Open Journal of Natural Science 自然科学, 2023, 11(2), 227-235
Published Online March 2023 in Hans. https://www.hanspub.org/journal/ojns
https://doi.org/10.12677/ojns.2023.112027

Hans汉斯

膨胀石墨基复合材料在电化学中的应用

陈　哲

武汉工程大学化学与环境工程学院，湖北　武汉

收稿日期：2023年2月16日；录用日期：2023年3月15日；发布日期：2023年3月22日

摘　要

膨胀石墨(EG)是由天然鳞片石墨制得的一种疏松多孔的蠕虫状新型碳材料，具有多孔结构、大比表面积、高表面能、良好的导电性和机械柔韧性等优点，有着广泛的用途。为了进一步提高原始多孔材料的性能，常常会将多孔材料与其他材料相结合，构建的复合材料能表现更优异的性能。在这篇综述中，着重介绍了基于膨胀石墨与金属纳米粒子、金属氧化物、金属硫化物、金属氢氧化物、导电聚合物以及金属有机骨架等构建的复合材料在电化学传感、电催化、电化学储能等方面的应用。

关键词

膨胀石墨，复合材料，电化学

Application of Expanded Graphite Matrix Composites in Electrochemistry

Zhe Chen

School of Chemical and Environmental Engineering, Wuhan Institute of Technology, Wuhan Hubei

Received: Feb. 16th, 2023; accepted: Mar. 15th, 2023; published: Mar. 22nd, 2023

Abstract

Expanded graphite (EG) is a new type of loose and porous worm-like carbon material made from natural flake graphite. It has many advantages, such as porous structure, large specific surface area, high surface energy, good conductivity and mechanical flexibility, and has a wide range of applications. In order to further improve the performance of original porous materials, porous materials are often combined with other materials, and the composite materials constructed can perform better performance. In this review, the application of composite materials based on expanded graphite and metal nanoparticles, metal oxides, metal sulfides, metal hydroxides, conductive polymers, and metal-organic frameworks in electrochemical sensing, electrocatalysis, and electrochemical energy storage is emphatically introduced.

文章引用: 陈哲. 膨胀石墨基复合材料在电化学中的应用[J]. 自然科学, 2023, 11(2): 227-235.
DOI: 10.12677/ojns.2023.112027

Keywords

Expanded Graphite, Composite Materials, Electrochemistry

Copyright © 2023 by author(s) and Hans Publishers Inc.
This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY 4.0).
http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/
Open Access

1. 引言

石墨与碳纳米管、富勒烯、金刚石一样，都是碳的同素异形体。石墨属于六方晶系，具有层状结构。同层的每一个碳原子与相邻的三个碳原子相连，以 sp^2 杂化形成 σ 键。同层的每一个碳原子还剩下一个 p 轨道，因此“肩并肩”形成 π 键。而层间则是依靠相对较弱的范德华力连接[1]。天然石墨有着石墨所有的特征，根据结晶形态不同，通常可以分为晶质石墨(鳞片石墨)和隐晶质石墨(土状石墨)两类[2]。

膨胀石墨(EG)是由天然鳞片石墨制得的一种疏松多孔的蠕虫状新型碳材料。膨胀石墨除了具有石墨所拥有的良好的导电、导热、自润滑、耐高温、耐腐蚀等优点外，还具有大的比表面积、良好的柔韧性、多孔，质轻等石墨不具备的特征。本文主要介绍了近几年膨胀石墨基复合材料在电化学方面的应用。

2. 膨胀石墨的制备

膨胀石墨一般是由天然鳞片石墨经插层、水洗、干燥、膨化等步骤制得的，其中插层和膨化是决定膨胀石墨的关键步骤。插层是将一些小分子插入到石墨片层之间，膨化是让插层物在高温下气化或分解产生气体，使得石墨碳层克服范德华力沿着 C 轴方向迅速发生膨胀，体积达数十倍至数百倍[3] [4]。

2.1. 插层方法

1) 化学氧化法

由于天然鳞片石墨化学性质稳定，单独的插层剂很难直接插入到石墨片层之间，因此需要借助氧化剂。将氧化剂、插层剂和天然鳞片石墨在一定温度下，按一定比例混合。在强氧化剂的作用下，天然鳞片石墨被氧化失去电子，在片层之间形成正电荷。在片层间正电荷的排斥作用下，片层之间的距离增大，同时由于带上正电荷，因此阴离子插层剂就容易进入到石墨片层之间，从而形成石墨层间化合物。目前多采用 $KMnO_4$、$K_2Cr_2O_7$、$HClO_4$、H_2O_2、CrO_3 等作为氧化剂，H_2SO_4、HNO_3、H_3PO_4 等作为插层剂[5] [6]。

如图 1 所示，传统的化学氧化法工艺简单，但是存在高污染，高能耗，酸液浪费等问题，同时最常用的插层剂 H_2SO_4，也使得石墨层间化合物含硫，限制了膨胀石墨的应用。

2) 电化学氧化法

电化学氧化法是在一定的电流下，主要以插层物的水溶液为电解液，将石墨与辅助电极构成阳极，再在电解液中插入阴极板，构成闭合回路。通电时阳极区的石墨失去电子，石墨片层逐渐带上正电荷，在同种电荷相斥的作用下，石墨片层距离增大。之后，在静电引力和浓度差的作用下，插层剂进入石墨层间，从而形成可膨胀石墨。插层过程受电流密度、电解液浓度、电解温度、电解时间的影响，此外，还受到极板的选择、电解装置等因素的影响[7] [8] [9]。

电化学氧化法的制备过程如图 2 所示。与化学氧化法相比，电化学氧化法可以不用氧化剂，酸用量小，酸液可回收多次利用，容易调控反应时间和电参数，但对反应设备要求较高。

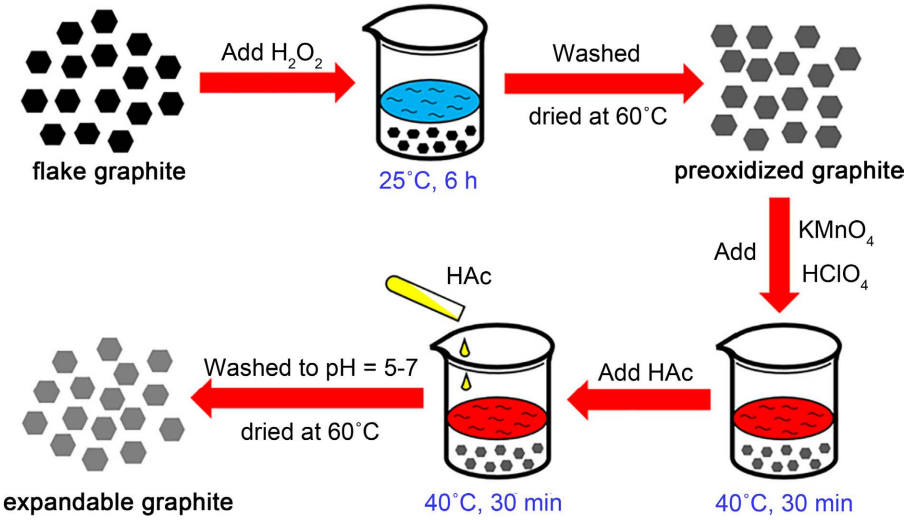

Figure 1. The production process of preparing expanded graphite by chemical oxidation [5]
图 1. 化学氧化法制备膨胀石墨的制作过程[5]

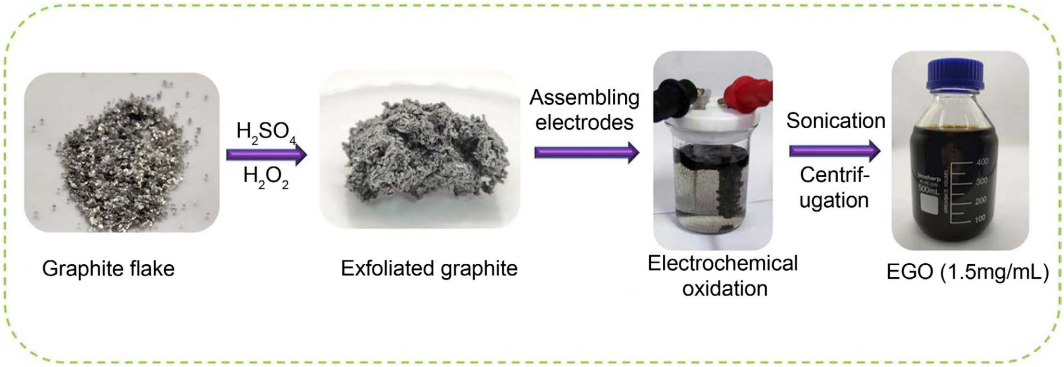

Figure 2. The production process of preparing expanded graphite by electrochemical oxidation [10]
图 2. 电化学氧化法制备膨胀石墨的制作过程[10]

3) 气相扩散法

气相扩散法是将插层物和鳞片石墨分别置于真空密封耐热管的两端，加热有插层物的一端，使插层物升华为气态小分子，由于密封管两端的温度差所形成的压差，使插层物以小分子的状态进入鳞片石墨层间，从而制得石墨层间化合物，其制备过程如图 3 所示[11]。

气相扩散法可以控制可膨胀石墨阶层数，反应需在真空环境下进行，制备成本高。

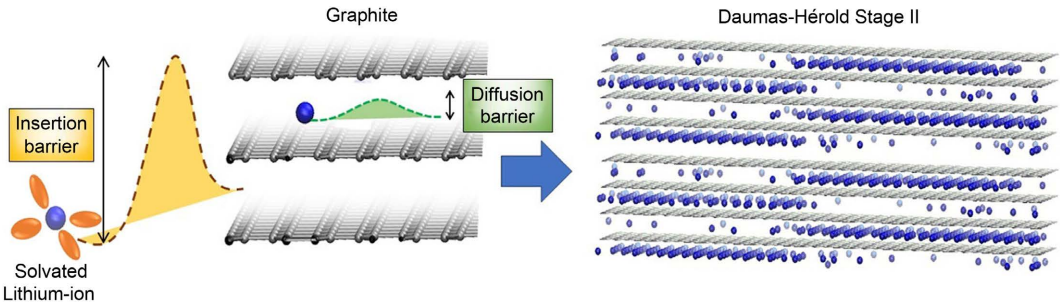

Figure 3. The production process of prepared expanded graphite by meteorological diffusion method [11]
图 3. 气象扩散法制备膨胀石墨的制作过程[11]

2.2. 膨胀方法

1) 高温膨胀法

高温膨胀法是首先将反应容器预热，以防止膨化时吸热。之后再迅速取出，倒入一定量的可膨胀石墨，再迅速高温加热，见图 4。石墨插层插层化合物在短时间内气化或分解产生气体，使石墨层间距增大，得到膨胀石墨[12] [13]。

Xiaojing Li 等，采用化学氧化和高温膨胀法，通过调节氧化剂 $KMnO_4$ 和天然石墨的质量比，合成了层间距可调的微膨胀石墨作为钾离子电池的负极，微膨胀石墨的层间距分别为 0.335 nm、0.338 nm、0.341 nm、0.349 nm [14]。Jianchao Zhao 等，采用浓 H_2SO_4 氧化插层、高温膨胀后制得膨胀石墨。再与 $FeCl_3$ 或/和尿素球磨，制得含 Fe 或/和 N 的石墨插层化合物，用于氧化还原反应的催化剂。这是一种新的无水且绿色的合成方法，为无贵族金属催化也提供了可能[15]。

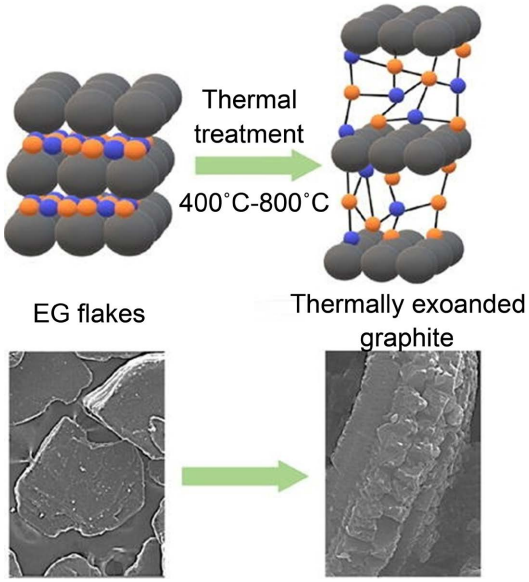

Figure 4. The production process of preparing expanded graphite by high-temperature expansion method [6]
图 4. 高温膨胀法制备膨胀石墨的制作过程[6]

该方法操作简单，反应时间短，还可以对膨胀石墨表面进行改性，但实验产品纯度较低，且操作过程中存在安全隐患。

2) 微波法

由于石墨具有良好的导电性，其内部在微波的作用下就会产生很强的涡电流，由于电流的热效应，因此会产生很多热量，使得可膨胀石墨迅速膨胀[16]。图 5 中显示了微波法制备膨胀石墨的大致流程。

与高温膨胀法相比，微波法加热更加均匀，微波加热的时间和功率容易控制，操作更加方便、安全、高效，制得的膨胀石墨一般孔径更小。

除以上常见的方法外，也存在一些其他的制备方法，如爆炸法[18]、超声辅助法[19]、熔融法[20]等。

3. 膨胀石墨基复合材料的类型

为了提高原始多孔材料的性能，常常会将多孔材料与其他材料相结合来制备复合材料。作为多孔材料的一类，通过将膨胀石墨与其他功能材料相结合，构建的复合材料可能会显示出良好的协同效应或者独特的性能，这些性能优于单个材料的性能。

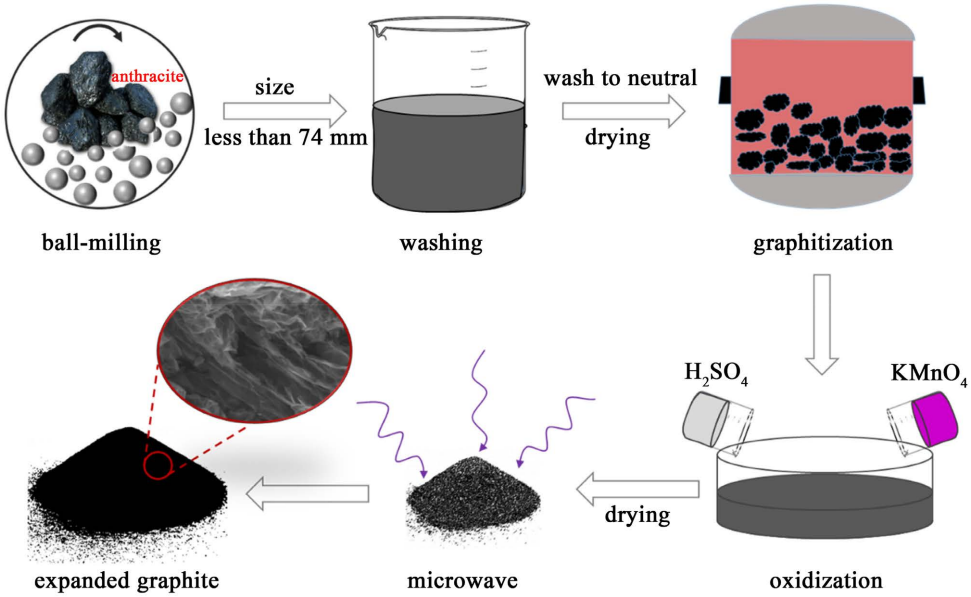

Figure 5. The production process of preparing expanded graphite by microwave method [17]
图 5. 微波法制备膨胀石墨的制作过程[17]

3.1. 金属纳米粒子/膨胀石墨复合材料

金属纳米粒子由于其独特的物理化学性质，在各种实际应用中得到了广泛的研究。然而，裸金属纳米粒子由于其较高的表面能，通常会出现严重的团聚现象，不可避免地限制了它们的储存、加工和进一步的应用。为了克服这些缺点，人们开发了将金属纳米颗粒掺杂到其他材料中，如介孔二氧化硅、沸石、还原氧化石墨烯、碳纳米管、MOF、COF 等。由于膨胀石墨具有多孔结构，大的比表面积、高的表面能，因此成为了支撑活性金属纳米颗粒的理想载体。

Zhao Qiang 等，以膨胀石墨和锂(Li)粉为原料，通过简单的混合、压制和加热熔融的方法制备了 Li-EG 复合阳极。该电极有效地抑制了锂枝晶的形成，且在 10 $mA\cdot cm^{-2}$ 的超高电流密度下循环 1500 次也能表现出良好的性能。这都是由于膨胀石墨具有优异的电化学稳定性、丰富的孔隙率、良好的电导率和机械柔韧性等优点[21]。Li Qun 等，通过简单的光沉积，制备了三维膨胀石墨，块状石墨和活性炭三种不同碳载体的铂催化剂，并将其应用于苯的催化氧化。以 $H_2PtCl_6\cdot 6H_2O$ 和膨胀石墨为原料，在紫外光的照射下合成的铂/膨胀石墨催化剂，该催化剂表现出了较好的活性，并且反应温度比铂分别负载在块状石墨和活性炭上的催化剂分别低 20℃和 60℃，为低温苯催化氧化提供了一种新的催化剂。此外，0.5 wt%铂/膨胀石墨催化剂还表现出优异的稳定性、良好的耐水性和高回收性。铂纳米粒子和膨胀石墨之间的协同效应有利于反应物的吸附和电子转移，显著提高了催化活性[22]。显然，通过在金属纳米颗粒的制作过程中引入膨胀石墨可以充当金属自身的载体，有利于反应过程中离子传输，从而提高化学反应的效率，对于提高材料的电化学性能表现有一定的促进作用。

3.2. 金属氧化物/膨胀石墨复合材料

金属氧化物有着广泛的用途，改善它们的性能并扩大它们的用途，将金属氧化物与膨胀石墨相结合，形成金属氧化物/膨胀石墨复合材料有着深远意义的。Potlako J. Mafa 等，将 CeO 负载在膨胀石墨上，制得二氧化铈/膨胀石墨光阳极。该电极对水中的 2,4-二氯酚进行光电催化降解，在最佳的酸碱度和电流密度条件下，去除率高达 98.7%，表现出了良好的降解性能[23]。除了用于催化外，Wenjie Huang 等，将二

氧化铈/膨胀石墨材料用于 Cd^{2+}和 Pb^{2+}重金属的检测，最低检测浓度分别为 0.39 μg·L^{-1} 和 0.21 μg·L^{-1} [24]。Xinyue Chen 等，利用超声将花状的 Fe_2O_3 负载在膨胀石墨上，实现了对四溴双酚 a (TBBPA)、日落黄(SY)和柠檬黄(Tr)等多种有机物的检测，最低检测浓度分别为 1.23 nM、0.89 nM 和 2.17 nM [25]。Ndeye M. Ndiaye 等，采用采用化学气相沉积法制备了二氧化钒/膨胀石墨复合材料作为正极和碳钒氮氧化物作为负极的不对称超级电容器。在 1.8 V 的电压，1 A·g^{-1} 的电流密度下，显示出了 41.6 Wh·kg^{-1} 的能量密度、904 W·kg^{-1} 的功率密度。在电流密度为 10 A·g^{-1} 时，经过 10000 次循环，电容保持率为 93% [26]。Gehua Zheng 等，采用超声复合碳包裹的氧化钯(PdO)和膨胀石墨，实现了对四溴双酚 A (TBBPA)、对苯二酚(HQ)和邻苯二酚(CC)的同时检测，最低检测浓度分别为 1.3 nM、26 nM 和 17 nM [27]。除了将单一金属氧化物与膨胀石墨复合外，也有将多种金属氧化物与膨胀石墨复合。Tu'an Lv 等，以 $LiOH·H_2O$、$MnSO_4·H_2O$ 和 H_3PO_4 为原料，采用水热法合成了锂锰磷氧化物/膨胀石墨复合材料。之后，为了覆盖暴露其表面，将复合材料再与葡萄糖退火处理，得到锂锰磷氧化物/膨胀石墨/碳复合材料。该材料在 1 C 循环 200 次后首次放电容量为 130 mAh·g^{-1}，容量没有下降。即使在 10 C 下仍具有 102 mAh·g^{-1} 的放电容量、在 100 次循环中电容保持率为 72%的循环稳定性[28]。

3.3. 金属硫化物/膨胀石墨复合材料

二硫化钼(MoS_2)作为析氢反应电催化剂，由于其边缘活性中心不足，导电性差，限制了其效用。而膨胀石墨具有丰富的暴露的活性位点，导电性好，比表面积大，高表面能等优点，因此将二硫化钼与膨胀石墨复合，两者能表现出良好的协同效应。Hou Xiaojiang 等，采用高能球磨法对镁镍合金进行改性，然后引入二硫化钼(MoS_2)和膨胀石墨形成 Mg 10 wt% Ni-EG-MoS_2 的复合材料用于催化析氢。在 291 K 下，该复合材料在 15 min 内的最高容量和转换率分别为 740.8 mL·g^{-1} 和 91%，催化性能高于单一组分的催化性能[29]。同样地，Jun He 等，采用水热法也合成了二硫化钼/膨胀石墨复合材料用于催化析氢，其中二硫化钼是以$(NH_4)_6Mo_7O_{24}·4H_2O$、CH_4N_2S 为原料[30]。Renjie Qu 等，采用微波辅助加热一步合成镍钴硫化物/膨胀石墨复合材料用于超级电容器阳极，该材料的合成是以 $NiCl_2$，$CoCl_2$，$Na_2S_2O_3$ 为原料，合成的镍钴硫化物纳米颗粒仅 2 nm，在电流密度为 30 A·g^{-1} 下循环 2000 次后，其稳定性达到 94.4% [31]。金属氧化物与金属硫化物由于自身导电性较差，循环稳定性差使其电化学性能受到了限制，而膨胀石墨的引入可以很好的改善这一缺陷，以更稳定的膨胀石墨作为基底可以使得材料的微观结构更加稳定，同时膨胀石墨大的比表面积又可以为反应提供更多的活性位点，从而提高化学反应的效率。

3.4. 金属氢氧化物/膨胀石墨复合材料

过渡金属氢氧化物因具有多个价态，所以可以利用金属离子的氧化还原来提供赝电容，使超级电容器具有好的可逆性和快速充放电的特点。Jiawei Yuan 等，采用电沉积法制得了氢氧化镍/膨胀石墨复合材料用于超级电容器中。将 $Ni(OH)_2$ 纳米颗粒插入到膨胀石墨中，不仅有效阻止膨胀石墨的堆积，而且也阻止了 $Ni(OH)_2$ 纳米颗粒的团聚。该复合电极在 1A·g^{-1} 时，电容密度为 1719.5 F·g^{-1}；在 10 A·g^{-1} 时，电容密度为 1181.3 F·g^{-1} [32]。Zhang Xueying 等，采用真空辅助水热法，以 $Ni(NO_3)_2·6H_2O$，$Al(NO_3)_3·9H_2O$ 和尿素为原料合成镍铝氢氧化物/膨胀石墨复合材料，实现了对 NO 气体的灵敏检测，检测下限低至 100 ppb，响应时间为 2 秒[33]。Jinxue Guo 等，采用原位水热法，将镍铁层状双氢氧化物插入到膨胀石墨中，形成镍铁氢氧化物/膨胀石墨复合材料，用于电催化析氧。该材料过电位小，塔菲尔斜率低，稳定性好，是一种很有前途的廉价的析氧催化剂[34]。通过与膨胀石墨复合，可以有效的减少金属氢氧化物生成过程中的堆叠团聚现象，从而提高材料自身的有效活性面积。

3.5. 导电聚合物/膨胀石墨复合材料

导电聚合物由具有共轭 π 键的高分子经化学或电化学“掺杂”使其由绝缘体变为导体或半导体的一类高分子材料。Wang Jue 等，采用真空辅助插层原位氧化聚合法制备了聚吡咯/膨胀石墨纳米杂化材料作为电极材料。聚吡咯包裹着膨胀石墨，膨胀石墨起着支撑骨架的作用，避免了聚吡咯的体积膨胀和结构坍塌，提高了循环稳定性[35]。Chuanyin Xiong 等，采用电沉积法制备了二氧化锰/膨胀石墨复合材料和聚苯胺/膨胀石墨复合材料，两种复合材料分别在 15.26 $kW\cdot kg^{-1}$ 和 20.15 $kW\cdot kg^{-1}$ 的高功率密度下，有着 50.12 $Wh\cdot kg^{-1}$ 和 61.23 $Wh\cdot kg^{-1}$ 的高能量密度[36]。导电聚合物与膨胀石墨成功复合之后，由于其自身较好的化学稳定性，可以很好的保护好导电聚合物的微观结构，避免导电聚合物由于内阻太大而过热，从而导致结构被破坏的现象，这对于其循环使用寿命的增长具有很大的帮助。

3.6. 金属有机骨架(MOF)/膨胀石墨复合材料

金属有机骨架材料(MOFs)是一类由刚性有机配体与金属离子或金属簇通过配位键形成的具有无限网络结构的新型多孔材料，具有形貌尺寸可调、孔隙率高、比表面积大等优点，成为了电化学研究的热点。将 MOF 材料与膨胀石墨相结合，可以进一步扩展两者的用途。

Laifeng Ma 等，以 $Co(NO_3)_2\cdot 6H_2O$、2-甲基咪唑和膨胀石墨为原料，采用一锅水热法制得的钴基沸石咪唑骨架(ZIF-67)/膨胀石墨复合材料，实现了对水溶液中 Cd^{2+}、Pb^{2+}、Cu^{2+}和 Hg^{2+}等四种重金属离子的超痕量检测，最低检测浓度分别为 1.13 nM、1.11 nM、2.23 nM 和 1.28 nM。ZIF-67 具有较大吸附重金属的能力，膨胀石墨具有好的导电性，复合材料变现出了良好的协同作用[37]。由于 MOF 材料自身便具有较为灵敏的电化学响应，而膨胀石墨良好的导电性可以缩短离子的传输路径，有效减少检测时间以及增大响应峰电流，使得其实际应用范围更加广泛。

3.7. 膨胀石墨复合材料的优势

膨胀石墨成功与材料复合可以很好的利用到其自身的高电导率和化学稳定性，使材料具有更好的电化学反应活性。从以上研究内容可以看出，电化学传感器中膨胀石墨复合材料可以提高导电性，从而获得更灵敏的检测性，即更低的检出限和更宽的线性范围；在催化方面，由于其自身较大的比表面积和高表面能，可以在反应过程中提供更多的活性位点，可以提高反应的催化效率；尤其在能量存储方面，膨胀石墨良好的导电性可以提高电子/离子的传输速率，可以很好的降低自身内阻，同时其优异的稳定性对提高循环使用寿命有很大的促进作用，这使得材料往往可以获得更大的能量密度和功率密度，获得更加可观的实际应用前景。

4. 总结

本文综述了在电化学传感、电催化、电化学储能等电化学方面膨胀石墨基复合材料，这些复合材料性能可以优于单个材料。膨胀石墨基复合材料能适用于电化学主要在于：首先，膨胀石墨有着坚固且稳定的结构，大的比表面积以及高表面能，可以成为负载其他物质的理想载体。其次，膨胀石墨能与其他功能材料产生协同效应，能提高电化学性能。此外，膨胀石墨还具有多孔、良好的导电性、机械柔韧性等优点。除了常规材料外，探索与膨胀石墨相结合的其他材料也很重要。膨胀石墨基复合材料发展迅速，在众多领域显示出广阔的应用前景。

参考文献

[1] Matsunaga, T., Takagi, S., Shimoda, K., *et al.* (2019) Comprehensive Elucidation of Crystal Structures of Lithium Intercalated Graphite. *Carbon*, **142**, 513-517. https://doi.org/10.1016/j.carbon.2018.10.071

[2] Jara, A.D., Betemariam, A., Woldetinsae, G. and Kim, J.Y. (2019) Purification, Application and Current Market Trend of Natural Graphite: A Review. *International Journal of Mining Science and Technology*, **29**, 671-689. https://doi.org/10.1016/j.ijmst.2019.04.003

[3] Çalın, Ö., Kurt, A. and Çelik, Y. (2020) Influence of Expansion Conditions and Precursor Flake Size on Porous Structure of Expanded Graphite. *Fullerenes*, *Nanotubes and Carbon Nanostructures*, **28**, 611-620. https://doi.org/10.1080/1536383X.2020.1726894

[4] Liu, T., Zhang, R., Zhang, X., *et al*. (2017) One-Step Room-Temperature Preparation of Expanded Graphite. *Carbon*, **119**, 544-547. https://doi.org/10.1016/j.carbon.2017.04.076

[5] Dai, C., Gu, C., Liu, B., *et al*. (2019) Preparation of Low-Temperature Expandable Graphite as a Novel Steam Plugging Agent in Heavy Oil Reservoirs. *Journal of Molecular Liquids*, **293**, Article ID: 111535. https://doi.org/10.1016/j.molliq.2019.111535

[6] Darabut, A.M., Lobko, Y., Yakovlev, Y., *et al*. (2022) Influence of Thermal Treatment on the Structure and Electrical Conductivity of Thermally Expanded Graphite. *Advanced Powder Technology*, **33**, Article ID: 103884. https://doi.org/10.1016/j.molliq.2019.111535

[7] Terence, M.C., Silva, E.E. and Carrió, J.A.G. (2014) Electrochemically Exfoliated Graphene. *Journal of Nano Research*, **29**, 29-33. https://doi.org/10.4028/www.scientific.net/JNanoR.29.29

[8] Wu, L., Li, W., Li, P., *et al*. (2014) Powder, Paper and Foam of Few-Layer Graphene Prepared in High Yield by Electrochemical Intercalation Exfoliation of Expanded Graphite. *Small*, **10**, 1421-1429. https://doi.org/10.1002/smll.201302730

[9] Xiang, X., Feng, S., Chen, J., *et al*. (2019) Gold Nanoparticles/Electrochemically Expanded Graphite Composite: A Bifunctional Platform toward Glucose Sensing and SERS Applications. *Journal of Electroanalytical Chemistry*, **851**, Article ID: 113471. https://doi.org/10.1016/j.jelechem.2019.113471

[10] Yu, Q., Wei, L., Yang, X., *et al*. (2022) Electrochemical Synthesis of Graphene Oxide from Graphite Flakes Exfoliated at Room Temperature. *Applied Surface Science*, **598**, Article ID: 153788. https://doi.org/10.1016/j.apsusc.2022.153788

[11] Gavilán-Arriazu, E.M., Pinto, O.A., López de Mishima, B.A., *et al*. (2018) The Kinetic Origin of the Daumas-Hérold Model for the Li-Ion/Graphite Intercalation System. *Electrochemistry Communications*, **93**, 133-137. https://doi.org/10.1016/j.elecom.2018.07.004

[12] Lan, R., Su, W. and Li, J. (2019) Preparation and Catalytic Performance of Expanded Graphite for Oxidation of Organic Pollutant. *Catalysts*, **9**, 280. https://doi.org/10.3390/catal9030280

[13] Hou, B., Sun, H.-J., Peng, T.-J., *et al*. (2020) Rapid Preparation of Expanded Graphite at Low Temperature. *New Carbon Materials*, **35**, 262-268. https://doi.org/10.1016/S1872-5805(20)60488-7

[14] Li, X., Lei, Y., Qin, L., *et al*. (2021) Mildly-Expanded Graphite with Adjustable Interlayer Distance as High-Performance Anode for Potassium-Ion Batteries. *Carbon*, **172**, 200-206. https://doi.org/10.1016/j.carbon.2020.10.023

[15] Zhao, J., Dumont, J.H., Martinez, U., *et al*. (2020) Graphite Intercalation Compounds Derived by Green Chemistry as Oxygen Reduction Reaction Catalysts. *ACS Applied Materials & Interfaces*, **12**, 42678-42685. https://doi.org/10.1021/acsami.0c09204

[16] Pham, T.V., Nguyen, T.T., Nguyen, D.T., *et al*. (2019) The Preparation and Characterization of Expanded Graphite via Microwave Irradiation and Conventional Heating for the Purification of Oil Contaminated Water. *Journal of Nanoscience and Nanotechnology*, **19**, 1122-1125. https://doi.org/10.1166/jnn.2019.15926

[17] Deng, R., Chu, F., Yu, H., *et al*. (2022) Electrochemical Performance of Expanded Graphite Prepared from Anthracite via a Microwave Method. *Fuel Processing Technology*, **227**, Article ID: 107100. https://doi.org/10.1016/j.fuproc.2021.107100

[18] Wu, K.-H., Cheng, K.-F., Wang, J.-C., *et al*. (2017) Preparation of Magnetic Expanded Graphite with Microwave Absorption and Infrared Stealth Characteristics. *Materials Express*, **7**, 500-508. https://doi.org/10.1166/mex.2017.1400

[19] Liu, Z.-X., Zhang, X.-W., Zhang, W.-J., *et al*. (2019) Microwave-Assisted Fabrication of Slight-Expanded Graphite under Normal Temperature. *Materials Science and Technology*, **36**, 251-254. https://doi.org/10.1080/02670836.2019.1693730

[20] Emery, N., Hérold, C. and Lagrange, P. (2008) The Synthesis of Binary Metal-Graphite Intercalation Compounds Using Molten Lithium Alloys. *Carbon*, **46**, 72-75. https://doi.org/10.1016/j.carbon.2007.10.039

[21] Zhao, Q., Hao, X., Su, S., *et al*. (2019) Expanded-Graphite Embedded in Lithium Metal as Dendrite-Free Anode of Lithium Metal Batteries. *Journal of Materials Chemistry A*, **7**, 15871-15879. https://doi.org/10.1039/C9TA04240G

[22] Li, Q., Odoom-Wubah, T., Fu, X., *et al*. (2020) Photoinduced Pt-Decorated Expanded Graphite toward Low-Temperature Benzene Catalytic Combustion. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, **59**, 11453-11461.

https://doi.org/10.1021/acs.iecr.0c01524

[23] Mafa, P.J., Mamba, B.B. and Kuvarega, A.T. (2020) Photoelectrocatalytic Evaluation of EG-CeO_2 Photoanode on Degradation of 2,4-Dichlorophenol. *Solar Energy Materials and Solar Cells*, **208**, Article ID: 110416. https://doi.org/10.1016/j.solmat.2020.110416

[24] Huang, W., Zhang, Y., Li, Y., *et al*. (2020) Morphology-Controlled Electrochemical Sensing of Environmental Cd(2+) and Pb(2+) Ions on Expanded Graphite Supported CeO_2 Nanomaterials. *Analytica Chimica Acta*, **1126**, 63-71. https://doi.org/10.1016/j.aca.2020.06.010

[25] Chen, X., Zhang, Y., Li, C., *et al*. (2020) Nanointerfaces of Expanded Graphite and Fe_2O_3 Nanomaterials for Electrochemical Monitoring of Multiple Organic Pollutants. *Electrochimica Acta*, **329**, Article ID: 135118. https://doi.org/10.1016/j.electacta.2019.135118

[26] Ndiaye, N.M., Sylla, N.F., Ngom, B.D., *et al*. (2019) High-Performance Asymmetric Supercapacitor Based on Vanadium Dioxide/Activated Expanded Graphite Composite and Carbon-Vanadium Oxynitride Nanostructures. *Electrochimica Acta*, **316**, 19-32. https://doi.org/10.1016/j.electacta.2019.05.103

[27] Zheng, G., Zhang, Y., Nie, T., *et al*. (2019) Expanded Graphite Decorated with PdO@C Nanoparticles for Individual and Simultaneous Sensing of Multiple Phenols. *Sensors and Actuators B*: *Chemical*, **291**, 362-368. https://doi.org/10.1016/j.snb.2019.04.072

[28] Lv, T.A., Min, H., Shu, H., *et al*. (2020) $LiMnPO_4$ Nanoplates with Optimal Crystal Orientation *in Situ* Anchored on the Expanded Graphite for High-Rate and Long-Life Lithium Ion Batteries. *Electrochimica Acta*, **359**, Article ID: 136945. https://doi.org/10.1016/j.electacta.2020.136945

[29] Hou, X., Wang, Y., Hu, R., *et al*. (2019) Catalytic Effect of EG and MoS_2 on Hydrolysis Hydrogen Generation Behavior of High-Energy Ball-Milled Mg 10wt.%Ni Alloys in NaCl Solution—A Powerful Strategy for Superior Hydrogen Generation Performance. *International Journal of Energy Research*, **43**, 8426-8438. https://doi.org/10.1002/er.4840

[30] He, J., Chen, S., Yang, S., *et al*. (2020) Fabrication of MoS_2 Loaded on Expanded Graphite Matrix for High-Efficiency pH-Universal Hydrogen Evolution Reaction. *Journal of Alloys and Compounds*, **828**, Article ID: 154370. https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2020.154370

[31] Qu, R., Tang, S., Li, Y., *et al*. (2019) Outstanding Performances of Ni_2CoS_4/Expanded Graphite with Ultrafine Ni_2CoS_4 Particles for Supercapacitor Applications. *Journal of Materials Science*: *Materials in Electronics*, **30**, 5052-5064. https://doi.org/10.1007/s10854-019-00803-5

[32] Yuan, J., Tang, S., Zhu, Z., *et al*. (2017) Facile Synthesis of High-Performance $Ni(OH)_2$/Expanded Graphite Electrodes for Asymmetric Supercapacitors. *Journal of Materials Science*: *Materials in Electronics*, **28**, 18022-18030. https://doi.org/10.1007/s10854-017-7745-1

[33] Zhang, X., Ikram, M., Liu, Z., *et al*. (2019) Expanded Graphite/NiAl Layered Double Hydroxide Nanowires for Ultra-Sensitive, Ultra-Low Detection Limits and Selective NO_x Gas Detection at Room Temperature. *RSC Advances*, **9**, 8768-8777. https://doi.org/10.1039/C9RA00526A

[34] Guo, J., Li, X., Sun, Y., *et al*. (2018) *In-Situ* Confined Formation of NiFe Layered Double Hydroxide Quantum Dots in Expanded Graphite for Active Electrocatalytic Oxygen Evolution. *Journal of Solid State Chemistry*, **262**, 181-185. https://doi.org/10.1016/j.jssc.2018.03.017

[35] Wang, J., Fu, D., Ren, B., *et al*. (2019) Design and Fabrication of Polypyrrole/Expanded Graphite 3D Interlayer Nanohybrids towards High Capacitive Performance. *RSC Advances*, **9**, 23109-23118. https://doi.org/10.1039/C9RA04205A

[36] Xiong, C., Lin, X., Liu, H., *et al*. (2019) Fabrication of 3D Expanded Graphite-Based (MnO_2 Nanowalls and PANI Nanofibers) Hybrid as Bifunctional Material for High-Performance Supercapacitor and Sensor. *Journal of the Electrochemical Society*, **166**, A3965-A3971. https://doi.org/10.1149/2.0181916jes

[37] Ma, L., Zhang, X., Ikram, M., *et al*. (2020) Controllable Synthesis of an Intercalated ZIF-67/EG Structure for the Detection of Ultratrace Cd^{2+}, Cu^{2+}, Hg^{2+} and Pb^{2+} Ions. *Chemical Engineering Journal*, **395**, Article ID: 125216. https://doi.org/10.1016/j.cej.2020.125216