量, 其物理本质是材料内部正负电荷中心在外电场驱动下发生相对位移(即极化, 包括电子极化、离子极化、取向极化以及界面极化等), 从而在材料表面感应出束缚电荷. 这些束缚电荷会产生一个与外电场相反的感应电场, 导致材料内部的宏观电场强度降低(即介质极化对电场的削弱效应, 其定量关系由电位移D描述). 根据线性介电理论, 电位移D与电场强度E具有如下基本关系:

$$D = \varepsilon_r \varepsilon_0 E, \tag{1}$$

其中, ε_0为真空介电常数. 由式(1)可知, 在相同电场强度E下, 介电常数ε_r越高, 则电位移D越大, 表明材料存储的电荷量越多, 其宏观体现就是可以制造出电容量更大的电容器.

击穿强度(E_b)是材料能承受而不被破坏的最高电场强度, 决定了储能器件的安全工作电压上限. 对于线性电介质, 放电能量密度(U_e)与介电常数和击穿强度具有式(2)所示的关联, 即放电能量密度与介电常数呈线性正比, 与击穿场强呈平方正比.

$$U_e = \frac{1}{2}\varepsilon_r \varepsilon_0 E_b^2. \tag{2}$$

非线性电介质则表现出复杂的极化行为, 其放电能量密度、充电能量密度(U)、能量损耗(U_{loss})及充放电效率(η)需分别通过以下公式计算:

$$U_e = \int_{D_r}^{D_{max}} E\mathrm{d}D, \tag{3}$$

$$U = \int_{0}^{D_{max}} E\mathrm{d}D, \tag{4}$$

$$U_{loss} = U - U_e, \tag{5}$$

$$\eta = \frac{U_e}{U}, \tag{6}$$

其中, D_{max}为最大电位移, D_r为剩余电位移. 由式(3)可知, 非线性电介质的放电能量密度与电场强度和电位移有关, 即与介电常数和击穿强度有关.

综上可知, 无论是线性还是非线性电介质, 储能密度均与介电常数和击穿场强密切相关. 然而, 在实际材料设计中, 介电常数和击穿强度往往存在相互制约的关系. 因此, 实现介电材料储能优化的核心挑战在于: 如何通过合理的结构设计, 协同增强介电常数与击穿强度, 并最大限度地抑制能量损耗.

2 填料调控

填料的性质对复合材料的介电常数和击穿场强有着重要影响. 本文着重从填料的含量、维度和取向三个方向进行论述.

2.1 填料含量调控

填料含量是影响复合材料介电常数和击穿场强的重要因素. 向高击穿强度的聚合物基体中添加高介电常数的无机陶瓷填料, 是提升复合材料储能密度的方法之一. 然而, 复合材料高介电常数的实现, 往往伴随着击穿强度的下降. 这是因为: 一方面, 由于无机填料与有机聚合物的相容性较差, 随着无机填料含量的增加, 其在聚合物内的分散性降低, 容易团聚而形成导电通路, 导致漏电流增大, 击穿强度降低; 另一方面, 聚合物和填料的介电常数相差较大, 使填料颗粒周围的电场远高于平均电场, 随着填料含量的增加, 填料颗粒的间距减小, 该局部电场会越来越集中, 导致击穿强度进一步下降. 因此, 调控好填料的含量尤为重要.

近年来, 填料含量对复合材料储能性能的影响得到广泛研究[4,5]. 例如, Bi等人[6]制备了含有非晶态氧化锌(i-ZnO)的PEI/i-ZnO复合物, 并测试了在200 ℃时的漏电流密度和击穿强度. 由图1(a)和(b)可知, 随着i-ZnO含量的增加, 漏电流密度先下降再上升, 击穿强度先升高再降低. 当i-ZnO含量为3 wt%时, 复合材料的漏电流密度最低, 击穿强度最高(516 MV/m). 这是因为i-ZnO含量过低时, 引入的深陷阱数量有限, 对击穿强度的提升效果不显著; 而若其含量过高, 如图1(c)所示, 纳米颗粒

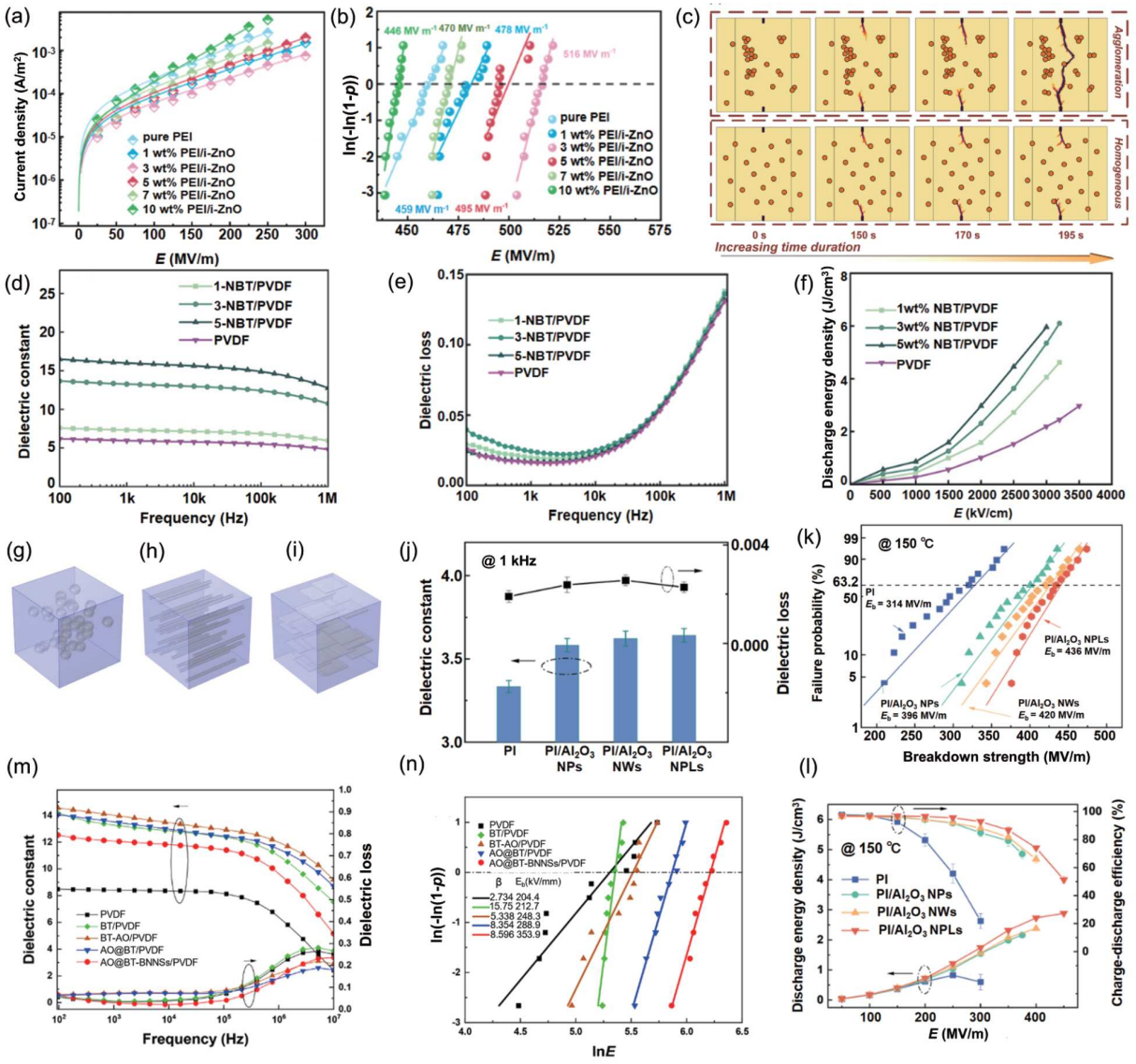


图 1 (网络版彩色)填料调控案例. (a, b) i-ZnO含量对电流密度、击穿强度的影响(Copyright © 2025 Elsevier Ltd.)[6]; (c) 填料的分布对击穿通路的影响[6]; (d~f) NBT含量对介电常数、介电损耗、储能密度的影响[7]; (g~i) 含有5 vol%的Al_2O_3纳米颗粒、Al_2O_3纳米线和Al_2O_3纳米片的PI复合材料示意图(Copyright © 2024, Tsinghua University Press)[11]; (j~l) Al_2O_3的维度对介电常数、介电损耗、击穿强度、储能密度和充放电效率的影响[11]; (m, n) 多维度填料组合对介电常数、介电损耗和击穿强度的影响(Copyright © 2024 American Chemical Society)[12]

Figure 1 (Color online) Case studies on filler regulation. (a, b) Effect of i-ZnO content on current density and breakdown strength (Copyright © 2025 Elsevier Ltd.)[6]; (c) effect of filler distribution on breakdown pathways[6]; (d–f) effect of NBT content on dielectric constant, dielectric loss and energy storage density[7]; (g–i) schematic diagrams of PI composites containing 5 vol% of Al_2O_3 nanoparticles, Al_2O_3 nanowires, and Al_2O_3 nanosheets (Copyright © 2024, Tsinghua University Press)[11]; (j–l) effect of Al_2O_3 dimensionality on dielectric constant, dielectric loss, breakdown strength, energy storage density, and charge-discharge efficiency[11]; (m, n) effect of multi-dimensional filler combinations on dielectric constant, dielectric loss, and breakdown strength (Copyright © 2024 American Chemical Society)[12]

团聚形成缺陷, 使复合材料更易被击穿, 同时漏电流密度也会上升. Mei等人[7]将钛酸铋钠(NBT)微米薄片经过氧化氢处理后与PVDF基体共混, 制备出PVDF-NBT薄膜. 由图1(d)和(e)可知, 当NBT含量较低时, 随着其含量的增加, 薄膜的介电性能有所提高. 由图1(f)的数据可知, 掺杂3 wt% NBT的PVDF-NBT在320 MV/m的电场强度下获得了最佳的储能密度, 达到6.1 J/cm^3.

以上研究表明, 填料的含量对复合材料的介电性能有重要影响. 其中, 较低含量的填料可实现复合材料介电常数和击穿场强的协同提升. 这可以由跳跃传导机制解释: 填料的含量低, 则填料颗粒可在聚合物基体中均匀分散, 电子的跳跃距离就长, 电子隧穿的概率呈

指数下降使电子有效地被束缚在各自的颗粒上，表现为漏电流密度下降, 击穿强度增大.

2.2 填料维度调控

填料的维度也是影响复合材料的介电常数和击穿场强的重要因素之一. 填料的维度包括0维(0D)、1维(1D)和2维(2D). 相比于0D的纳米颗粒, 高长径比的1D管状或线状填料更益于增强复合材料的介电性能[8~10]. 随着研究的发展, 近年来, 具有更高长径比的2D纳米片成为研究的热点. 相比于纳米颗粒和纳米线, 纳米片一方面提供了巨大的界面面积，能最大限度引入界面极化，使介电常数增大; 另一方面，由于其片状形态，电场分布更加均匀, 即使在高负载量下, 也能通过垂直于电场的取向排列, 有效阻断导电通路的形成, 提高复合材料的击穿强度.

如图1(g)~(i)所示, Ai等人[11]对分别含有Al_2O_3纳米颗粒(Al_2O_3 NPs)、Al_2O_3纳米线(Al_2O_3 NWs)和Al_2O_3纳米片(Al_2O_3 NPLs)的PI复合材料进行了实验和理论评估. 由图1(j)~(l)的结果可知, 从零维到二维, 复合材料的介电常数和击穿强度均逐渐增大. 这得益于纳米片和纳米线有较大的长径比并且沿面内方向分散良好. 另外, Al_2O_3 NPLs/PI的介电性能明显高于Al_2O_3 NWs/PI, 这主要是因为: 一方面, Al_2O_3纳米片通过其独特的片状结构, 在复合材料内部创造了深陷阱能级, 能有效捕获电荷载流子，极大地抑制了高电场和高温下的漏电流; 另一方面, Al_2O_3纳米片使电场分布更加均匀, 消除了危险的局部电场集中. 因此, 纳米片可以实现远超其他维度填料的储能密度.

为实现更优异的储能性能，研究者们开始采用多种维度填料共用的策略. 例如, Deng等人[12]采用由Ba-TiO_3纳米纤维(BT NFs)、Al_2O_3纳米颗粒和六方氮化硼纳米片(BNNSs)组成的不同结构的填料(BT NFs、BT NFs-AO NPs、AO@BT NFs和AO@BT-BNNSs)制备了PVDF复合薄膜. 结果如图1(m)和(n)所示, 当AO@BT NFs和BNNSs的含量分别为1.5 vol%和4.0 vol%时, 复合薄膜的介电损耗低, 且在353.9 MV/m下表现出最高的储能密度8.3 J/cm^3, 是纯PVDF的2.86倍. Zhou等人[13]制备了基于聚偏氟乙烯-甲基丙烯酸甲酯共聚物(PVDF-PMMA)的复合材料, 通过设计包含二维氧化石墨烯(2D-GO)和三维$Ba_{0.34}Sr_{0.51}Ca_{0.15}Zr_{0.1}Ti_{0.9}O_3$(3D-BSCZT)的纳米填料体系，显著提高了复合材料的储能密度. 这是因为相邻BSCZT颗粒的耦合效应促进了复合材料的有效极化, 同时2D-GO缓解了电场集中, 从而提高了介电常数和击穿强度. 结果显示, 该复合材料的击穿强度为445 MV/m, 实现了54.90 J/cm^{3}的超高储能密度.

此外，具有宽禁带和高长径比的二维纳米片(如BNNS、云母片等)，由于具有优异的介电和绝缘性能, 也被广泛用于多层薄膜中[14~16]. 例如, Yin等人[17]通过溶液浇铸和热压方法制备了一种完全由二维纳米片构成的三明治结构复合材料. BNNS在PVDF基体中取向排列，构成上下外层，能有效抑制复合材料中的漏电流. 同时, 均匀分布在中间层的二维锐钛矿型TiO_2纳米片(TONS)可以增强极化，从而协同提高复合材料的击穿强度和介电常数. 结果表明: 中间层含3 wt%的TONS、外层含2 wt%的BNNS的三层复合材料，介电常数显著提高(11.42)，在370.1 MV/m电场下的最大放电能量密度为10.17 J/cm^3.

以上研究表明，二维纳米填料比零维和一维填料在提升纳米复合介电材料的储能性能方面具有更大潜能. 其优势主要体现在: (1) 较大的界面面积可使界面极化, 提高复合材料的介电常数; (2) 由于其片状形态, 电场分布更加均匀, 避免电场局部集中, 增大了击穿场强; (3) 纳米片独特的片状结构可以在复合材料内部创造深能级陷阱, 有效捕获电荷载流子, 减少了漏电流和介电损耗. 然而, 一维和二维填料若在聚合物中不加调控随机分布，对复合材料的储能优化往往是极其有限的. 因此, 研究填料的取向调控与复合材料的介电常数和击穿场强之间的关系也尤为重要.

2.3 填料取向调控

由于1D和2D纳米填料具有不同的取向，研究者们自然而然开始研究填料的取向与复合材料储能性能之间的关系. 研究证明，与填料随机分布相比，对填料进行合理的取向调控可以进一步优化复合材料的储能性能. 填料的取向可以分为水平取向和垂直取向两种.

水平取向, 即与电场方向垂直, 可以抑制电荷传输, 增大复合材料的击穿场强[18,19]. 例如, Yang等人[20]通过自主搭建的纳秒电脉冲(nsEP)辅助溶液浇铸平台, 调控复合材料中BNNSs的取向. 实验结果显示, 在80 V/mm的nsEP作用下，以聚偏氟乙烯-六氟丙烯共聚物(P(VDF-HFP))为基体的BNNSs/P(VDF-HFP)薄膜中BNNSs的水平取向度提高到78%左右，与未经取向调控样品的68.8%相比有了显著提升，并且击穿场强提升

至521 MV/m, 储能密度提高至10.3 J/cm^3, 较未经取向调控样品分别实现了9.5%和40.1%的性能提升. 这是因为取向调控可有效缓解BNNS与P(VDF-HFP)界面的电场畸变, 抑制电树枝生长, 显著提升材料的击穿场强.

垂直取向, 即与电场方向平行, 可以提高复合材料的介电常数. 例如, Li等人[21]将磁性Fe_2O_3纳米颗粒嵌入介电TiO_2纳米纤维中形成FO-TO纳米纤维(FTO NFs), 并基于该纳米纤维提出了一种磁辅助方法, 用于实现PEI基体中FTO NFs的垂直取向排列, 且在PEI基体表面涂有Al_2O_3沉积层. 复合薄膜中垂直取向FTO NFs的去极化效应被削弱, 有助于增强介电常数, 而表面Al_2O_3层具有宽禁带, 可有效防止电极/介质界面处的电荷注入和传输. 结果显示, 垂直取向排列时的平均电位移明显高于水平取向排列. 最终, 垂直取向排列的复合薄膜在150℃时表现出6.5 J/cm^{3}的显著增强的储能密度, 与随机薄膜和原始PEI薄膜相比, 分别提高了约41%和132%.

以上研究表明: 1D和2D纳米填料在随机分布的状态下, 对复合材料储能性能的优化是有限的. 对其进行取向调控, 可以进一步实现储能优化. 这主要得益于: (1) 击穿场强的提升. 填料的水平取向可减小形成导电通路的可能性, 且使复合材料内部的电场分布更加均匀, 漏电流密度被极大抑制, 从而显著提升击穿场强. (2) 介电常数的提升. 垂直取向使得极化过程更高效, 从而使复合材料的介电常数得到提升. (3) 击穿路径延长, 击穿阻力增加. 当填料规则排列时, 击穿通道要想从一端电极发展到另一端电极, 将不得不迂回绕行. 这极大地延长了击穿路径, 显著增加了击穿的难度.

综上所述, 填料的含量、维度和取向对复合材料的介电常数和击穿场强有着重要影响. 当然, 填料种类也很重要. 选择适当的材料, 如高电子亲和力的有机半导体小分子[22,23]和高介电常数的弛豫铁电材料[24,25], 也是提高复合材料储能性能的有效途径. 然而, 填料和有机聚合物基体的物理化学性质往往差异较大, 若仅仅从填料调控的角度来考虑, 而忽略填料与基体之间的联系, 则对复合材料的储能优化往往是有限的, 因而填料与基体之间的界面是实现进一步储能优化不容忽视的因素.

3 界面工程

纳米填料具有极高的比表面积, 这意味着极少量的纳米填料就能产生巨大的界面面积. 而界面是影响电荷存储、输运和耗散等关键过程的核心区域, 因此在纳米复合材料中, 纳米填料与聚合物之间的界面对复合材料的储能性能起着决定性作用. 目前界面改性、构建交联网络和构筑核壳结构是实现储能优化行之有效的方法.

3.1 界面改性

无机填料具有高表面能, 而有机物基体的表面能较低. 根据能量最低原理, 为了达到能量稳定状态, 无机填料会自发靠近、聚集, 这会导致漏电流增大, 击穿场强降低. 目前, 大量研究已经表明对无机填料进行界面改性可以改善其与有机聚合物基体的相容性. 界面改性就是通过物理或化学手段, 在填料表面引入功能性官能团、偶联剂或表面活性剂, 以改善填料与基体之间的相容性、减少界面缺陷并增强界面黏附力.

在无机填料表面引入官能团(如-OH、-NH_2、-F、-COOH等)[7,26,27], 使其可与基体发生反应, 以此来提高界面相容性. 如图2(a)所示, Yu等人[28]对PEI基体与宽带隙BNNSs填料之间的界面进行氟化处理. 通过界面氟化改性, 调整BNNSs的能带结构以与PEI的II型能带对齐, 促进了电子和空穴的双重捕获. 这极大地抑制了漏电流并降低了传导损耗. 最终, 该复合薄膜在575 MV/m和150℃的条件下表现出优异的储能特性, 具有5.73 J/cm^{3}的储能密度和91.22%的超高充放电效率.

硅烷偶联剂[29]和表面活性剂[30]是最常用的界面改性剂. 硅烷偶联剂一端与无机填料反应生成共价键, 另一端与基体进行化学反应或物理纠缠, 从而提高无机填料与有机基体的界面相容性. 例如, Qin等人[31]使用硅烷偶联剂KH560对0.94$Bi_{0.5}Na_{0.5}TiO_3$-0.06$BaTiO_3$ (BNBT6)纳米颗粒进行改性, 增强了BNBT6与聚苯醚(PPO)基体之间的界面耦合, 从而减少了界面缺陷. 结果表明, 填料含量为50 wt%的BNBT6@KH560/PPO纳米复合材料在1550 kV/cm的电场下, 储能密度达到2.71 J/cm^3, 充放电效率达到81.1%. 如图2(b)所示, Li等人[30]用表面活性剂三辛基氧化膦(TOPO)功能化ZrO_2纳米颗粒(M-ZrO_2), 并分别选择了PEI和PP作为基体. 得益于表面活性剂的处理, 均匀分散的ZrO_2纳米颗粒充当散射中心, 抑制了聚合物基体内电荷载流子的传输. 结果表明, 含有0.2 wt%的M-ZrO_2纳米颗粒的PEI纳米复合材料在150℃下表现出546 MV/m的击穿强度和4.94 J/cm^{3}的储能密度, 其中储能密度与原始PEI相比提高了70.3%. 同时, 含有0.2 wt%的M-ZrO_2纳米颗粒的PP纳米

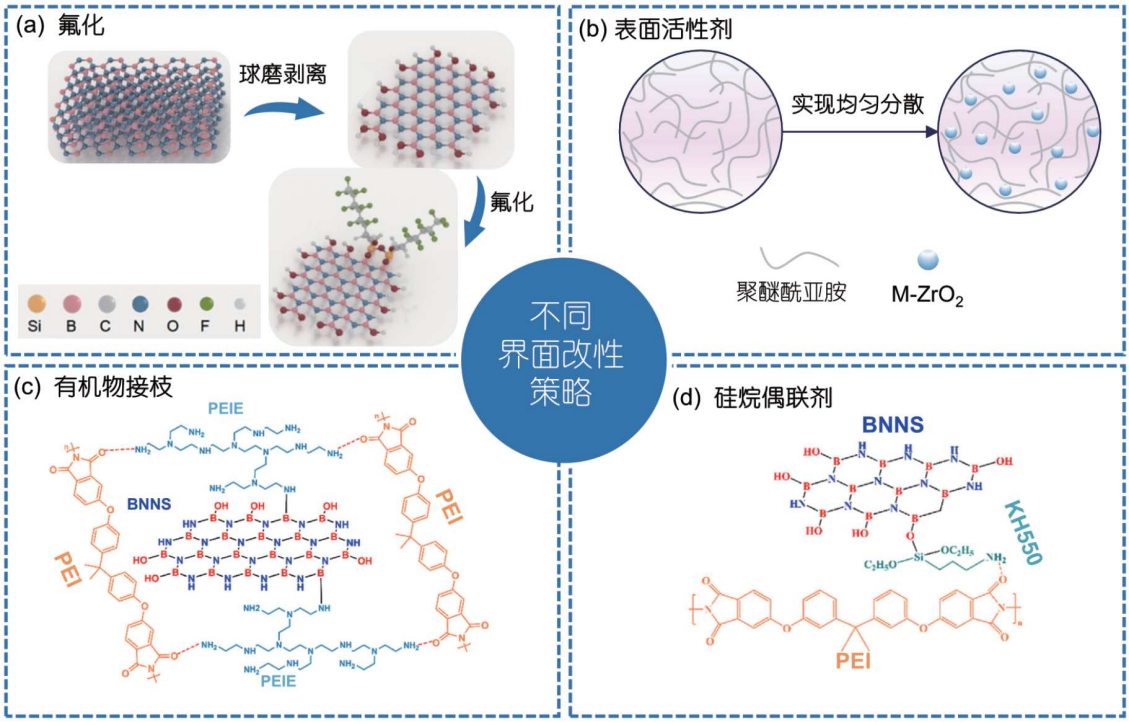


图 2 (网络版彩色)不同界面改性策略示意图. (a) 氟化处理(引入官能团-F) (Copyright © 2024 Elsevier B.V.)[28]; (b) 利用表面活性剂进行改性(Copyright © 2025 Wiley-VCH GmbH)[30]; (c) 有机物接枝(Copyright © 2024 Society of Plastics Engineers)[34]; (d) 利用硅烷偶联剂进行改性[34]

Figure 2 (Color online) Schematic diagrams illustrating various modification strategies. (a) Fluorination treatment (introduction of -F functional groups) (Copyright © 2024 Elsevier B.V.)[28]; (b) modification with surfactants (Copyright © 2025 Wiley-VCH GmbH)[30]; (c) organic molecular grafting (Copyright © 2024 Society of Plastics Engineers)[34]; (d) modification with silane coupling agents[34]

复合材料表现出626 MV/m的击穿强度和4.27 J/cm^{3}的储能密度, 其中储能密度与原始PP相比提高了84.1%.

此外, 将聚苯乙烯[32]、甲氧基聚乙二醇胺(mPEG-NH_2)[33]或带有羧基侧基的聚芳醚腈(PEN-COOH)[27]接枝到无机填料表面也可以改善界面相容性. 如图2(c)和(d)所示, Ni等人[34]采用聚乙烯亚胺(PEIE)和硅烷偶联剂KH550对BNNS进行表面改性, 分别得到PBNNS和KBNNS, 并制备了BN/PEI、BNNS/PEI、PBNNS/PEI和KBNNS/PEI复合材料. 实验结果显示, PBNNS与其他填料相比表现出更好的分散性, 因而其对应的复合材料获得最大的击穿场强为94.8 MV/m, 并且在含量为1 wt%时储能密度为0.14 J/cm^3.

以上研究表明, 界面改性策略通过引入偶联剂、表面活性剂或官能团, 依赖于物理作用或化学键合, 可以有效提升无机填料的分散性和界面黏附力, 从而提高复合材料的储能性能. 此外, 通过紫外线照射也可以实现界面改性. 例如, Liu等人[35]制备了一种由银纳米粒子修饰的$Ti_{0.87}O_2$纳米片(TiNSs@Ag NSs)与PVDF组成的复合薄膜, 同时引入紫外线照射, 在聚合物电介质上诱导产生极性含氧基团, 以捕获来自金属电极的电荷, 形成与外加电场相反的内建电场, 增加了电荷注入的势垒, 从源头上减少了电荷注入, 显著降低了漏电流. 最终, 在650 MV/m的电场强度下实现了23 J/cm^{3}的高储能密度和67%的充放电效率, 该方法为界面改性提供了新的思路.

3.2 交联结构

交联结构是在填料与基体之间构建稳定的交联网络, 以提高基体的力学强度和热稳定性, 同时可有效抑制空间电荷的注入和迁移, 从而提高击穿场强. 近年来, 研究者们提出的多种创新型交联策略, 可大致分为共价交联和物理交联两大类.

共价交联通过形成稳定的化学键网络, 实现无机填料与聚合物基体的强韧结合[36]. 如图3(a)所示, Zhou等人[37]利用多面体低聚倍半硅氧烷(POSS)功能化的氮化硼纳米片(BNNS@POSS)在PEI中构建了共价交联网络, 其不仅充当介电过渡和绝缘屏障的界面层, 而且在交联链区域产生更深的陷阱能级和更高的能垒. 结果

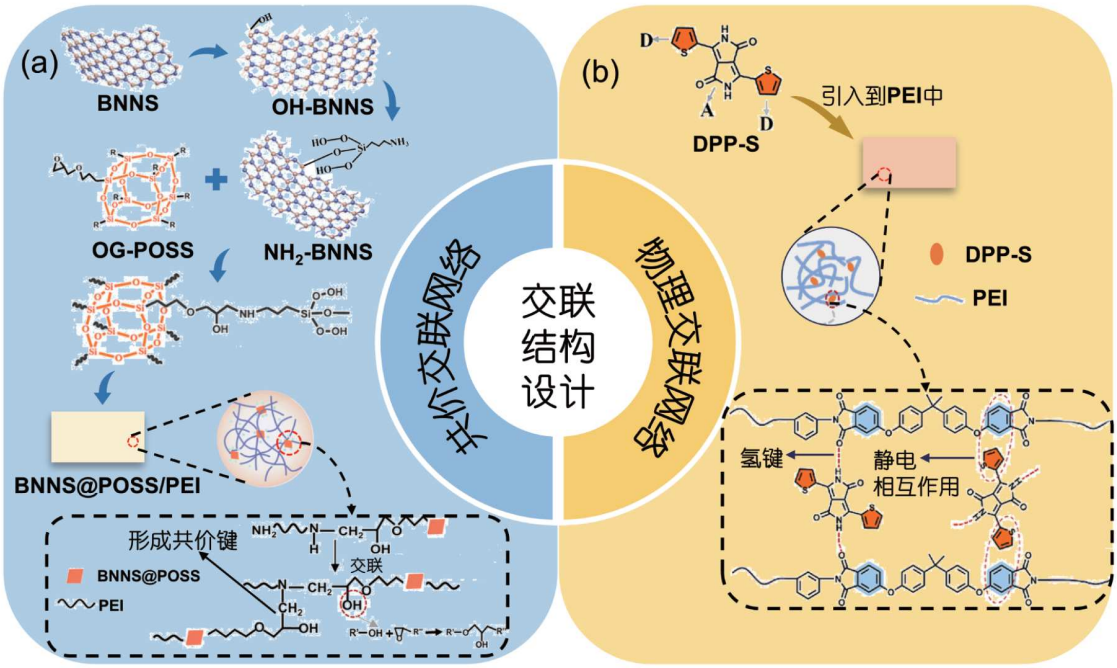


图 3 (网络版彩色)交联结构设计示意图. (a) 共价交联网络设计案例(Copyright © 2024 The Royal Society of Chemistry)[37]; (b) 物理交联网络设计案例(Copyright © 2025 Published by Elsevier Ltd.)[39]

Figure 3 (Color online) Schematic diagram illustrating the design of a cross-linked structure. (a) Design of a covalent crosslinked network (Copyright © 2024 The Royal Society of Chemistry)[37]; (b) design of a physically crosslinked network (Copyright © 2025 Published by Elsevier Ltd.)[39]

表明, 添加了5 wt%的BNNS@POSS的复合薄膜在150℃下实现了6.16 J/cm^{3}的储能密度和89.92%的充放电效率, 并在200℃下仍保持4.12 J/cm^{3}和88.38%的高值. Wang等人[38]使用酚醛树脂(PF)作为交联剂, 与聚酰胺酸(PAA)反应, 在PI基体中构建了稳固的芳香分子交联网络P(I-AA-F), 并在此基础上引入了高导热性的氮化铝(AlN)亚微米颗粒. 得益于交联网络引入的深陷阱对电荷传输的限制和复合材料的导热性对高温热击穿的抑制, 最终优化后的复合材料在150和200℃下分别具有5.45和3.54 J/cm^{3}的高储能密度, 以及80%的充放电效率, 其性能优于已报道的聚酰亚胺基介电复合材料.

与共价交联不同, 物理交联网络的形成依赖的是非共价键的作用(如氢键、静电相互作用等). 如图3(b)所示, Yang等人[39]将一种具有给体-受体-给体(D-A-D)构型的半导体分子(DPP-S)引入到PEI基体中. 通过PEI中带正电的苯基与DPP-S中给电子的噻吩基团之间的静电相互作用, 以及DPP-S中的酰胺基团与PEI链中的-C=O基团之间的氢键相互作用, 形成了致密的物理交联网络. 交联引入了深电子陷阱, 显著抑制了高温时的漏电流, 使复合材料在200℃下依然保持3.45 J/cm^{3}的储能密度和90%的放电效率.

近年来, 超分子聚合物受到越来越多研究者的关注. 基于超分子自组装的原理, 具有所需结构和官能团的特定组分可以以规定的方式组装成新型超分子化合物, 其中包括金属有机框架(MOF)和金属有机笼. 它们可以在有机聚合物与无机填料之间构建更稳定的交联界面并引入深陷阱, 从而缓解界面处的电场畸变, 减少漏电流. Liu等人[40]将MOF包覆在无机填料铌酸钙(CNO)纳米片的表面, 形成CNO@MOF结构, 并与PI基体复合, 经过高温加工后, MOF涂层与PI分子链之间发生化学反应, 形成金属离子有机杂化界面(MOHI). 该复合电介质在150℃下实现了4.75 J/cm^{3}的高储能密度, 储能效率为90%, 超越了纯PI的性能. Zhao等人[41]将一种自组装的金属有机笼, 即氧化钛簇(TOC)引入PEI基体中. 暴露在TOC表面的16个精确胺反应基团通过胺-酸酐缩合与PEI聚合物进一步连接, 得到PEI-g-TOC. 结果显示, 复合材料在150和200℃下分别实现7.53和4.55 J/cm^{3}的储能密度, 且充放电效率保持在90%以上.

以上研究表明, 交联结构通过构建三维网络显著提升了复合材料的综合性能. 为进一步实现对界面区域的精准设计与功能化调控, 一种更为精巧的策略—

核壳结构应运而生.

3.3 核壳结构

核壳结构设计是在填料表面构建一个具有特定化学组成、厚度和功能的壳层，实现对填料-基体界面区域的“定制化”改造. 核壳结构不仅能够有效缓解介电失配和电场集中问题，更为实现介电常数与击穿强度的协同优化提供了全新路径. 根据大量的研究, 核壳结构设计可以归纳为两类：单壳层结构设计和多壳层结构设计.

3.3.1 单壳层结构设计

研究者们通常选择具有宽禁带的Al_2O_3[42~44]、TiO_2[45]、MgO[46~48]作为壳层，形成核-壳-基体三者的介电常数梯度，以此来缓解无机填料与基体间的介电失配，抑制局部电场的集中，从而获得高击穿强度，实现介电常数与击穿强度的协同优化. 如图4(a)所示，Ai等人[49]设计了HfO_2@Al_2O_3/PI复合材料, 其中具有中等介电常数的HfO_2作为核，宽禁带Al_2O_3作为壳. 结果表明，HfO_2@Al_2O_3/PI纳米复合材料在300 MV/m场强下具有91.7%的优异充放电效率，150℃时最大储能密度达2.94 J/cm^3, 展现了其在高温储能领域的应用潜力.

有机聚合物壳层也是近年研究的热点. 与无机壳层不同，有机聚合物壳层的主要功能是改善填料与基体之间的相容性, 促进填料均匀分散, 并利用其自身的官能团引入深陷阱能级，抑制电荷迁移. 其中，聚多巴胺(PDA)和多巴胺(DA)因其优异的黏附性和丰富的官能团而被广泛应用[50]. 如图4(b)所示，Fang等人[51]将低浓度的P型半导体氧化镍量子点(NiO_x QDs)经PDA表面改性后引入聚合物基体. 结果表明，在90℃下，NiO_x@PDA/P(VDF-HFP)薄膜的击穿强度达到224.278

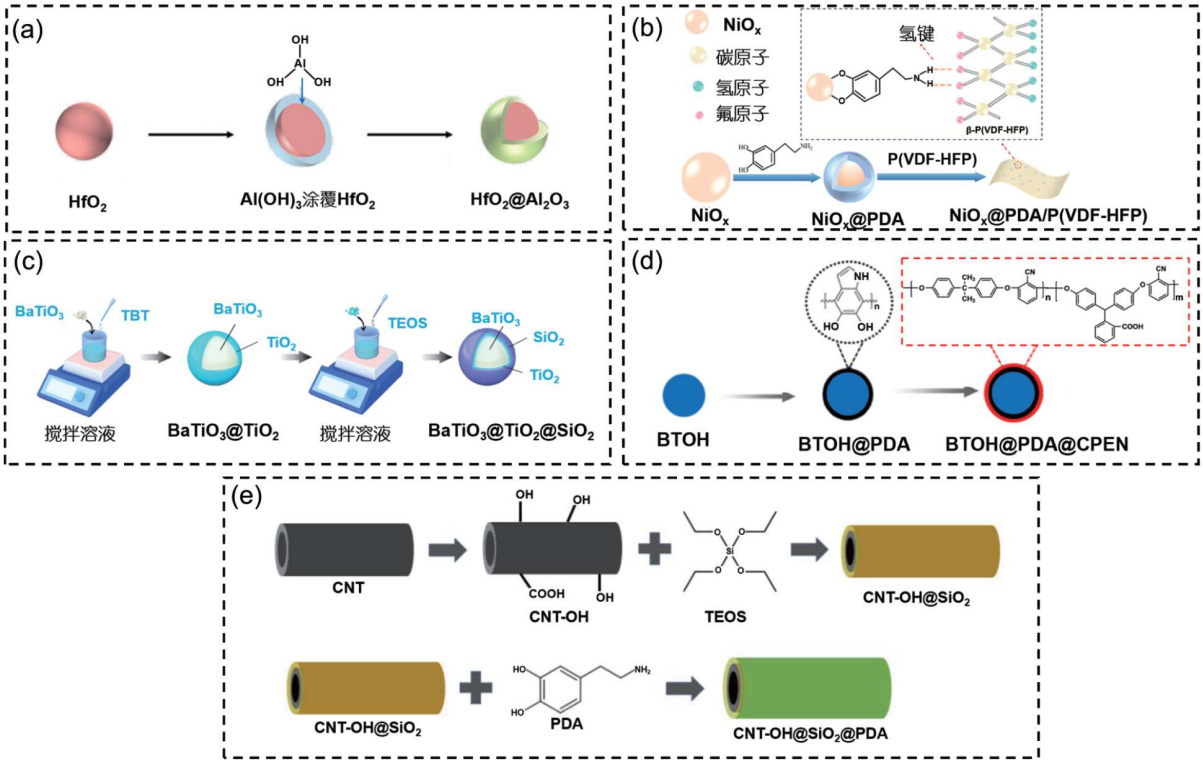


图 4 (网络版彩色)不同核壳结构设计策略示意图. (a) 无机单壳层核壳结构HfO_2@Al_2O_3 (Copyright © 2025 Published by Elsevier Ltd on behalf of The editorial office of Journal of Materials Science & Technology)[49]; (b) 有机单壳层核壳结构NiO_x@PDA (Copyright © 2025 Elsevier Ltd.)[51]; (c) 全无机多壳层核壳结构$BaTiO_3$@TiO_2@SiO_2 (Copyright © 2022 Elsevier Ltd.)[63]; (d) 全有机多壳层核壳结构BTOH@PDA@CPEN (Copyright © 2024 Elsevier B.V.)[59]; (e) 有机/无机协同包覆核壳结构CNT-OH@SiO_2@PDA[62]

Figure 4 (Color online) Schematic diagram of different core-shell structure design strategies. (a) Inorganic single-shell core-shell structure HfO_2@Al_2O_3 (Copyright © 2025 Published by Elsevier Ltd on behalf of The editorial office of Journal of Materials Science & Technology)[49]; (b) organic single-shell core-shell structure NiO_x@PDA (Copyright © 2025 Elsevier Ltd.)[51]; (c) all-inorganic multi-shell core-shell structure $BaTiO_3$@TiO_2@SiO_2 (Copyright © 2022 Elsevier Ltd.)[63]; (d) all-organic multi-shell core-shell structure BTOH@PDA@CPEN (Copyright © 2024 Elsevier B.V.)[59]; (e) organic/inorganic hybrid-coated core-shell structure CNT-OH@SiO_2@PDA[62]

MV/m，储能密度达到2.94 J/cm^3，分别比纯P(VDF-HFP)薄膜提高了42.41%和164.86%. 此外，PI[52]、聚苯胺(PANI)[53]等也常作为有机聚合物壳层来包覆无机填料. 例如, Chen等人[54]通过原位聚合法在MgO纳米颗粒表面包覆PI壳层. PI壳层改善了MgO纳米颗粒在PEI基体中的分散性，同时通过自发的静电相互作用与PEI基体紧密结合, 减少了缺陷. 结果表明, PI@MgO/PEI的击穿强度为551.78 MV/m, 远优于纯PEI的423.23 MV/m, 填料含量为1 vol%的PI@MgO/PEI在150℃下的最大储能密度增加到4.33 J/cm^3, 充放电效率为80%.

另外, 有研究表明为实现优异的储能性能, 壳层的包覆度和厚度等参数需要精准调控. 例如，Wang等人[55]合成了一系列不同二氧化硅包覆度(90°、180°、360°)的$BaTiO_3$@SiO_2纳米填料. 实验表明, 较大包覆度不仅可以有效缓解$BaTiO_3$和PVDF之间的介电失配, 还可以使电树枝的生长路径延长，损伤路径的长度增加, 提高纳米复合材料的击穿强度，但较大的包覆度也会导致极化强度显著降低. 最终，180°的$BaTiO_3$@SiO_2/PVDF表现出最优的储能性能，在650 MV/m场强下储能密度达20.64 J/cm^3, 为纯PVDF的2.62倍. Gao等人[56]合成了一系列SiO_2壳层厚度(5 nm, 15 nm, 25 nm)的$BaTiO_3$@SiO_2. 实验结果表明: 当SiO_2壳层厚度为15 nm时储能性能最优，PVDF基复合材料的介电常数和击穿强度分别提升至14.7和500.5 MV/m，储能密度达到12.2 J/cm^3, 与纯PVDF相比提升了352%.

以上研究表明：单层壳的核壳结构可以优化填料与基体之间的界面相容性，减轻介电失配和电场畸变, 实现介电常数和击穿强度的协同优化. 但是单层壳核壳结构仍存在壳层功能相对单一的局限性，难以同步实现多重界面调控目标.

3.3.2 多壳层结构设计

为了解决上述问题，研究者们设计出多壳层结构. 多壳层结构可以分为全无机壳层[57,58]、全有机壳层[59]和无机/有机协同包覆壳层[60~62].

全无机壳层可以形成由内至外介电常数梯度递减的多层界面, 不仅能有效增强界面极化, 缓解因介电失配导致的电场集中现象, 还可以实现多功能耦合, 突破单壳层核壳结构的性能局限. 如图4(c)所示，Wang等人[63]通过两步水解法制备了一种具有核-双壳结构的新型陶瓷填料$BaTiO_3$@TiO_2@SiO_2(BT@TO@SO)，形成了由内至外介电常数梯度递减(BT→TO→SO)的多层界面，并将其引入PVDF基体. 介电失配得到缓解的同时，SiO_2外壳的高绝缘特性可显著抑制电子迁移并降低漏电流. 实验结果表明，当BT@TO@SO填料填充量较低时，纳米复合材料在620 MV/m场强下可获得19.7 J/cm^{3}的储能密度和57.6%的充放电效率，较单一BT或BT@SO填料体系有显著提升.

全有机壳层在实现界面极化增强和多功能耦合的同时，还表现出卓越的柔韧性. 如图4(d)所示，Lin等人[59]通过强静电相互作用辅助的原位聚合，成功制备了钛酸钡@聚多巴胺@羧基功能化聚芳醚腈(BTOH@PDA@CPEN)，并引入聚芳醚腈(PEN)基体, 制备了介电复合薄膜. 得益于界面相容性的改善、PDA诱导的多界面极化以及CPEN绝缘屏障的协同效应，复合薄膜的击穿强度和储能密度分别达到253.8 MV/m和1.537 J/cm^3, 呈现出增强的储能性能. 此外, 复合薄膜还表现出卓越的柔韧性和出色的热稳定性.

构筑全无机壳层可以减轻填料与基体之间的介电失配, 缓解局部电场集中的现象, 但是受制于填料与基体之间的相容性较差，复合材料的性能无法得到进一步优化；构筑全有机壳层可以改善填料与基体之间的相容性, 实现无机填料的均匀分散, 但是并未缓解填料与基体之间的介电失配. 为解决以上问题, 研究者们开始使用无机/有机壳层协同包覆策略，即在无机填料表面包覆一层中等介电常数的无机壳层后，再包覆一层有机壳层, 以综合无机壳层和有机壳层的优点, 实现复合材料储能性能的进一步优化[61]. 如图4(e)所示，Xu等人[62]采用溶液流延法制备了CNT-OH@SiO_2/PVDF和CNT-OH@SiO_2@PDA/PVDF复合薄膜. 结果表明, 含有2.0 wt% CNT-OH@SiO_2和2.0 wt% CNT-OH@SiO_2@PDA的PVDF复合薄膜在1000 Hz频率下表现出11.29和11.86的介电常数, 介电损耗分别为0.0129和0.0109. 此外, 含有0.5 wt% CNT-OH@SiO_2和CNT-OH@SiO_2@PDA的PVDF复合薄膜, 击穿场强分别为156.76 MV/m和172.30 MV/m，储能密度分别为1.77 J/cm^{3}和2.17 J/cm^3，充放电效率分别为55.0%和56.8%. 通过以上对比充分说明了无机/有机壳层协同包覆策略的优越性.

综合以上研究可知，核壳结构设计通过引入壳层材料, 改善了界面相容性, 有效缓解了无机填料与有机聚合物基体间的介电失配, 减轻了界面电场畸变, 从而显著提升了复合材料的储能密度. 近年来, 有不少研究者将金属点(Ag、Au等)引入核壳结构中[64,65]，实现了超高储能密度，为核壳结构的进一步优化设计提供了方向.

4 层级结构设计

无论是对纳米填料的调控, 还是界面工程, 都停留在微观层面上. 在宏观层面上, 进行层级结构设计对复合材料的储能优化也极其重要. 多层结构设计一方面可以通过增强界面极化来提高复合材料的介电常数; 另一方面, 异质界面可抑制击穿通路的发展, 从而提高复合材料的击穿强度. 因此, 本文将从双层结构设计、三层结构设计和多层(大于3)结构设计三个方面对层级结构设计进行系统论述.

4.1 双层结构设计

大量研究表明, 双层结构中两层所用的基体一般不同, 且一层为线性介电聚合物(如PI、PEI、PMMA等), 一层为铁电性聚合物(如PVDF及其共聚物等). 线性层可以提供高击穿场强和低介电损耗, 铁电层可以提供高介电常数, 从而实现介电常数和击穿场强的协同提升.

双层结构的基体中可以不加入无机填料, 制备成全有机薄膜[66,67]. 如图5(a)所示, Ma等人[68]通过溶液浇铸法制备了以线性聚合物PEI为底层、铁电性复合物PVDF/PEI为顶层的全有机双层复合介电薄膜. 结果表明, 顶层PVDF的高介电常数和共混的微观界面极化增强了双层复合膜的极化强度, 而底层PEI的低介电损耗确保了双层复合膜的高充放电效率. 结果显示, 该双层

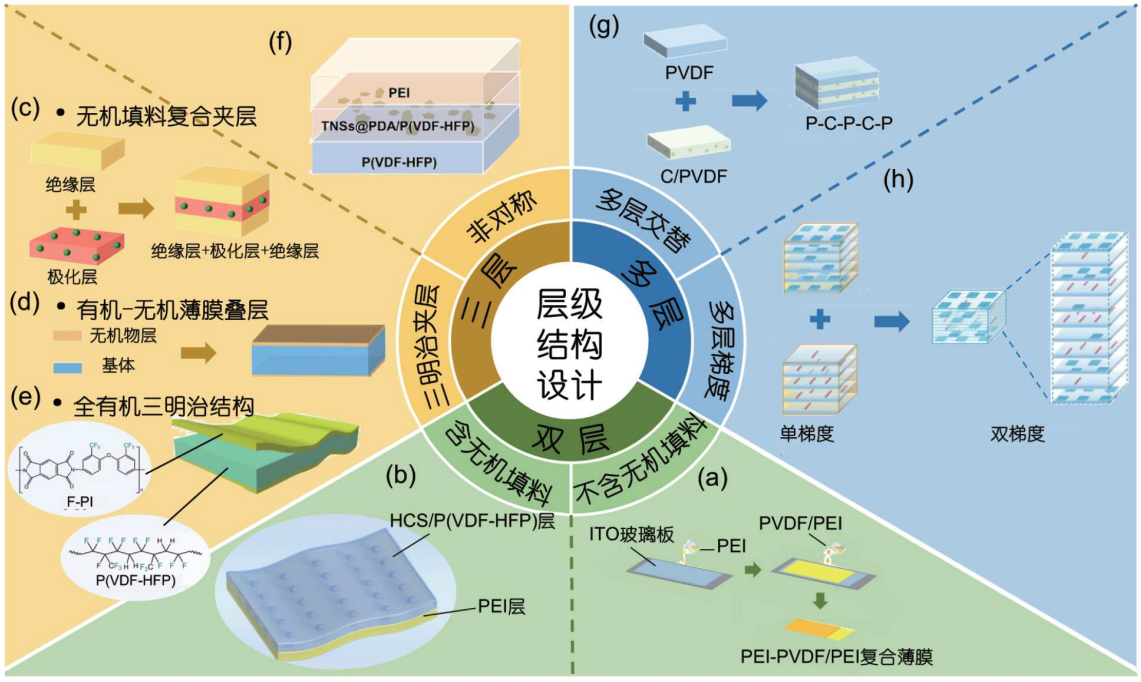


图 5 (网络版彩色)不同层级结构设计策略示意图. (a) 双层且基体中不含无机填料的PEI-PVDF/PEI复合薄膜(Copyright © 2024 The Royal Society of Chemistry)[68]; (b) 双层且基体含无机填料的HCS/P(VDF-HFP)-PEI复合薄膜(Copyright © 2025 The Royal Society of Chemistry)[70]; (c) 无机填料复合夹层结构: 绝缘层作为外层, 极化层作为内层(Copyright © 2024 Wiley-VCH GmbH)[72]; (d) 有机-无机薄膜叠层: 无机物直接作为一层与聚合物基体堆叠(Copyright © 2022 Elsevier B.V.)[78]; (e) 全有机三明治结构的(F-PI)-P(VDF-HFP)-(F-PI)复合薄膜(Copyright © 2025 Elsevier Ltd.)[81]; (f) 非对称结构的PEI-TNSs@PDA/P(VDF-HFP)-P(VDF-HFP)复合薄膜(Copyright © 2024 Published by Elsevier Ltd)[85]; (g) 多层交替结构的PVDF-CCTO@Ni/PVDF-PVDF-CCTO@Ni/PVDF-PVDF复合薄膜(Copyright © 2023 Elsevier Ltd.)[94]; (h) 多层梯度结构, 包括单梯度和梯度互穿(Copyright © 2021 Elsevier B.V.)[102]

Figure 5 (Color online) Schematic diagram of different hierarchical structure design strategies. (a) Double-layer PEI-PVDF/PEI composite film with no inorganic fillers in the matrix (Copyright © 2024 The Royal Society of Chemistry)[68]; (b) double-layer HCS/P(VDF-HFP)-PEI composite film with inorganic fillers incorporated in the matrix (Copyright © 2025 The Royal Society of Chemistry)[70]; (c) inorganic filler-based composite interlayer structure: insulation layer as the outer layer and polarization layer as the inner layer (Copyright © 2024 Wiley-VCH GmbH)[72]; (d) organic-inorganic laminated film: inorganic material directly stacked as a layer with the polymer matrix (Copyright © 2022 Elsevier B.V.)[78]; (e) all-organic sandwich-structured (F-PI)-P(VDF-HFP)-(F-PI) composite film (Copyright © 2025 Elsevier Ltd.)[81]; (f) asymmetric-structured PEI-TNSs@PDA/P(VDF-HFP)-P(VDF-HFP) composite film (Copyright © 2024 Published by Elsevier Ltd.)[85]; (g) multilayer alternating structure of PVDF-CCTO@Ni/PVDF-PVDF-CCTO@Ni/PVDF-PVDF composite film (Copyright © 2023 Elsevier Ltd.)[94]; (h) multilayer gradient structure, including single-gradient and gradient interpenetrating types (Copyright © 2021 Elsevier B.V.)[102]

复合薄膜在640 MV/m的电场下实现了高达20.16 J/cm^{3}的储能密度和94.6%的充放电效率.

双层结构的基体中也可以加入无机填料, 进一步增强复合材料的储能性能[69]. 如图5(b)所示, Yin等人[70]合成了一种具有丰富内部界面的异质碳/二氧化硅纳米球(HCS NS), 并引入到P(VDF-HFP)中, 以增强界面极化和抑制击穿通路发展. 而后将获得的HCS/P(VDF-HFP)复合材料与PEI堆叠, 形成HCS/P(VDF-HFP)-PEI层状复合材料. 得益于高介电常数的HCS/P(VDF-HFP)层和高击穿场强的PEI层之间的协同效应, 含有2.5 wt% HCS NSs的双层复合材料实现了显著提高的放电能量密度, 达10.81 J/cm^3, 分别约为P(VDF-HFP)、PEI和P(VDF-HFP)-PEI复合材料的206.3%、176.1%和133.5%, 同时放电效率高达93.8%. 而且该复合材料即使在100°C的高温下仍保持9.22 J/cm^{3}的高放电能量密度和90.1%的放电效率. Fan等人[71]通过引入二维铋层状结构的$Na_{0.5}Bi_{4.5}Ti_4O_{15}$铁电微片(NBT), 制备了NBT-PEI/NBT-P(VDF-HFP)双层结构复合薄膜. 结果表明, 由于二维NBT薄片的电势垒效应与双层结构的界面效应协同作用, 该复合材料可在828.3 MV/m的超高击穿场强下获得25.0 J/cm^{3}的储能密度和81.2%的放电效率.

以上研究表明, 双层复合材料多为高介电常数层(铁电层)与高击穿场强层(线性层)的相互结合, 以实现介电常数和击穿场强的协同优化. 同时, 层与层之间的差异增强了界面极化, 并抑制电树枝的生长, 进一步提高了介电常数和击穿场强.

4.2 三层结构设计

三层结构设计主要分为三明治夹层结构设计和非对称结构设计两种.

4.2.1 三明治夹层结构设计

三明治夹层结构可以分为无机填料复合夹层、有机-无机薄膜叠层和全有机三明治结构三类.

无机填料复合夹层是研究最广泛的三明治夹层结构, 如图5(c)所示, 其通常以绝缘层作为外层, 极化层作为内层, 形成“绝缘层-极化层-绝缘层”的结构[72~76]. 一方面, 绝缘层在外侧可抑制电极的电荷注入, 抑制漏电流, 均匀分散电场, 降低极化层直接承受高电压的风险; 另一方面, 极化层中填料与基体之间的界面以及不同层之间的界面可以增强极化强度, 从而实现介电常数和击穿场强的协同提升. 例如, Duan等人[77]提出了一种由P(VDF-HFP)/PMMA外层和$SrTiO_3$@Al_2O_3/P(VDF-HFP)/PMMA内层构成的三明治结构复合材料. 结果表明, 含0.5 vol%填料的P-0.5ST-P样品在400 MV/m场强下, 达到14.36 J/cm^{3}的储能密度, 较单层复合材料(4.02 J/cm^3)提升257%. 此外, P-0.5ST-P在400 MV/m场强下仍保持76.6%以上的高充放电效率.

如图5(d)所示, 有机-无机薄膜叠层与无机填料复合夹层最大的区别在于无机物不再作为填料, 而是直接作为一层与有机聚合物薄膜堆叠[78], 其优点是不需再考虑无机填料与有机聚合物之间的界面相容性问题, 简化了填料的后续处理步骤. 例如, Chen等人[79]采用界面自组装结合溶液浇铸法制备了BN-P(VDF-HFP)/BT-BN复合材料, 其外层是自组装的BN薄膜, 具有高绝缘性, 可提供高击穿强度并抵抗电荷注入, 而中间层则包含高介电常数$BaTiO_3$纳米颗粒, 以提供高电极化. 实验结果表明, BN-3-BN夹层结构复合材料在场强为550 MV/m时表现出19.4 J/cm^{3}的高储能密度, 是原始P(VDF-HFP)的2.3倍.

全有机三明治结构通常以线性聚合物作为外层, 铁电聚合物作为内层, 形成与无机填料复合夹层相同的“绝缘层-极化层-绝缘层”的结构[80]. 外层高绝缘聚合物作为势垒层, 抑制电荷注入; 内层高介电常数的铁电聚合物作为极化层, 提供高电位移. 如图5(e)所示, Wang等人[81]通过原位复合与多层流延技术合成了氟化聚酰亚胺/聚偏氟乙烯-六氟丙烯(F-PI/P(VDF-HFP)/F-PI)全有机复合薄膜. 线性聚合物F-PI作为外层可降低介电损耗, 铁电聚合物P(VDF-HFP)则通过多氟效应增强了复合材料的高温韧性和绝缘性, 有效抑制了载流子传输, 防止过早击穿. 结果显示, F-PI/P(VDF-HFP)/F-PI在120°C下击穿强度为500 MV/m, 储能密度达到5.2 J/cm^3, 充放电效率达到80%. 该薄膜在150°C高温下仍表现出卓越的储能性能, 在423 MV/m场强下, 储能密度为2.91 J/cm^3, 充放电效率为75%.

近年来, 具有库仑阻塞效应和等效微电容效应的金量子点(Au QDs)和金纳米颗粒(Au NPs)开始受到研究者的关注[82], 并被应用于三明治夹层结构设计中. 当Au NPs直径小于库仑阻塞直径时, 其作为库仑岛会阻碍电荷传输; 而直径超过该临界值时, 则充当等效电极, 通过微电容效应捕获电荷. 例如, Yin等人[83]通过溅射和热压工艺将Au QDs引入层状结构纳米复合材料. 该结构以PMMA/P(VDF-HFP)共混聚合物为中间层, P(VDF-HFP)为外层. 结果表明, 受益于金量子点诱导的

微电容效应和库仑阻塞效应，所得纳米复合材料在10 kHz频率下实现了10.34的介电常数、577.3 MV/m的击穿强度和16.07 J/cm^{3}的放电能量密度, 其中放电能量密度约为无金量子点纳米复合材料的177.1%. Chang等人[84]通过物理气相沉积和溶液浇铸法, 在PVDF基体中引入了一种由均匀分散的Au NPs与聚甲基倍半硅氧烷(PMSQ)微球构成的独特凹凸金/有机硅颗粒夹层, 制备出新型三层结构PVDF-Au/PMSQ-PVDF纳米复合薄膜. PMSQ微球凭借刚性的"—Si—O—Si—"骨架结构表现出卓越的绝缘性, 能显著抑制载流子迁移. 结果显示: 该复合薄膜的击穿强度达到704 MV/m, 较纯PVDF提升153%，储能密度高达22.421 J/cm^3，是纯PVDF的249%.

以上研究表明，三明治夹层结构通过合理的功能层设计与界面调控，可实现复合材料的介电常数与击穿强度协同提升. 三明治夹层结构设计已成为制备高性能介电储能材料的重要策略.

4.2.2 非对称结构设计

如图5(f)所示，与三明治夹层结构不同，非对称多层结构复合材料每层的材料均不同[85]，需要主动设计材料的空间分布来调控电场分布与电荷传输，形成连续的介电常数梯度，从而实现复合材料储能性能的优化[86]. 例如, Zhang等人[87]通过流延法制备了非对称三明治结构PVDF基纳米复合薄膜. 该薄膜由含0维BT粉末的击穿引导层、P(VDF-HFP)的击穿缓冲层和含2维BN纳米片的击穿截止层组成. 击穿过程始于击穿引导层中的0维BT粉末附近，通过击穿缓冲层耗散能量，最终止于击穿截止层中的2维BN纳米片附近. 结果表明, 这种改进的结构显著提升了纳米复合薄膜的储能特性, 使薄膜在720 MV/m的极高电场强度下实现22.72 J/cm^{3}的储能密度. Wang等人[88]以PVDF-PMMA为基体，以$KNbO_3$(KN)和TiO_2(TO)为纳米填料，设计了一种包含过渡层、绝缘层和极化层的非对称三层复合材料KN/TO/PVDF-PMMA. KN和TO纳米片阻挡了电荷的传输, 延长了电树枝的发展路径，从而有效提高了击穿强度. 该纳米复合材料在523 MV/m场强下的储能密度达到17.79 J/cm^3. 在此基础上, 通过控制煅烧气氛来调节氧空位浓度, 并优化填料的带隙. 当电场强度为548 MV/m时, 使用在氧气气氛下获得的TO来制备复合材料，其储能密度增加至21.61 J/cm^3. 结果表明，高纵横比的TO和KN纳米片填料以及复合薄膜的非对称三层结构设计是生产高储能密度电介质的有效途径.

4.3 多层结构设计

4.3.1 多层交替结构设计

多层交替结构设计可视为在三明治夹层结构的基础上，进一步交替排列功能层，由于层间界面的增多, 可以使复合材料的界面极化和击穿强度进一步增强, 从而使储能性能得到进一步优化. 与三明治夹层结构类似，多层交替结构设计也可以分为无机填料复合夹层[89]、有机-无机薄膜叠层[90,91]和全有机多层[92,93]三类.

如图5(g)所示，Gao等人[94]将镀镍的CCTO@Ni杂化纳米粒子引入PVDF基体中制备了C/PVDF单层复合薄膜，再通过逐层溶液流延法制备了PVDF-C/PVDF-PVDF-C/PVDF-PVDF五层薄膜(P-C-P-C-P). 结果表明, 得益于中间C/PVDF层的界面极化以及中间和外部PVDF层的缓解和阻挡效应, 复合材料介电常数和击穿强度得到增强. 最终该材料在297.8 MV/m下获得了6.65 J/cm^{3}的储能密度, 比纯PVDF提高了118%. Bera等人[90]设计了PMMA-二维云母-PMMA(PMP)和PMMA-二维云母-PMMA-二维云母-PMMA(PMPMP)两种复合材料. 结果表明, 在低介电常数的PMMA基质中引入二维云母后, 室温下PMP和PMPMP异质结构的介电常数分别提升约15%和53%. 其中PMPMP电容器在825 MV/m场强下展现出38 J/cm^{3}的储能密度，较原始PMMA (522 MV/m时为9.5 J/cm^3)和PMP电容器(740 MV/m时为19 J/cm^3)实现显著突破. Li等人[95]设计的Al_2O_3/P(VDF-TrFE)/Al_2O_3/P(VDF-TrFE)/Al_2O_3五层复合薄膜的储能密度甚至达到了108 J/cm^3，这是目前聚合物基电介质及其纳米复合材料中报道的最高储能密度值.

4.3.2 多层梯度结构设计

多层梯度分布结构[96,97]通过填料的含量或尺寸的连续渐变, 可使内部电场分布更加均匀, 避免局部畸变与击穿; 同时，梯度界面能高效抑制电荷注入并捕获载流子, 使能量损耗降低. 此外, 该结构还能有效缓和层间界面应力, 从而提升力学性能与热稳定性. 例如, Liu等人[98]采用逐层流延法制备了多层梯度$Ba_{0.6}Sr_{0.4}TiO_3$/PVDF复合材料，并分为正梯度(0-1 vol%-3 vol%-1 vol%-0)和反梯度(1.5 vol%-1 vol%-0-1 vol%-1.5 vol%)两组, 同时制备了非梯度(1-1-1-1-1)复合材料和多层纯PVDF作为对照组. 结果表明，多层正梯度和反梯度复合材料的最大储能密度分别为9.3 J/cm^{3}和7.0 J/cm^3, 均优于对照组.

与传统的调控填料体积分数不同，Dang等人[99]通

过调控钛酸钡纳米颗粒($BaTiO_3$ NPs)的粒径, 使其从上到下依次减小(500 nm-200 nm-100 nm)来构建多级梯度层结构. 结果表明, 该复合材料具有16.38 J/cm^{3}的储能密度和97.79%的超高充放电效率.

除了单梯度设计外, 还有双梯度互穿设计[100,101]. 如图5(h)所示, Feng等人[102]制备了填充0.5Ba($Zr_{0.2}$-$Ti_{0.8}$)O_3-0.5($Ba_{0.7}Ca_{0.3}$)TiO_3纤维(BZCTFS)的PEI-BZCT纳米复合材料和填充BNNS的PEI-BNNS纳米复合材料. PEI-BZCT和PEI-BNNS交替堆叠, BZCTFS和BNNS的体积分数分别从外层到中心层逐渐增加和减少. 结果表明, 最优梯度设计的复合材料具有580 MV/m的击穿强度和4.87 J/cm^{3}的储能密度, 分别比纯聚合物(420 MV/m和2.5 J/cm^3)高38%和95%.

综上所述, 无论是双层结构、三层结构还是多层结构, 都是通过宏观上合理的功能层设计和层与层界面调控, 来实现复合材料介电常数和击穿场强的协同提升, 为进一步优化柔性复合介电材料的储能性能提供了思路. 除了以上策略外, 高熵设计也是近年的研究热点[103]. 通过在钙钛矿结构的单个晶格位点上固溶五种或以上等摩尔或近等摩尔的阳离子, 形成高熵固溶体. 这种设计极大地增强了系统的构型熵和原子级无序度, 从而对材料的极化行为产生深远影响. 该设计策略为电介质储能性能的进一步优化提供了参考方向.

5 人工智能AI驱动下的介电储能结构设计及优化

如前所述, 通过填料调控、界面工程和宏观层级结构设计, 可以在不同尺度上优化柔性复合介电材料的储能性能. 然而, 采用传统的“试错”式实验方法探索多维度的材料配方和复杂的结构参数, 往往耗时耗力且效率有限. 近年来, 人工智能技术的迅猛发展, 为介电储能材料的结构设计与性能优化提供了全新的范式.

如图6(a)所示, AI驱动介电材料设计主要包括正向设计和逆向设计两类. 正向设计是根据结构预测性能, 从而筛选出高性能的介电材料. 逆向设计是根据所需性能设计对应的结构, 从而发现和设计高性能的新介电材料. 二者的核心均为建立“结构-性能”之间的准确映射关系, 主要流程为: (1) 数据收集与结构表示. 初始数据可以来源于历史文献数据[104]、实验数据[105]、高通量计算数据和高通量模拟数据[106]. 但由于计算机无法直接理解分子结构, 需要将其转化为数学表示. 常见的方法包括SMILES字符串[107]、分子指纹[108]以及基于图神经网络的表示方法[109]等. (2) 选择算法, 构建预测模型, 建立数据库中的聚合物结构和反应条件与聚合物性能之间的关系. (3) 训练后的模型用于预测或设计. 若向模型输入聚合物的结构和反应条件, 输出对应的性能, 则为正向设计. 若向模型输入目标性能, 输出为满足该性能的聚合物的结构和反应条件, 则为逆向设计.

由于正向设计局限于预设数据库, 效率较低且难以发现颠覆性新材料, 因而当前的大量研究均聚焦于逆向设计, 通过AI模型反向搜索整个化学空间, 自动生成满足需求的分子结构. 例如, Ramprasad团队[110]利用AI成功合成了新介电材料PONB-2Me5Cl, 具体流程为: (1) 定义筛选标准: 最大化带隙(E_g)、介电常数(ε_r)和玻璃化转变温度(T_g); (2) 虚拟正向合成. 如图6(b)所示, 采用虚拟正向合成的方法, 从商业可得的单体和已知聚合反应模板数字化生成大量可合成聚合物候选库; (3) 性能预测与筛选. 如图6(c)所示, 使用多任务图神经网络预测候选聚合物的E_g、ε_r和T_g, 筛选出满足标准的聚合物. 最后, 成功合成并验证了四种聚合物, 其中PONB-2Me5Cl在200℃下实现了前所未有的8.3 J/cm^{3}的储能密度, 是商用材料的11倍(图6(d)). PONB-2Me5Cl的卓越性能归因于: 聚合物主链缺乏共轭结构、侧链中含有可旋转极性基团, 以及刚性的主链与大体积侧链的结合. 现有合成的聚合物中, 这种特征与性能的组合罕见(甚至可能不存在), 凸显了人工智能算法可以帮助突破人类的传统认知局限, 拓展新材料的发现[111].

Zhang等人[112]提出了一个数据驱动的多目标优化框架, 用于高性能聚酰亚胺设计. 利用训练好的模型, 对一个包含20424种虚拟PI配方的化学空间进行高通量筛选. 而后再通过帕累托前沿筛选, 确定了9种最优候选物. 经过实验合成, 最终结果表明, PI-a、PI-b和PI-e薄膜的性能超越了当前商业基准, 实现了玻璃化转变温度达336~376°C, 拉伸强度达207~324 MPa, 透光率高于89.6%.

除了新材料的发现与设计, AI同样被广泛应用于辅助实验与表征, 并丰富理论模型. 例如, Wang等人[113]提出一种全新的界面建模方法, 首次实现了界面区域介电性能连续性过渡的定量描述. Zhu等人[114]通过随机森林分类模型, 建立了纳米填料的物理、几何和分布参数与复合材料最终性能(击穿强度、介电常数和储能密度)之间的关系, 以指导复合材料的理性设

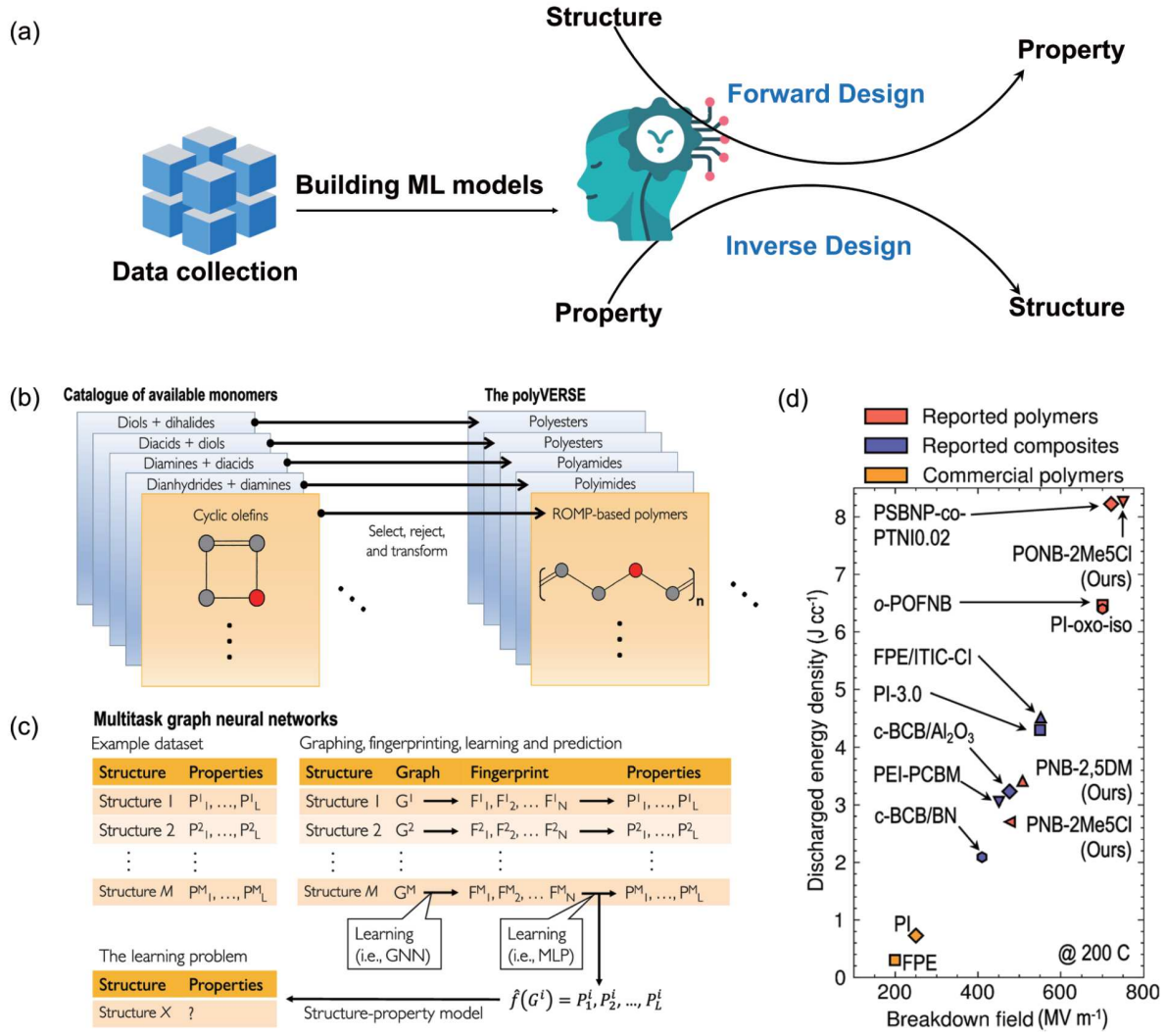


图 6 (网络版彩色)(a) 人工智能驱动下的介电储能结构设计示意图. (b~d) 人工智能驱动下的介电材料设计案例[110]: (b) 从商业可得的单体和已知聚合反应模板数字化生成大量可合成聚合物候选库; (c) 通过多任务图神经网络估计聚合物性质; (d) 新合成的聚合物与已报道和商用的聚合物进行比较

Figure 6 (Color online) (a) Schematic diagram of the AI-driven demonstration system for the design of dielectric energy storage structures. (b–d) Artificial intelligence-driven case study in dielectric material design[110]: (b) digitally generating a large candidate library of synthesizable polymers from commercially available monomers and known polymerization reaction templates; (c) estimating polymer properties through a multi-task graph neural network; (d) comparative analysis of newly synthesized polymers against reported and commercial polymers

计. Liu等人[106]提出了一种改进的高通量相场模拟与机器学习相结合的方法, 并通过多元线性回归分析, 获得击穿强度的解析表达式, 为材料性能的快速预测提供了实用工具. Zhang等人[115]首创了数据驱动的铁电相图预测方法, 解决了传统热力学模型的局限性.

综上所述, 人工智能技术正在深刻变革柔性复合电介质的研究模式, 将其从基于经验的“试错”逐步转向基于数据的“理性设计”. 通过构建高质量数据库、开发精准的预测模型以及建立高效的设计范式, AI能够跨越从分子结构到宏观性能的多尺度壁垒, 协同优化介电常数、击穿场强和热稳定性等关键参数. 尽管目前仍面临数据质量、模型可解释性以及与实际合成、加工工艺衔接等挑战, 但AI辅助设计无疑为未来开发具有更高储能密度、更优可靠性与环境可持续性的新一代柔性复合电介质开辟了充满希望的道路.

6 规模化制备技术

实现高性能柔性复合电介质从实验室研究到产业

化应用的关键瓶颈在于规模化制备技术的突破. 传统的溶液浇铸、旋涂等方法虽适用于实验室小批量样品制备, 但难以满足大面积、连续化生产的需求. 近年来, 卷对卷技术和双轴滚压技术成为规模化生产的重要方向. 例如, Yang等人[116]聚焦于具有高玻璃化转变温度(T_g)的芳香族聚合物薄膜, 通过分子工程从芳纶衍生出一种聚磺化芳纶(PSA), 并引入非平面砜基团对其进行结构优化, 得到了用于高温电容式储能的优化分子结构PSA-75. 随后引入有机小分子三蝶烯(TE), 得到PSA/TE全有机薄膜. 如图7(a)所示, 该团队用卷对卷技术对该薄膜进行生产, 其中包括四个关键步骤: 溶液流延、溶剂蒸发、后处理退火和收卷. 最后得到工业规模的薄膜(如图7(b)所示), 其厚度约为10微米. 该团队对薄膜的不同区域进行测试, 结果显示出稳定的电容性能, 证明了大批量生产中薄膜的均匀性和质量一致性. 同时, 该工业薄膜在超过10^6次循环后仍能保持可靠的电容性能, 凸显了其耐久性. 该团队还对生产该薄膜所需原材料进行了详细的成本分析, 与其他高温介电薄膜相比, 该薄膜的成本显著降低. Yang等人[117]则采用磷钨酸亚纳米片(PWNSs)作为填料, 制备了PEI-PWNS亚纳米复合材料. 如图7(c)所示, 通过工业级连续卷对卷溶液流延生产线制备出长100米、宽0.6米、厚6微米的PEI-0.2 wt% PWNS薄膜. 该薄膜兼具柔韧性、透明性和高质量表面特性. 从薄膜不同区域取样的九个测试单元均表现出稳定的储能性能, 证实了PEI-PWNS亚纳米复合材料的工业化应用潜力.

大多数介电材料不能大规模生产的原因之一是刚性填料的高填充量所导致的聚合物复合薄膜刚性过高、脆性过大. 为解决此问题, Lu等人[118]通过双轴滚压技术, 制备了具有仿生软-硬分段结构的R-ACM/BN薄膜. 如图7(d)所示, 在双轴滚压过程中, 施加的法向和横向应力诱导BN产生高度取向, 与此同时, 加热使聚丙烯酸酯(ACM)基体软化, 使其能够在应力作用下重新分布, 并与BN协同形成仿生软-硬分段结构. 该高柔性介电薄膜在BN含量达75 wt%时, 实现了18 W/(m K) 的高面内导热系数、10 GHz频率下0.008的超低介电损耗以及

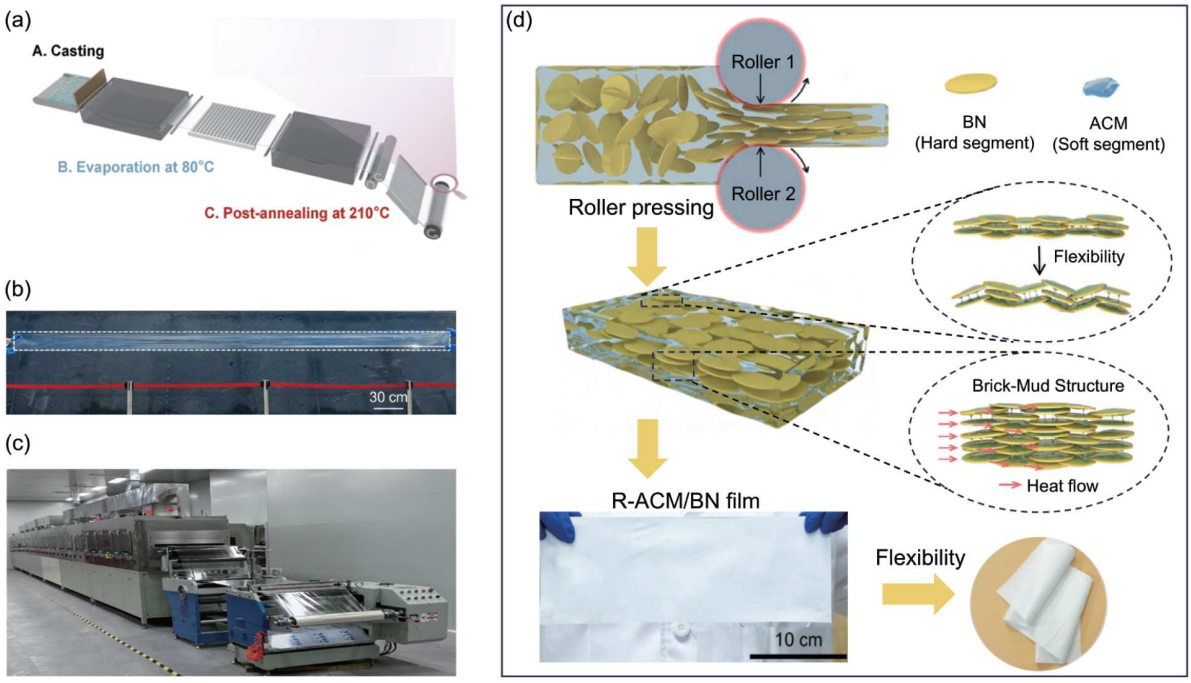


图 7 (网络版彩色)规模化制备案例. (a) 卷对卷生产线的示意图(Copyright © 2025 The Royal Society of Chemistry)[116]; (b) 长度超过5米、厚度约为10微米的PSA/TE薄膜卷[116]; (c) 工业卷对卷生产线照片[117]; (d) R-ACM/BN薄膜的仿生结构构造示意图(Copyright © 2025 Wiley-VCH GmbH)[118]

Figure 7 (Color online) Case studies on scale-up manufacturing. (a) Schematic diagram of a roll-to-roll production line (Copyright © 2025 The Royal Society of Chemistry)[116]; (b) a roll of PSA/TE film with a length exceeding 5 meters and a thickness of approximately 10 micrometers[116]; (c) photograph of an industrial roll-to-roll production line[117]; (d) schematic diagram illustrating the biomimetic structural construction of the R-ACM/BN film (Copyright © 2025 Wiley-VCH GmbH)[118]

表 1　文中涉及的复合介电材料的储能性能汇总

Table 1　Summary of energy storage performance for composite dielectric materials mentioned in the text

复合介电材料	测试温度 (℃)	介电常数	击穿场强 (MV/m)	储能密度 (J/cm^3)	文献
PEI/i-ZnO(3 wt%)	200	—	516	3.6	[6]
NBT/PVDF(3 wt%)	—	20	320	6.1	[7]
Al_2O_3 NPLs/PI(5 vol%)	150	—	436	2.89	[11]
AO@BT-BNNSs/PVDF	—	12.53	353.9	8.3	[12]
GO/3D-BSCZT/PVDF-PMMA	—	41.23	445	54.90	[13]
(BNNS/PVDF)-(TONS/PVDF)-(BNNS/PVDF)	—	11.42	370.1	10.17	[17]
P(VDF-HFP)/BNNSs	—	9.6	521	10.3	[20]
Al_2O_3-PEI/FTO-Al_2O_3	150	4.4	568.7	6.5	[21]
BNNS-F/PEI	150	—	589	5.73	[28]
BNBT6@KH560/PPO	—	—	160	2.71	[31]
M-ZrO_2/PEI	150	3.45	546	4.94	[30]
M-ZrO_2/PP	150	2.4	626	4.27	
PBNNS/PEI	—	4.39	94.8	0.14	[34]
BNNS@POSS/PEI	150	4.88	614.75	6.16	[37]
AlN/P(I-AA-F)	150	—	617	5.45	[38]
PEI-DPP-S	200	—	599.07	3.45	[39]
CNO@MOF/PI	150	—	—	4.75	[40]
PEI-g-TOC	200	4.6	553	4.55	[41]
HfO_2@Al_2O_3/PI	150	3.92	417	2.94	[49]
NiO_x@PDA/P(VDF-HFP)	90	—	224.278	2.94	[51]
PI@MgO/PEI	150	3.40	551.78	4.33	[54]
180° BT@SO/PVDF	—	10.2	650	20.64	[55]
$BaTiO_3$@SiO_2/PVDF	—	14.7	500.5	12.2	[56]
$BaTiO_2$@TiO_2@SiO_2/PVDF	—	—	620	19.7	[63]
PEN/BTOH@PDA@CPEN	—	12.25	253.8	1.537	[59]
CNT-OH@SiO_2@PDA/PVDF	—	11.86	172.3	2.17	[62]
PEI-PVDF/PEI	—	—	640	20.16	[68]
HCS/P(VDF-HFP)-PEI	—	—	630.1	10.81	[70]
NBT-PEI/NBT-P(VDF-HFP)	—	5	828.3	25.0	[71]
P(VDF-HFP)/PMMA-$SrTiO_3$@Al_2O_3/P(VDF-HFP)/PMMA-P(VDF-HFP)/PMMA	—	6.12	400	14.36	[77]
BN-P(VDF-HFP)/BT-BN	—	—	562.6	19.4	[79]
F-PI/P(VDF-HFP)/F-PI	120	—	500	5.2	[81]
P(VDF-HFP)-PMMA/P(VDF-HFP)-P(VDF-HFP)	—	10.34	577.3	16.07	[83]
PVDF-Au/PMSQ-PVDF	—	13.44	704.24	22.421	[84]
$BaTiO_3$/PVDF-P(VDF-HFP)-BNNS/PVDF	—	12	720	22.72	[87]
KN/(PVDF-PMMA)-TO/(PVDF-PMMA)-(PVDF-PMMA)	—	—	548.1	21.61	[88]
PCPCP	—	10.83	297.8	6.65	[94]
PMPMP	—	7.5	866	38	[90]
Al_2O_3/P(VDF-TrFE)/Al_2O_3/P(VDF-TrFE)/Al_2O_3	—	40	1231.5	108	[95]
$Ba_{0.6}Sr_{0.4}TiO_3$/PVDF(0-1-3-1-0)	—	11.1	300	9.3	[98]
$Ba_{0.6}Sr_{0.4}TiO_3$/PVDF(1.5-1-0-1-1.5)	—	10.7	280	7	
BNNS-$BaTiO_3$/PEI(500-200-100 nm)-BNNS	—	5.9	577.7	16.38	[99]

90 MPa的低弹性模量，突破了低损耗介电材料中高导热与低模量难以兼得的局限. 该薄膜制备工艺操作简便且具备规模化生产潜力.

综上所述, 高性能柔性复合电介质的研究正通过多维度创新策略实现从实验室到产业化的跨越. 在制备工艺上, 卷对卷技术和双轴滚压技术是目前规模化生产的重要方向, 能够制备出大面积、性能均匀的薄膜, 但目前成功案例仍然较少, 工艺的可重复性和普适性、材料的耐高温高压特性以及机械强度仍需进一步突破.

7 总结与展望

柔性复合电介质凭借其快速充放电特性、优异的疲劳寿命及成本优势，在航空航天与柔性电子等领域展现出重要应用价值. 然而, 其储能密度远低于电池与超级电容器, 严重制约了器件轻量化与集成化发展. 本文系统梳理了通过多尺度结构设计提升储能性能的创新路径:从纳米尺度的填料调控(含量、维度、取向), 到界面工程(改性、交联、核壳结构), 再到宏观层级组装(双层/三层/多层膜), 逐步实现了介电常数与击穿强度的协同优化.

表1对本文所述介电材料的性能做了归纳. 从表中数据可知: (1) 表中储能密度大于20 J/cm^{3}的复合介电材料, 如NBT-PEI/NBT-P(VDF-HFP), 其结构设计并不拘泥于一种策略，而是将填料调控、界面工程和层级结构设计进行综合考虑，这为进一步设计高储能密度的复合介电材料提供了思路和方向; (2) 目前大多数复合介电材料的设计只针对常温, 对高温的考虑较少, 然而对于卷对卷这类大规模制备工艺而言，材料的热稳定性是必须考虑的因素. 因此, 要想实现复合介电材料从实验室制备跨越到工业级制备，还需设计出在高温下依然能保持良好性能的介电材料.

尽管结构设计策略和人工智能显著推进了复合介电材料储能性能的优化，当前研究仍面临三重挑战: (1) 性能瓶颈-单一策略难以同时突破介电常数与击穿强度的理论极限，且高温、高电场下的稳定性与损耗控制问题尚未得到有效解决; (2) AI驱动设计的局限性-机器学习模型依赖高质量数据集, 且复杂结构(如梯度界面、多组分填料)的数字化表达与可解释性不足, 二者制约了逆向设计的精准度; (3) 规模化工艺缺口-卷对卷和双轴滚压等技术虽初步实现宏量制备，但工艺的可重复性、材料热机械稳定性与成本效益仍难以满足产业化需求.

展望未来，柔性复合电介质的研究将呈现以下趋势: (1) 高性能材料制备工艺革新. 未来的研究需在致力于开发高性能材料体系的同时，兼顾低成本与绿色环保要求，并进一步优化与完善卷对卷、双轴滚压等连续化制备工艺, 确保产品性能的一致性与可靠性, 真正实现从实验室样品到产业化商品的跨越. (2) 人工智能与跨尺度设计的深度融合. 未来应着力构建更完善、高质量的多尺度材料数据库，发展可准确描述材料复杂结构的数字化表达，并推动AI设计流程与自动化合成、表征平台闭环联动，实现新材料的高效、精准、逆向设计. (3) 仿生智能电介质设计. 借鉴生物体自修复与感知机制，设计具有损伤预警、梯度应变适应等功能的一体化电介质. 如模拟贝壳层状结构, 开发兼具高储能密度与裂纹抑制能力的柔性薄膜.

随着多学科交叉融合，柔性复合电介质有望突破瓶颈, 推动储能技术向高效、智能、可持续方向跨越.

参考文献

1 Zhang G, Brannum D, Dong D, et al. Interfacial polarization-induced loss mechanisms in polypropylene/$BaTiO_3$ nanocomposite dielectrics. Chem Mater, 2016, 28: 4646–4660

2 Li D, Guo Q, Cao M, et al. The influence of A/B-sites doping on antiferroelectricity of PZO energy storage films. Microstructures, 2023, 3: 2023007

3 Xu M, Zeng D, Wang X, et al. Optimizing the energy storage performance of $NaNbO_3$ ceramics by rare-earth-based composite perovskite Sm($Mg_{0.5}$ $Zr_{0.5}$)O_3 modification. Microstructures, 2023, 3: 20230034

4 Tian T, Lu H, Yang S, et al. Dielectric and energy storage properties of the g-C_3N_4/PVDF nanocomposite thick film. Polym Bull, 2025, 82: 999–1016

5 Priscilla J, Vijayaraghavan G V, Vilvanathaprabu A, et al. Electrical and ferroelectric properties of novel PVDF/$ZnSnO_3$ polymer nanocomposites for flexible energy storage application. J Alloys Compd, 2025, 1037: 182303

6 Bi C, Xie C, Zhang D, et al. High energy density in polymer nanocomposites with electrophilic disordered nanostructures at extreme temperature. Compos Part B-Eng, 2025, 306: 112777

7 Mei T, Zhu M, Zhang H, et al. Enhanced energy storage capacity in NBT micro-flake incorporated PVDF composites. Polymers, 2025, 17: 1486

8 Huan Y, Wang X Z, Peng B, et al. Energy storage performance of $KNbO_3$ nanofiber/P(VDF–HFP)&PMMA composite films (in Chinese). J Chin Ceram Soc, 2024, 52: 1320−1325 [郇宇, 王晓智, 彭博, 等. $KNbO_3$纳米线/P(VDF–HFP)&PMMA复合薄膜的储能性质. 硅酸盐学报, 2024, 52: 1320−1325]

9 Liu Y, Qi H, He G, et al. 2D nanoarchitecture-engineered polyetherimide dielectrics with thermally stable permittivity-breakdown dual enhancement. J Energy Storage, 2025, 132: 117781

10 Liu H, Wang J, Wang Y, et al. Interface engineering of 2D dielectric nanosheets for boosting energy storage performance of polyvinylidene fluoride-based nanocomposites with high charge–discharge efficiency. Nanoscale, 2025, 17: 3507–3517

11 Ai D, Han Y, Xie Z, et al. High temperature polyimide nanocomposites containing two-dimensional nanofillers for improved thermal stability and capacitive energy storage performance. Nano Res, 2024, 17: 7746–7755

12 Deng W, Hu S Y, Meng L X, et al. Synergistic effect of Al_2O_3@$BaTiO_3$–BNNSs hybrid fillers for improved energy storage and thermal conductivity properties of PVDF-based composites. ACS Appl Polym Mater, 2024, 6: 5183–5191

13 Zhou H, Cui B, Jia Y, et al. Achieving remarkable energy storage density in PVDF-PMMA-based composite films via 2D 3D combined nanofillers. J Energy Storage, 2025, 130: 117434

14 Huang H, Mei W, Wang Y, et al. Enhancing energy density of poly(vinylidene fluoride) composite film via addition of N-doped carbon modified boron nitride and sandwich-structural engineering. Appl Surf Sci, 2023, 640: 158311

15 Li Y, Li Y, Zhu H, et al. Simultaneously enhanced energy storage and thermal conductive properties of polyimide dielectric films via facile sandwich structure design. Polym Compos, 2025, 46: 13552–13562

16 Ren Y, Liang X, Li Q, et al. Significantly enhanced the energy density of dielectric composites by sandwich structure with highly insulating mica nanosheets. Small, 2024, 20: 2308276

17 Yin L, Wang Q, Zhao H, et al. Improved energy density obtained in trilayered poly(vinylidene fluoride)-based composites by introducing two-dimensional BN and TiO_2 nanosheets. ACS Appl Mater Interfaces, 2023, 15: 16079–16089

18 Yu C, Wang J, Yan J, et al. Langmuir–Blodgett assisted alignment of 2D nanosheets in polymer nanocomposites for high-temperature dielectric energy storage applications. J Mater Chem C, 2024, 12: 4728–4736

19 Yuan P, Xue R, Wang Y, et al. Horizontally-oriented barium titanate@polydomine/polyimide nanocomposite films for high-temperature energy storage. J Colloid Interface Sci, 2024, 662: 1052–1062

20 Yang Y, Sun H, Qiao J, et al. Improved energy storage performances of P(VDF-HFP)/BNNSs composite: role of nanosecond electric pulse. J Alloys Compd, 2025, 1010: 177880

21 Li Z, Wang J, Zou J, et al. Magnetic-assisted alignment of nanofibers in a polymer nanocomposite for high-temperature capacitive energy storage applications. Mater Horiz, 2024, 11: 4472–4481

22 Yin Z, Lan C, Liang J, et al. Enhancing energy storage performance of polymer composites with molecular semiconductors. Synth Met, 2025, 314: 117938

23 Qiao L, Luan R, Li C, et al. Enhanced energy density in polyetherimide-based nanocomposites by introducing small molecule semiconductors with high electron affinity. Mater Sci Semiconductor Processing, 2025, 198: 109776

24 Wang F, Qi H, Luo H, et al. Suppressed high-temperature conduction losses for energy storage of dielectric composites by fillers with polymorphic polar nanoregions. Adv Energy Mater, 2025, 15: 2500788

25 Liu X, Zhao K, Jiao H, et al. Optimization of dielectric properties in KNN/PVDF composite dielectrics via lattice matching-induced oriented crystallization. Mater Today Commun, 2025, 46: 112698

26 Zeng T, Li Q, Liu D, et al. Improved capacitive energy storage performance in hybrid films with ultralow aminated molybdenum trioxide integration for high-temperature applications. Mater Horiz, 2024, 11: 1539–1547

27 Feng M, Peng H, Huang Y, et al. Enhanced dielectric properties induced by the rational design of interfacial buffer layer in MoS_2/poly(arylene ether nitrile) composites. Mater Sci Semiconductor Processing, 2024, 169: 107944

28 Yu X, Yang R, Zhang W, et al. Interface engineering of polymer composite films for high-temperature capacitive energy storage. Chem Eng J, 2024, 496: 154056

29 Feng E Z, Wang Y, Sun L, et al. Interface-enhanced polyimide-based nanocomposites with superior dielectric energy storage properties. Polym Compos, 2025, 46: 4183–4196

30 Li S, Chen H, Cai Z, et al. Enhancement of energy storage performance in polymer dielectrics via monodisperse ZrO_2 nanoparticles as nanofiller. Small, 2025, 21: 2500743

31 Qin J, Feng Q, Wang T, et al. The energy-storage density of polymers/BNBT6 nanocomposites with high breakdown field. Ceramics Int, 2024, 50: 55845–55854

32 Alaba O, Bera S, Apata I, et al. Energy storage in nanocomposite films of polystyrene (PS) grafted TiO_2 nanoparticles in PS matrix. Polymer,

2025, 335: 128751
33 Hou D, Shen J, Zhou J, et al. PVDF-based nanocomposites with increased crystallinity and polar phases toward high energy storage performance. ACS Appl Energy Mater, 2024, 7: 9974–9985
34 Ni K Y, Zhao W, Bian J, et al. Polyetherimide nanocomposite with enhanced mechanical, thermal and dielectric properties by incorporating synergistically exfoliated-chemical functionalization induced hexagonal boron nitride nanosheets. Polym Compos, 2024, 45: 12256–12272
35 Liu H, Sun Y, Wang C, et al. Silver-adsorbed $Ti_{0.87}O_2$ nanosheets and UV irradiation synergistically improve the energy storage performance of polyvinylidene fluoride-based nanocomposites. J Mater Chem C, 2025, 13: 8104–8112
36 Liu S, Chen Y, Wu J, et al. Covalent interface and crosslinked network engineering enable polyarylene ether nitrile nanocomposites with enhanced thermal conductivity and high-temperature energy storage. Chem Eng J, 2025, 518: 164719
37 Zhou Y, Zhang Z, Tang Q, et al. Enhancing the high-temperature energy storage properties of PEI dielectrics by constructing trap-rich covalently cross-linked networks *via* POSS-functionalized BNNS. Mater Horiz, 2024, 11: 4348–4358
38 Wang F, Wang H, Shi X, et al. Polyimide composites crosslinked by aromatic molecules for high-temperature capacitive energy storage. Chem Eng J, 2024, 485: 149972
39 Yang X, Luo H, Chen S, et al. Boosted high-temperature capacitive energy storage in D-A-D type semiconductor/polymer composite via constructing physical cross-linking and electronic trapping. Compos Part A-Appl Sci Manufacturing, 2025, 196: 109019
40 Liu X, Chen D, Li J, et al. Atomic-level matching metal-ion organic hybrid interface to enhance energy storage of polymer-based composite dielectrics. Adv Mater, 2024, 36: 2402239
41 Zhao S, Peng W, Zhou L, et al. Metal-organic cage crosslinked nanocomposites with enhanced high-temperature capacitive energy storage performance. Nat Commun, 2025, 16: 769
42 Meng X, Zhou W, Chen X, et al. Synergistic regulation of intra-particle and inter-particle polarizations in $BaTiO_3$@Al_2O_3/PVDF nanocomposites towards boosted overall dielectric properties. Mater Today Chem, 2025, 43: 102492
43 Zhang Y, Zhang F, Zhang M, et al. Core-shell engineering of graphite nanosheets reinforced PVDF toward synchronously enhanced dielectric properties and thermal conductivity. Eur Polym J, 2024, 215: 113236
44 Fan X, Li Z, Zhang Y, et al. Engineering hierarchical interfaces in high-temperature polymer dielectrics for electrostatic supercapacitors. Mater Horiz, 2024, 11: 6073–6081
45 Zhang K, Zhou W, Lin N, et al. Fine assembly of TiO_2 on the surface of Si particles leading to enhanced dielectric performance of PVDF composites. Mater Today Chem, 2025, 45: 102644
46 Dong X, Wang Y, Wang Y, et al. Polyetherimide-based composites containing novel $BaTiO_3$@MgO nanofibers for high-temperature film capacitors. Colloids Surfs A-Physicochem Eng Aspects, 2024, 697: 134425
47 Chen J, Huang F, Zhang C, et al. Enhanced energy storage density in poly(vinylidene fluoride-hexafluoropropylene) nanocomposites by filling with core-shell structured $BaTiO_3$@MgO nanoparticals. J Energy Storage, 2022, 53: 105163
48 Zhang K, Yin R, Yang H, et al. Decoupling control of dielectric permittivity and breakdown strength in GNS/PVDF nanocomposites via introducing insulating MgO interlayer. Appl Mater Today, 2025, 46: 102868
49 Ai D, Wu C, Han Y, et al. Polymer nanocomposites with concurrently enhanced dielectric constant and breakdown strength at high temperature enabled by rationally designed core-shell structured nanofillers. J Mater Sci Tech, 2025, 210: 170–178
50 Zhang W, Liu Y, Hu Y, et al. Enhanced electrostatic energy storage of a sandwich-structured polymer composite film incorporating surface-functionalized ZnO nanosheets. ACS Appl Electron Mater, 2025, 7: 6698–6706
51 Fang C, Zhang Z, Wang J, et al. Enhanced high-temperature energy storage density in P-type NiO_x quantum dots and P(VDF-HFP) composite dielectrics. Compos Sci Tech, 2025, 269: 111230
52 Zhang T, Chen Y, Zhou S, et al. Matrix crystallinity and nanofiller compatibility optimization of polyarylether nitrile nanocomposite films for enhanced high-temperature energy storage. Chem Eng J, 2025, 521: 166848
53 Gu Z, Weng L, Wang X, et al. Preparation and energy storage properties of PEN/PANI@BT composite films. J Alloys Compd, 2025, 1020: 179326
54 Chen Y, Yu T, Chang X, et al. Polyimide-coated MgO nanoparticles improves high-temperature energy storage performance in polyetherimide-based nanocomposite films. Chem Eng J, 2024, 497: 154779
55 Wang F, Luo H, Chen H, et al. Surface-confined winding assembly of SiO_2 on the surface of $BaTiO_3$ leading to enhanced performance of dielectric nanocomposites. Adv Funct Mater, 2024, 34: 2410862
56 Gao L, Zhang J, Chen Z, et al. Enhancing energy storage property of polymer nanocomposites by rationally regulating shell thickness of core–shell structured nanoparticles. Polym Compos, 2023, 44: 3567–3579
57 Liu Y, Qian J, Guo Y, et al. High energy storage density achieved in polymer composites by hierarchical interface engineering design. Chem Eng J, 2025, 505: 159343

58 Chen X, Shi Y, Zhang K, et al. Synergistically depressed dielectric loss and elevated breakdown strength in core@double-shell structured Cu@CuO@MgO/PVDF nanocomposites. Polymer, 2024, 307: 127321

59 Lin J, Hu L, Feng M. Poly(arylene ether nitrile) composites modulated via core@double-shell structured barium titanate for high-temperature dielectric applications. Colloids Surfs A-Physicochem Eng Aspects, 2024, 686: 133377

60 Cao X, Zhang N, Zhao L, et al. Construction of sandwich-layered polyimide hybrid films containing double core–shell structured fillers for high energy storage density. Polym Compos, 2024, 45: 4447–4458

61 Liu H, Wang Z, Peng Y, et al. Significantly enhanced electrostatic energy density of a PVDF-based film with [001]-oriented rutile TiO_2 fillers via multilayer interfacial engineering. ACS Appl Energy Mater, 2024, 7: 4294–4302

62 Xu H, Yu Y, Weng L, et al. Effect of structural design of core-shell particles and core-shell-shell particles on PVDF dielectric energy storage composite films. J Mater Res Tech, 2024, 31: 3320–3331

63 Wang F, Luo H, Zhai D, et al. Dielectric nanocomposites with high energy density by doping core-double shell structured fillers. Compos Part A-Appl Sci Manufacturing, 2022, 159: 107019

64 Zhang C, Zhang N, Guo H, et al. Introducing the SiO_2@mesoporous SiO_2@Ag nano-hybrids to regulate the energy storage performance of composite dielectrics. J Energy Storage, 2025, 132: 117914

65 Ren Z, Shi Z, Tang Q, et al. Core-shell TiO_2@Au nanofibers derived from a unique physical coating strategy for excellent capacitive energy storage nanocomposites. Adv Funct Mater, 2024, 34: 2401907

66 Wu Q, Feng Z, Cai Z, et al. Poly(methyl methacrylate)-based ferroelectric/dielectric laminated films with enhanced energy storage performances. Adv Compos Hybrid Mater, 2022, 5: 1137–1144

67 Chen S, Hu H, Li J, et al. Enhanced energy density and charge–discharge efficiency of the bilayer film over a broad temperature range. ACS Appl Energy Mater, 2024, 7: 9414–9421

68 Ma Y, Lin Y, Zhang Y, et al. PEI-based all-organic composite films with simultaneous excellent energy storage density and high efficiency. J Mater Chem A, 2024, 12: 12112–12118

69 Zhao X, Zhang L, Fan Z, et al. Excellent high-temperature dielectric energy storage performance in bilayer nanocomposites with high-entropy ferroelectric oxide fillers. Nat Commun, 2025, 16: 5570

70 Yin P, Pang K, Tang Q, et al. Significant dielectric energy storage enhancement in layered polymer films with heterogeneous carbon/silica nanospheres. Mater Horiz, 2025, 12: 7959–7968

71 Fan Z, Dai J, Huang Y, et al. Superior energy storage capacity of polymer-based bilayer composites by introducing 2D ferroelectric micro-sheets. Nat Commun, 2025, 16: 1180

72 Guo Y, Zhao W, Li D, et al. Ultra-high capacitive energy storage density at 150°C achieved in polyetherimide composite films by filler and structure design. Adv Mater, 2025, 37: 2415652

73 Ji M, Min D, Li Y, et al. Improved energy storage performance of polyimide nanocomposites by constructing the meso- and macroscopic interfaces. Mater Today Energy, 2023, 31: 101200

74 Chen J, Wang Z, Zhang X, et al. Enhanced energy density at low operating field strength of laminated multicomponent polymer-based composites via regulation of electrical displacement. J Phys D-Appl Phys, 2023, 56: 134003

75 Liu Y, Luo H, Xie H, et al. Trilayer PVDF nanocomposites with significantly enhanced energy density and energy efficiency using $0.55Bi_{0.5}Na_{0.5}TiO_3$-$0.45(Sr_{0.7}Bi_{0.2})TiO_3$ nanofibers. Microstruct, 2023, 3: 2023008

76 Hu J, Liu F. Enhancing energy density of $BaTiO_3$-$Bi(M)O_3$@SiO_2/PVDF nanocomposites via filler component modulation and film structure design. Nanomaterials, 2025, 15: 569

77 Duan L, Chen J, Wang P, et al. High energy density and efficiency of laminated polymeric blend-based composites via introducing ultra-low content micrometer sheets. J Energy Storage, 2024, 101: 113788

78 Wu X, Song G, Zhang X, et al. Multilayer polyetherimide films incorporating alumina nanolayers for dielectric capacitors. Chem Eng J, 2022, 450: 137940

79 Chen C, Xie Y, Zhang M, et al. Significantly enhanced energy storage properties in sandwich-structured polymer composites with self-assembled boron nitride layers. Appl Surf Sci, 2022, 598: 153673

80 Zhang F, Li X, Lan Z, et al. Sandwich-structured cellulose acetate dielectric films toward high-temperature energy storage application. Carbohydrate Polyms, 2025, 366: 123934

81 Wang J, Zheng Y, Peng B, et al. Enhancing high-temperature energy storage in all-organic composites through the polyfluorine effect. J Energy Storage, 2025, 112: 115559

82 Qian Y, Du H, Lei L, et al. Ultra-low loadings of gold nanoparticles significantly boost capacitive energy storage of multilayer polymer composites. J Mater Chem C, 2024, 13: 868–875

83 Yin P, Hao M, Bie X, et al. Remarkably boosting capacitive energy storage of layer-structured nanocomposites via the incorporation of Au

quantum dots. J Colloid Interface Sci, 2025, 687: 230–237
84 Chang Z, Shi Z, Liu Y, et al. Achieving significantly boosted dielectric energy density of polymer film via introducing a bumpy gold/polymethylsilsesquioxane granular blocking layer. Small, 2024, 20: 2407299
85 Chen Z X, Zhu L, Wang C, et al. Enhanced energy storage performance of layered polymer composites with an ultralow loading rate of TNSs@PDA. J Energy Storage, 2025, 106: 114525
86 Zhang Y, Lin Y, Ma Y, et al. Synergistically enhanced discharged energy density and efficiency achieved in designed polyetherimide-based composites *via* asymmetrical interlayer structure induced optimized interface effectiveness. Mater Horiz, 2024, 11: 4759–4768
87 Zhang Y, Ma Y, Lin Y, et al. Ultrahigh breakdown strength and discharge energy density of newly designed asymmetric sandwich-structured PVDF-based nanocomposite film. J Mater Chem C, 2023, 11: 13429–13437
88 Wang Y, Zhao L, Chen R, et al. Gradient-structure-enhanced dielectric energy storage performance of flexible nanocomposites containing controlled preparation of defective TiO_2 and ferroelectric $KNbO_3$ nanosheets. Nano Res, 2024, 17: 4079–4088
89 Zhang Q, Zhu Z, Zhu J, et al. High energy storage performances in multilayer composites via spatial structure design. Compos Sci Tech, 2025, 270: 111286
90 Bera S, Thantirige R, Kadam S A, et al. High-density capacitive energy storage in low-dielectric-constant polymer PMMA/2D mica nanofillers heterostructure composite. Molecules, 2024, 29: 4671
91 Zhang K, Ma Z, Fu Q, et al. Multi-layered boron nitride/polyimide high-temperature capacitor dielectric film. Mater Today Energy, 2022, 29: 101093
92 Zhang W, Lv S, Chen Q, et al. Improvement of high-temperature energy storage performance of PC/FPE all-organic composite dielectrics based on functional multilayer structure design. J Energy Storage, 2025, 124: 116934
93 Li S, Qu J, Wang J, et al. Scalable multilayered dielectric polymer film exhibiting significantly improved high-temperature energy density. Surfs Interfaces, 2024, 51: 104632
94 Gao L, Zhang Y, Xiao Q, et al. Optimizing energy storage density of the multi–layer composite of poly(vinylidene fluoride) and nano–Ni plated $CaCu_3Ti_4O_{12}$ with an ultralow filling content. Compos Sci Tech, 2024, 245: 110353
95 Li X, Chen X, Wang J, et al. Ultrahigh capacitive energy storage in a heterogeneous nanolayered composite. Adv Funct Mater, 2024, 34: 2410823
96 Sun H, Zhang T, Yin C, et al. Significantly enhanced high-temperature energy storage performance for polymer composite films with gradient distribution of organic fillers. Chem Eng J, 2024, 497: 154546
97 Liang X, Li Q, Ren Y, et al. Nanoclay reinforced polymer composite dielectrics for ultra-balanced electrostatic energy storage. Adv Funct Mater, 2024, 34: 2408719
98 Liu Z, Wang Z, Yi Z, et al. Structural design and enhanced energy density of $Ba_{0.6}Sr_{0.4}TiO_3$/PVDF nanocomposites with multilayer gradient structure. Ceramics Int, 2024, 50: 51661–51670
99 Dang Z, Lin Y, Yuan Q, et al. Ultrahigh dielectric energy density and efficiency in PEI-based gradient layered polymer nanocomposite. Adv Funct Mater, 2024, 34: 2406148
100 Li M, Zhu Y, Wang R, et al. A bi-gradient dielectric polymer/high-*K* nanoparticle/molecular semiconductor ternary composite for high-temperature capacitive energy storage. Adv Sci, 2023, 10: 2302949
101 Shang Y, Feng Y, Zhang C, et al. Double gradient composite dielectric with high energy density and efficiency. J Mater Chem A, 2022, 10: 15183–15195
102 Feng Y, Xue J P, Zhang T D, et al. Double-gradients design of polymer nanocomposites with high energy density. Energy Storage Mater, 2022, 44: 73–81
103 Zhang S. High entropy design: a new pathway to promote the piezoelectricity and dielectric energy storage in perovskite oxides. Microstructures, 2023, 3: 2023003
104 Gupta S, Mahmood A, Shetty P, et al. Data extraction from polymer literature using large language models. Commun Mater, 2024, 5: 269
105 Gormley A J, Webb M A. Machine learning in combinatorial polymer chemistry. Nat Rev Mater, 2021, 6: 642–644
106 Liu D D, Li Q, Zhu Y J, et al. High-throughput phase field simulation and machine learning for predicting the breakdown performance of all-organic composites. J Phys D-Appl Phys, 2024, 57: 415502
107 Kuenneth C, Ramprasad R. polyBERT: a chemical language model to enable fully machine-driven ultrafast polymer informatics. Nat Commun, 2023, 14: 4099
108 Kim C, Chandrasekaran A, Huan T D, et al. Polymer genome: a data-powered polymer informatics platform for property predictions. J Phys Chem C, 2018, 122: 17575–17585
109 Aldeghi M, Coley C W. A graph representation of molecular ensembles for polymer property prediction. Chem Sci, 2022, 13: 10486–10498
110 Gurnani R, Shukla S, Kamal D, et al. AI-assisted discovery of high-temperature dielectrics for energy storage. Nat Commun, 2024, 15: 6107
111 Huan T, Rishi G, Chiho K, et al. Design of functional and sustainable polymers assisted by artificial intelligence. Nat Rev Mater, 2024, 9: 866–

886

112 Zhang Y, Xu T, He L, et al. High-performance polyimide design: machine learning–Accelerated multiobjective optimization. ACS Appl Mater Interfaces, 2025, 17: 51220–51231

113 Wang Q, He W, Deng Y, et al. Machine learning-driven interfacial characterization and dielectric breakdown prediction in polymer nanocomposites. Compos Part B-Eng, 2025, 296: 112226

114 Zhu M X, Deng T, Yin Z H, et al. Rational design of polymer composites with desired dielectric properties by random forest classification. IEEE Trans Dielect Electr Insul, 2024, 31: 1882–1889

115 Zhang C, Chen X. FerroAI: a deep learning model for predicting phase diagrams of ferroelectric materials. npj Comput Mater, 2025, 11: 282

116 Yang R, Ai D, Fan S, et al. Aramid dielectric co-polymer: from molecular engineering to roll-to-roll scalability for high-temperature capacitive energy storage. Energy Environ Sci, 2025, 18: 3718–3729

117 Yang M, Li H, Wang J, et al. Roll-to-roll fabricated polymer composites filled with subnanosheets exhibiting high energy density and cyclic stability at 200°C. Nat Energy, 2024, 9: 143–153

118 Lu Y, Chi J, Chen W, et al. Robust flexible microwave dielectric film with high thermal conductivity and ultralow loss. Adv Funct Mater, 2026, 36: e23628

Summary for “柔性复合电介质结构设计与储能优化”

Structural design and energy storage optimization of flexible composite dielectrics

Chen Wang[1], Ziyue Tian[2], Jundong Liu[3], Liang Zhao[3], Fan Zhang[3*] & Hailong Hu[1*]

[1] *Research Institute of Aerospace Technology, Central South University, Changsha 410083, China*
[2] *School of Metallurgy and Environment, Central South University, Changsha 410083, China*
[3] *School of Minerals Processing and Bioengineering, Central South University, Changsha 410083, China*
* Corresponding authors, E-mail: fan.zhang@csu.edu.cn; hailonghu@csu.edu.cn

Flexible composite dielectric materials, with their rapid charge-discharge characteristics, cost-effectiveness advantages, and excellent fatigue resistance, demonstrate significant application value in fields such as aerospace devices and flexible wearable electronic systems. However, the energy storage density of these materials is significantly lower than that of batteries and supercapacitors, which constitutes a critical bottleneck hindering the lightweight and miniaturization process of dielectric capacitors.

This review aims to enhance the energy storage density of flexible dielectrics as its core objective, conducting systematic research on material structural design and performance optimization. We firstly elucidate the synergistic optimization mechanism between polarization control and energy loss suppression, and subsequently adopt a multi-scale structural design perspective to comprehensively review recent advances across three major research aspects. (1) Filler system regulation: In-depth analysis of the structure-property relationships involving nanofiller content gradients, dimensional effects (0D/1D/2D), and directional alignment on dielectric response and energy storage characteristics; (2) interfacial engineering strategies: focused exploration of innovative approaches including surface modification, crosslinked network construction, and core-shell structure design for enhancing interfacial polarization and suppressing leakage currents; (3) macroscopic assembly architectures: comparative analysis of interlayer coupling effects in bilayer/trilayer/multilayer film structures and their synergistic enhancement mechanisms on breakdown strength and energy density. These multi-scale strategies, ranging from nanoscopic filler engineering to macroscopic layered assembly, collectively contribute to breaking the inherent trade-off between high permittivity and high breakdown strength, which is pivotal for achieving superior energy storage performance. Moreover, this work highlights the groundbreaking potential of artificial intelligence (AI)-driven methodologies for the reverse design of dielectric materials. By exploiting machine learning models trained on extensive datasets, AI can predict properties and identify novel polymer structures or composite formulations beyond conventional experimental reach, significantly accelerating the discovery of materials with tailored high-temperature stability and energy storage capabilities, enabling a paradigm shift from traditional trial-and-error approaches to data-driven rational design. In terms of manufacturing, the latest advancements in the scalable manufacturing of dielectric materials are also discussed. Industrial-scale production techniques, primarily roll-to-roll processes and biaxial rolling technologies, are crucial for transitioning laboratory-scale innovations into commercially viable products. These advanced manufacturing methods enable the production of large-area, high-quality dielectric films with consistent performance, which is essential for meeting the demands of modern electronics.

Multiscale structural design and artificial intelligence have significantly advanced the optimization of energy storage performance in dielectric materials. However, challenges remain, including suboptimal energy storage performance, AI-driven complex material design, and scalable manufacturing processes. Future research directions include innovation in high-performance material preparation processes, deep integration of AI with cross-scale structural design, and bionic design of intelligent dielectrics. With the convergence of multiple disciplines, flexible composite dielectrics are expected to break through developmental bottlenecks and drive energy storage technology toward higher efficiency, intelligence, and sustainability.

flexible composite dielectrics, AI, structural design, energy storage devices, scale-up preparation

doi: 10.1360/CSB-2025-5768