

高性能钴铝双金属氢氧化物超级电容器储能性能研究

李晶晶, 严威, 潘姮, 曾婷

武汉工程大学化学与环境工程学院, 湖北 武汉

收稿日期: 2024年2月29日; 录用日期: 2024年4月9日; 发布日期: 2024年4月17日

摘要

设计高性能电极材料是提高超级电容器比电容的关键, 具有挑战性。在此通过简单的共沉淀法制备了具有三维层状结构的电极材料。电化学测试表明, CoAl-LDH电极在 1 Ag^{-1} 时的比电容可达 805.0 Fg^{-1} , 循环4000圈后, 比电容仅衰减5.7%。将CoAl-LDH作为正极, 办公废纸衍生的碳材料AC为负极构建非对称超级电容器。基于CoAl-LDH//AC的非对称超级电容器(ASC)在 749.2 W kg^{-1} 时具有 34.9 Wh kg^{-1} 的高能量密度, 并且在3000次循环后具有出色的容量保持率95.6%。并由两个串联器件驱动风扇模型和小船模型。

关键词

层状双氢氧化物, 非对称超级电容器, 电化学性能, 三维结构

High Performance Co-Al Layered Double Hydroxide for Supercapacitor

Jingjing Li, Wei Yan, Heng Pan, Ting Zeng

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

Received: Feb. 29th, 2024; accepted: Apr. 9th, 2024; published: Apr. 17th, 2024

Abstract

Developing high-performance electrode materials is critical to improving the specific capacitance of supercapacitors. In this study, electrode materials with three-dimensionally layered structures were prepared using a simple co-precipitation method. The electrochemical test shows that the specific capacitance of the CoAl-LDH electrode can reach 805.0 F g^{-1} at the current density of 1 A g^{-1} , with just a 5.7% loss in specific capacitance after 4000 cycles. We have constructed an asym-

metric supercapacitor (ASC) utilizing CoAl-LDH as the positive electrode and AC, a carbon material derived from office waste paper as the negative electrode. The CoAl-LDH//AC-based ASC has a high energy density of 34.9 Wh kg^{-1} at 749.2 W kg^{-1} and an excellent capacity retention rate of 95.6% after 3000 cycles. The fan model and the boat model are driven by two connected devices.

Keywords

Layered Double Hydroxide, Asymmetric Supercapacitor, Electrochemical Performance, Three-Dimensional Structure

Copyright © 2024 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

不断增长的燃料需求和严峻的生态灾难引发了世界范围内对许多尖端技术的研究兴趣，这些技术的目标是得到高效储能和转换装置。然而，这些能源转换供应只是间歇性的，需要先进的储能装置来缓解间歇性的难题[1] [2]。在储能器件中，超级电容器(SCs)因其功率密度高、倍率能力强、循环寿命长、充放电速度快等特点而备受青睐[3]。根据超级电容器的储能机理，一般可分为双电层电容器和赝电容器。与双电层电容器相比，由于赝电容电极中电活性材料表面发生可逆的法拉第氧反应，赝电容器通常具有更高的比电容[4]。由于赝电容器的性能对电极材料的依赖性很强，开发新型电极材料是提高赝电容器性能的迫切要求。

过渡金属氧化物和氢氧化物常被用作赝电容器的电极材料。层状双氢氧化物(LDHs)具有成本低、氧化还原活性高、理论比容量大等吸引人的特点，是由类似水镁石的金属阳离子层与羟基配合而成[5] [6]。二维 LDHs 作为 ASCs 的正极备选材料之一，有着赝电容储能特性，并且具有高理论比电容，然而其组成结构影响着其应用性能。具有 Co^{2+} 离子和 Al^{3+} 离子的 CoAl-LDH 具有优异的电化学性能，在 SCs 应用中具有很大的潜力[7] [8]。活性炭是 SCs 中应用最广泛的电极材料。合理利用生物质能源废弃物制备多孔碳超级电容器电极，有效实现了生物质废弃物的利用和高性能超级电容器电极的工业化生产。Guo [9] 等人利用处理后的糠醛渣经 KOH 活化制备了微孔/介孔调整活性炭。得到的碳材料具有高比表面积、大孔体积、微孔/介孔互连结构。多孔炭在超级电容器电极材料中具有巨大的潜力。

在这里，我们通过简单的共沉淀法制备了三维层状结构的 CoAl-LDH。电化学测试表明，电极在 1 A g^{-1} 时的比电容可达 805.0 F g^{-1} ，经过 4000 次循环后电容仍保持 94.3%。将 CoAl-LDH 作为正极，办公废纸衍生的 AC 为负极构建非对称超级电容器。组装的器件(CoAl-LDH//AC)表现出优异的储能潜力，能量密度达到 34.9 Wh kg^{-1} 时的功率密度为 749.2 W kg^{-1} 。两个 ASC 串联，成功将风扇模型和小船模型驱动。

2. 实验

2.1. 材料的制备

2.1.1. CoAl-LDH 的合成

CoAl-LDH 的合成如图 1 所示。将 582.1 mg 六水合硝酸钴和 375.1 mg 九水合硝酸铝溶于 100 mL 超纯水中，滴加 1 mol L^{-1} 氢氧化钠溶液调节 pH 至 9.5。将混合溶液转入圆底烧瓶中， 95°C 恒温条件下回流 5 h，得到粉色悬浊液。离心洗涤后，在 60°C 下烘干得到产品 CoAl-LDH。

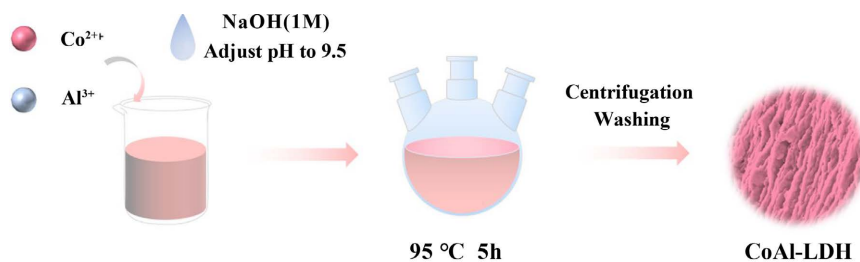


Figure 1. Schematic diagram of CoAl-LDH synthesis
图 1. CoAl-LDH 的合成示意图

2.1.2. A4 纸衍生碳(AC)的制备

将 A4 纸剪碎，置于管式炉中，在 N_2 氛围下 $400^\circ C$ 热处理 2 h 使其预碳化。随后，按照 3:1 的质量比称取 KOH，与碳化的 A4 纸粉末混合均匀后，在 N_2 氛围下 $800^\circ C$ 处理 1 h。得到的灰黑色产物，经酸洗、水洗、烘干后，最后得到产物 AC，合成流程图如图 2 所示。

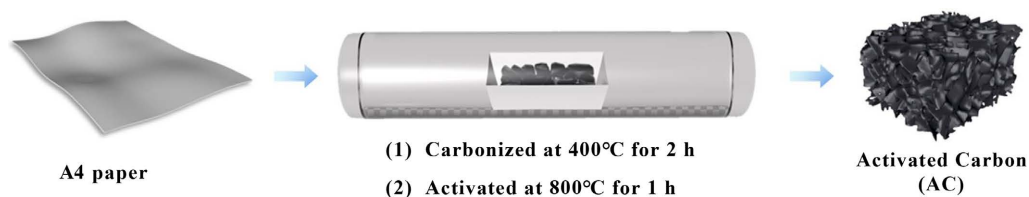


Figure 2. Preparation diagram of AC
图 2. AC 制备示意图

2.2. 工作电极的制备

工作电极组装，将活性材料与乙炔黑(导电剂)、聚四氟乙烯(10% PTFE, 粘合剂)的质量比为 8:1:1，以 N-甲基-2-吡咯烷酮作为溶剂，制成浆液后均匀的涂抹在石墨纸上，然后将其转移到烘箱中干燥过夜，每个电极的负载量约为 1.0~2.0 mg。两电极组装，以石墨纸负载的 CoAl-LDH 为正极，AC 为负极，通过正负极质量进行配比后封装起来。

2.3. 电极材料的性能测试

采用场发射扫描电镜(SEM)，透射电镜(TEM)，X 射线光电子能谱(XPS)和 X 射线衍射(XRD)对材料进行形貌元素等表征。在三电极体系中，以 2 mol L^{-1} 的 KOH 溶液作为电解质溶液，SCE 作为参比电极，石墨纸为对电极，以石墨纸为基底的电极材料作为工作电极进行电化学测试。在两电极体系中，通过正负极质量进行配比后，构建成器件进行电化学测试。

3. 结果与讨论

通过 SEM, TEM 对 CoAl-LDH 进行了形貌观察，从图 3 中可以看出，CoAl-LDH 表现出大块的片状结构形成的层级结构，片层表面还有细小的裂痕。层间紧密堆积排列的结构有助于电极反应过程中保持结构的稳定性，材料结构不发生坍塌，从而保证电极的充放电稳定性。

通过 XPS 对 CoAl-LDH 进行了分析，从图 4 中可以看出 Co 2p、O 1s 和 Al 2p 轨道的特征峰，其中 Al 2p 峰强度较小，可能因为含量较低。图 4(B)中 O 1s 谱的分峰结果显示，529.8、530.7、531.4 和 532.7 eV 处的峰分别归属于晶格氧(O_L)、羟基氧(O_{OH})、氧空位(O_V)和吸附水(O_W) [10]。图 4(C)为 Co 2p XPS 谱的拟合结果，其中观察到两对主峰和一对卫星峰。位于 780.8 和 796.9 eV 处的峰为 Co^{3+} 信号，位于 783.3

和 798.5 eV 处的峰为 Co^{2+} 信号，位于 787.0 和 803.0 eV 处的峰为卫星峰，这一结果说明 $\text{Co}^{2+}/\text{Co}^{3+}$ 同时存在于 CoAl-LDH 中。在图 4(D) 的 Al 2p 谱中，结合能为 74.2 eV 的单峰来源于 Al^{3+} (Al-O)，说明 CoAl-LDH 中存在 Al^{3+} 的氧化态[11]。

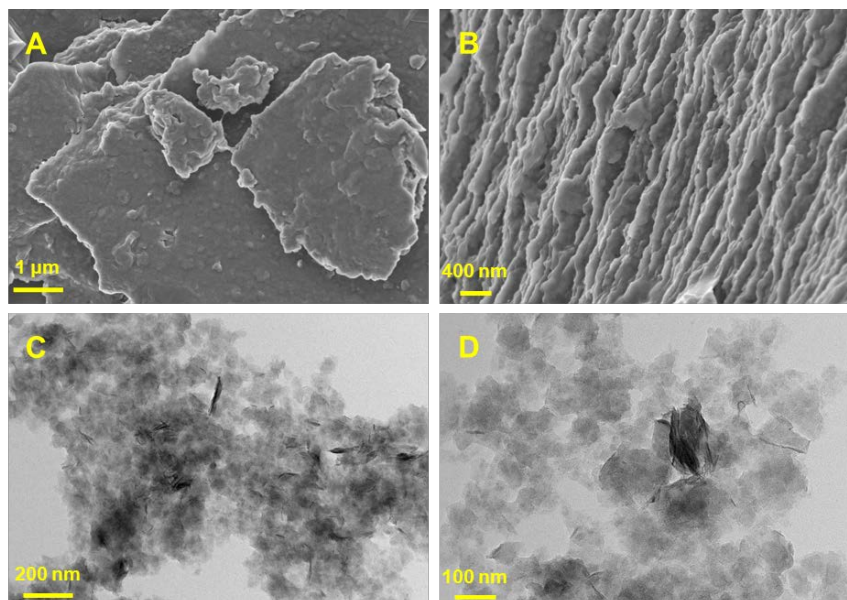


Figure 3. SEM images (A~B) and TEM images (C~D) of CoAl-LDH

图 3. CoAl-LDH 的 SEM 图像(A~B)和 TEM 图像(C~D)

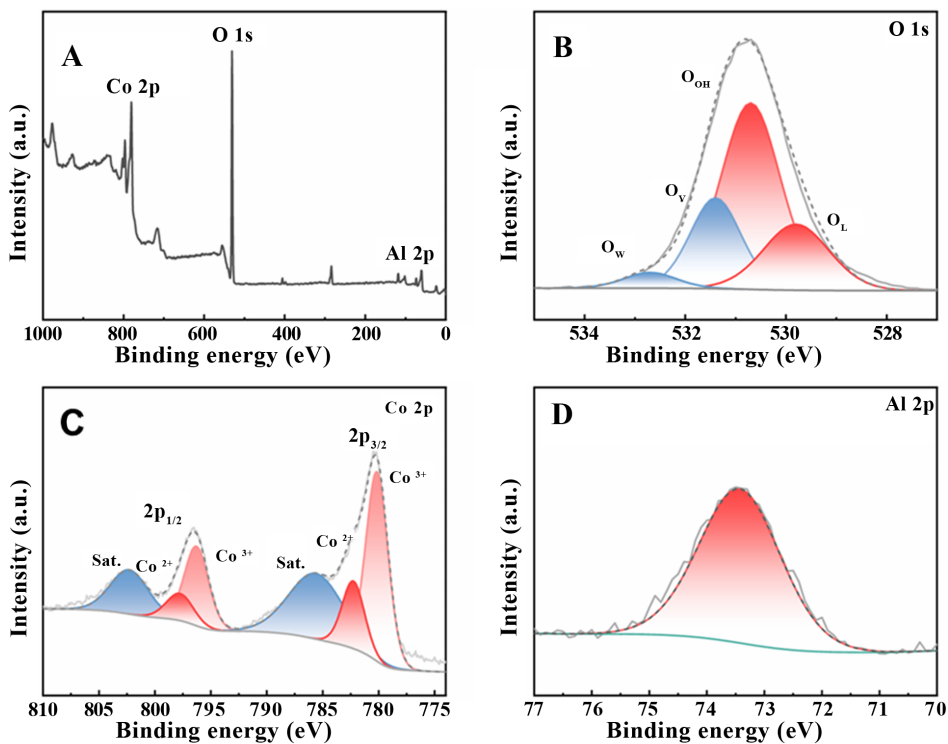


Figure 4. (A) XPS spectra of CoAl-LDH; (B~D) high resolution XPS spectra of O 1s, Co 2p and Al 2p respectively

图 4. (A) CoAl-LDH 的 XPS 谱图；(B~D)分别为 O 1s、Co 2p、Al 2p 的高分辨谱图

为了评价 CoAl-LDH 的电化学性能, 将三电极体系应用于 $2 \text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$ KOH 水溶液中。图 5(A) 是不同扫速下的 CV 曲线, 可看到小扫速下有一对明显的氧化还原峰。随着扫速的增大, 氧化还原峰向两边移动, 然而在大扫速时, 氧化峰发生形变, 这是由于电解质在电极表面发生了析氧反应。通过 CV 测试结果计算比电容, 如图 5(B) 所示, 扫速增大比电容出现衰减, 是因为大扫速下电极反应不完全所致。

为了探究 CoAl-LDH 的充放电性能, 进行了 GCD 测试。图 5(C) 是不同电流密度下的 GCD 曲线, 在 $0.2\sim 0.3 \text{ V}$ 电位下出现两个放电平台, 归因于电极的氧化还原反应。在较大的电流密度下, GCD 曲线形变较小, 说明 CoAl-LDH 的倍率性能较好。从图 5(D) 中比电容计算结果可以看出, 随着电流密度增大, 1 、 3 、 5 、 8 、 10 、 15 和 $20 \text{ A}\cdot\text{g}^{-1}$ 时的比电容分别为 805.0 、 707.3 、 628.8 、 546.0 、 507.5 、 423.8 和 $356.5 \text{ F}\cdot\text{g}^{-1}$, $20 \text{ A}\cdot\text{g}^{-1}$ 的密度下的电容保持率为维持在 44.3% , 这为开发高功率密度储能器件奠定了基础。

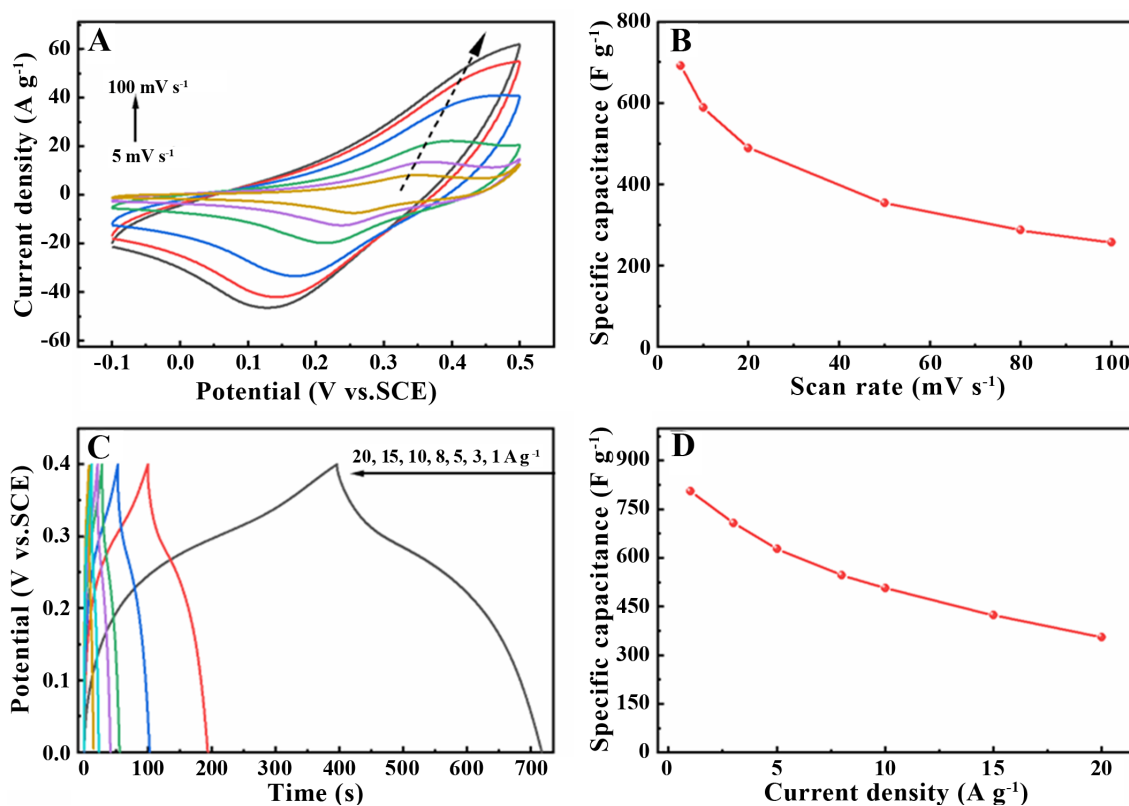


Figure 5. Electrochemical performance of CoAl-LDH, (A) CV curves at different sweep speeds; (B) Relationship between specific capacitance and sweep speed calculated based on CV; (C) GCD curves at different current densities; (D) Relationship between specific capacitance and current density calculated based on GCD

图 5. CoAl-LDH 的电化学性能, (A) 不同扫速下的 CV 曲线; (B) 基于 CV 计算的比电容与扫速的关系图; (C) 不同电流密度下的 GCD 曲线; (D) 基于 GCD 计算的倍率性能

基于前面 CV 测试的结果, 对 CoAl-LDH 电极反应的动力学机制进行了分析如图 6 所示。峰电流与扫速之间的对数关系如图 6 所示, 氧化峰与还原峰对应的斜率 b 值分别为 0.71 和 0.68 , 说明电极反应过程由扩散行为和电容行为共同参与[12]。5、8、10、20 和 $30 \text{ mV}\cdot\text{s}^{-1}$ 扫速下的电容贡献率分别为 39% 、 44% 、 45% 、 55% 和 62% 。这是一个有趣的现象, 小扫速时, 电极反应更缓慢, 由扩散行为主导, 类似于电池型电极; 大扫速时, 由电容行为主导, 更接近于理想电容模型。

为了评估 CoAl-LDH 的循环稳定性能, 在 $10 \text{ A}\cdot\text{g}^{-1}$ 电流密度下进行充放电循环测试, 电容保持率结果如图 7 所示, 经 4000 次循环后, 电容保持率为 94.3% 。为了进一步验证其稳定性能, 对充放电 4000

次循环前后的阻抗测试结果进行了分析,循环前后的电荷转移电阻(R_{ct})变化很小,由 0.20Ω 变为 0.22Ω 。这与前面 SEM 结果推测一致。稳定的三维结构有利于充放电过程中电极结构的稳定,从而比电容衰减较小。

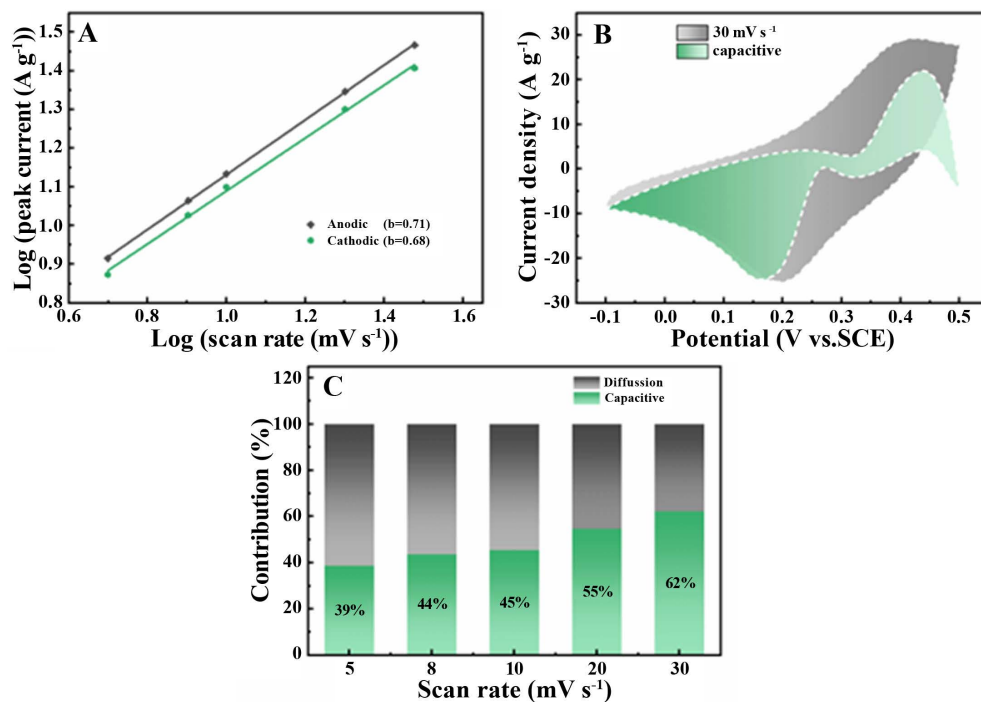


Figure 6. (A) The relationship between $\log(i)$ and $\log(v)$ for the CoAl-LDH electrode; (B) Capacitance contribution for at 30 mV s^{-1} ; (C) Capacitance contribution at different scan rates

图 6. (A) 峰电流与扫速之间的对数关系图; (B) $30 \text{ mV} \cdot \text{s}^{-1}$ 时电容贡献; (C) 不同扫速下电容贡献与扩散贡献占比

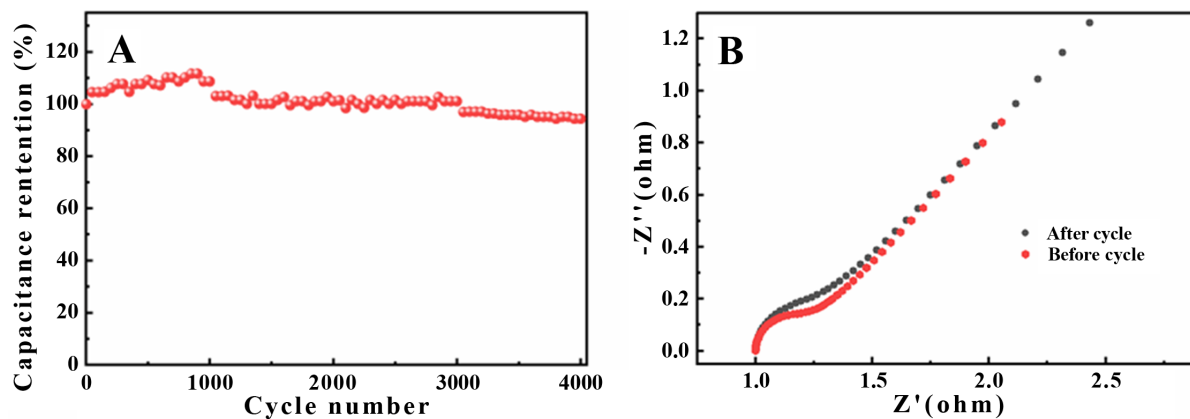


Figure 7. (A) Cycle stability of CoAl-LDH at $10 \text{ A} \cdot \text{g}^{-1}$ current density, and (B) Impedance spectra before and after 4000 cycles

图 7. (A) CoAl-LDH 在 $10 \text{ A} \cdot \text{g}^{-1}$ 电流密度下的循环稳定性; (B) 4000 次循环前后的阻抗谱图

图 8(A) 可以明显看到 AC 三维的孔状结构, 孔隙结构在 300 nm 左右。另外, 表面也可以观察到微孔的絮状结构, 放大的细节可以从图 8(B) 观察到。这些孔隙结构得益于 KOH 的处理, KOH 在热解过程中对纸木质纤维碳的活化起着重要作用。图 8(C~D) 中的图像也可以观察到孔隙结构, 颜色深的地方对应于图 8(A) 中未穿孔的碳。这样的多孔结构, 将有利于电解质离子的吸附、解吸附, 从而提升双电层电容性能。

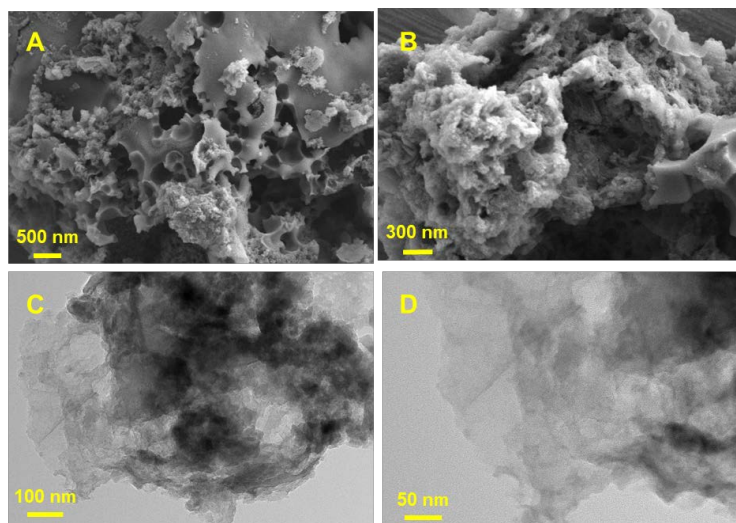


Figure 8. SEM images (A~B) and TEM images (C~D) of AC
图 8. AC 的 SEM 图像(A~B)和 TEM 图像(C~D)

通过 XRD 分析了 AC 的物相,从图 9(A)中可以看到, 2θ 为 25° 处出现一个宽峰,该衍射峰归属于石墨的 002 晶面;同时, 43° 处较弱的衍射峰为石墨的 100 晶面,说明得到的 AC 是一种非晶结构[13]。紧接着对 AC 进行了 XPS 分析,图 9(B)是 AC 的 XPS 全谱图,可以明显观察到 O 1s 和 C 1s 的特征峰。图 9(C-D)分别为 AC 的 O 1s 和 C 1s XPS 精细谱图, O 1s 谱图中有三个拟合峰位于 531.9、533.1 和 534.3 eV,分别对应于 C=O、C-O-C 和 -COOH。D 图高分辨率的 C 1s 谱主要在 284.7 eV、286.2 eV、287.3 eV 和 289.3 eV 附近反卷积出四个峰,分别对应于 C=C/C-C、C=O、C-O 和 O-C=O [14]。以上结果表明,所制备的多孔 AC 表面含有丰富的含氧官能团,有利于电解质溶液的润湿性[15]。

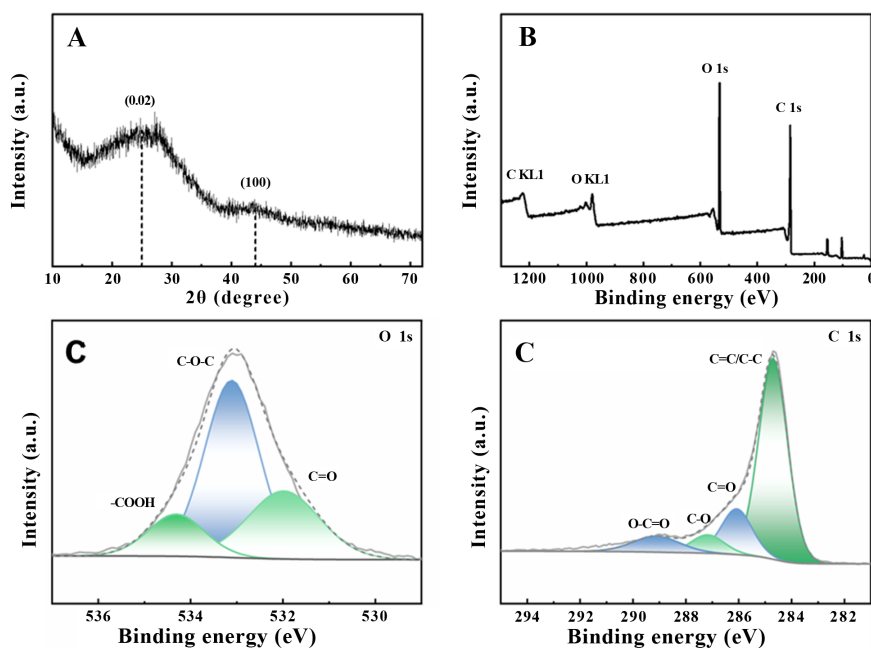


Figure 9. (A) XRD spectra of AC; (B) XPS spectrum of AC; and (C-D) high resolution XPS spectra of O 1s and C 1s respectively

图 9. (A) AC 的 XRD 谱图; (B) AC 的 XPS 谱图; (C~D) 分别为 O 1s 和 C 1s 谱图

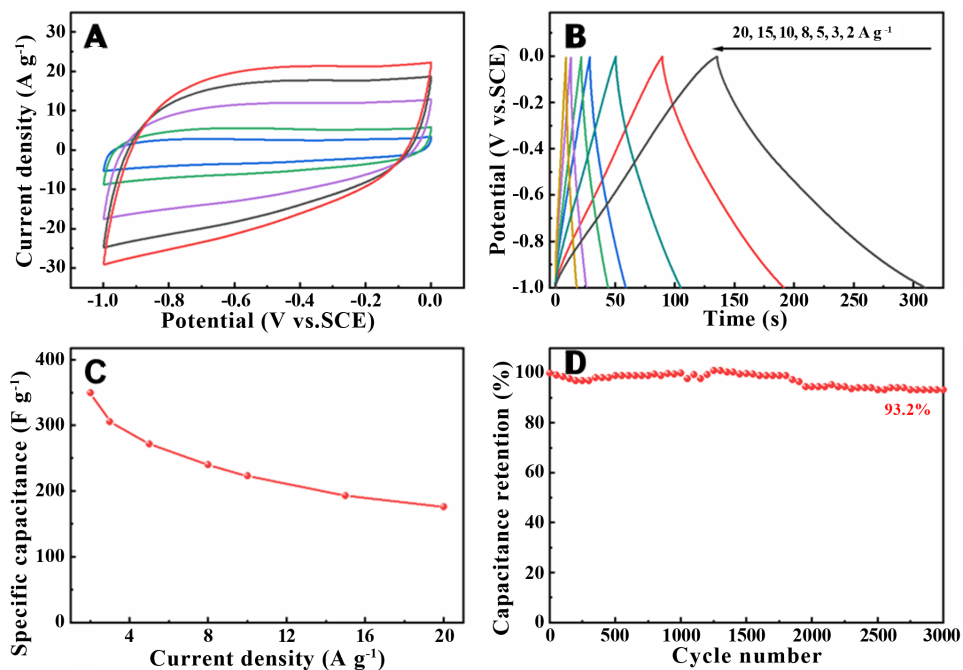


Figure 10. Electrochemical properties of AC, (A) CV curves at different sweep speeds; (B) GCD curves at different current densities; (C) Relation between specific capacitance and current density calculated based on GCD; (D) Capacitance retention rate of charge and discharge at 3000 at 10 A g⁻¹ current density

图 10. AC 的电化学性能, (A) 不同扫速下的 CV 曲线; (B) 不同电流密度下的 GCD 曲线; (C) 基于 GCD 计算的比电容与电流密度的关系图; (D) 10 A g⁻¹ 电流密度下充放电 3000 次的电容保持率

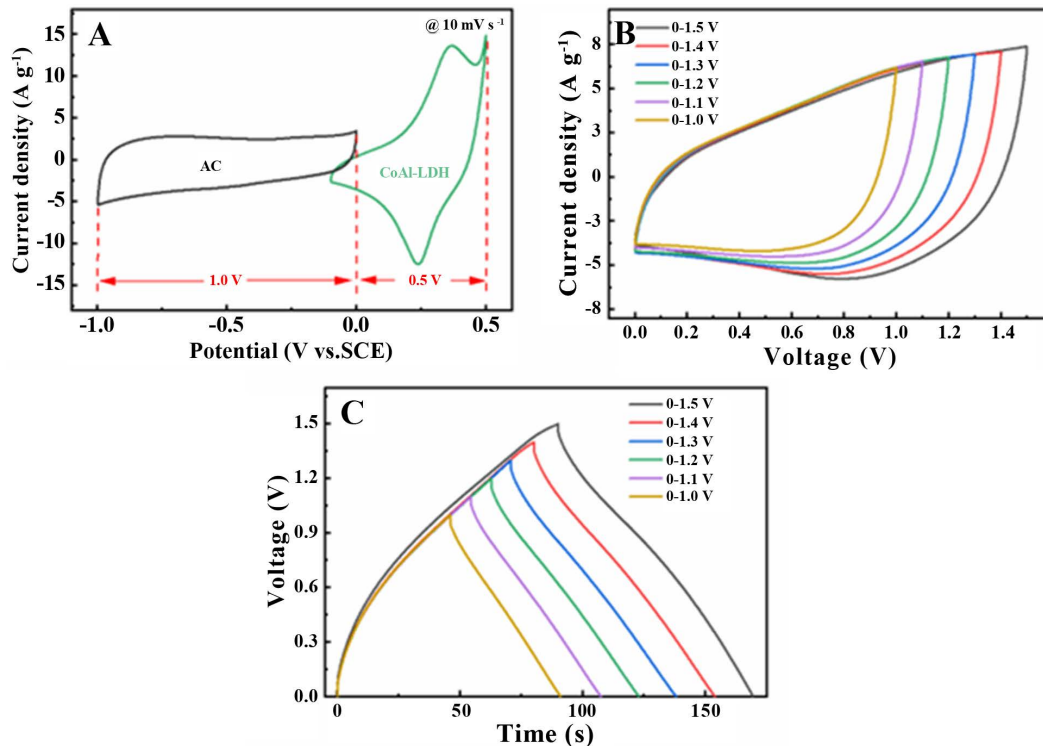


Figure 11. Electrochemical performance of CoAl-LDH // AC, (A) Positive and negative CV window matching, CV curves (B) and GCD curves (C) at different voltage

图 11. CoAl-LDH//AC 电化学性能, (A) 正负极 CV 窗口匹配, 不同电压下的 CV 曲线(B)和 GCD 曲线(C)

通过 CV 和 GCD 测试对 AC 的电化学性能进行了分析。在图 10 中观察到。CV 曲线呈现类矩形，表现为典型的 EDLC 行为[16] (EDLC 是基于电解质中离子在电极/电解质界面的物理吸附/解吸，无需法拉第过程)。同时不同电流密度下的 GCD 曲线呈现对称三角形，进一步验证了其 EDLC 行为。通过计算，得到不同电流密度下的比电容结果， 2 A g^{-1} 到 20 A g^{-1} 时电容保持率为 50.4%，通过循环 3000 次后，比电容基本上没有衰减，说明了该 AC 电化学性能的优越性。

以 CoAl-LDH 作为正极、AC 作为负极构建 ASC，通过 CV 和 GCD 进行了一系列测试分析。为保证 ASC 正负极电荷守恒，首先进行了正负极材料质量匹配。通过计算正负极材料质量比为 0.75:1。进一步对两电极 CV 电压窗口进行了探究，从图 11 可以看出，随着电压增大，CV 曲线的面积增大，即使增大至 1.5 V 的工作电压，CV 形状保持良好。同样的，在不同电压下进行了 GCD 测试，在 1.5 V 电压下 GCD 曲线对称性依然保持良好，与预期结果一致。

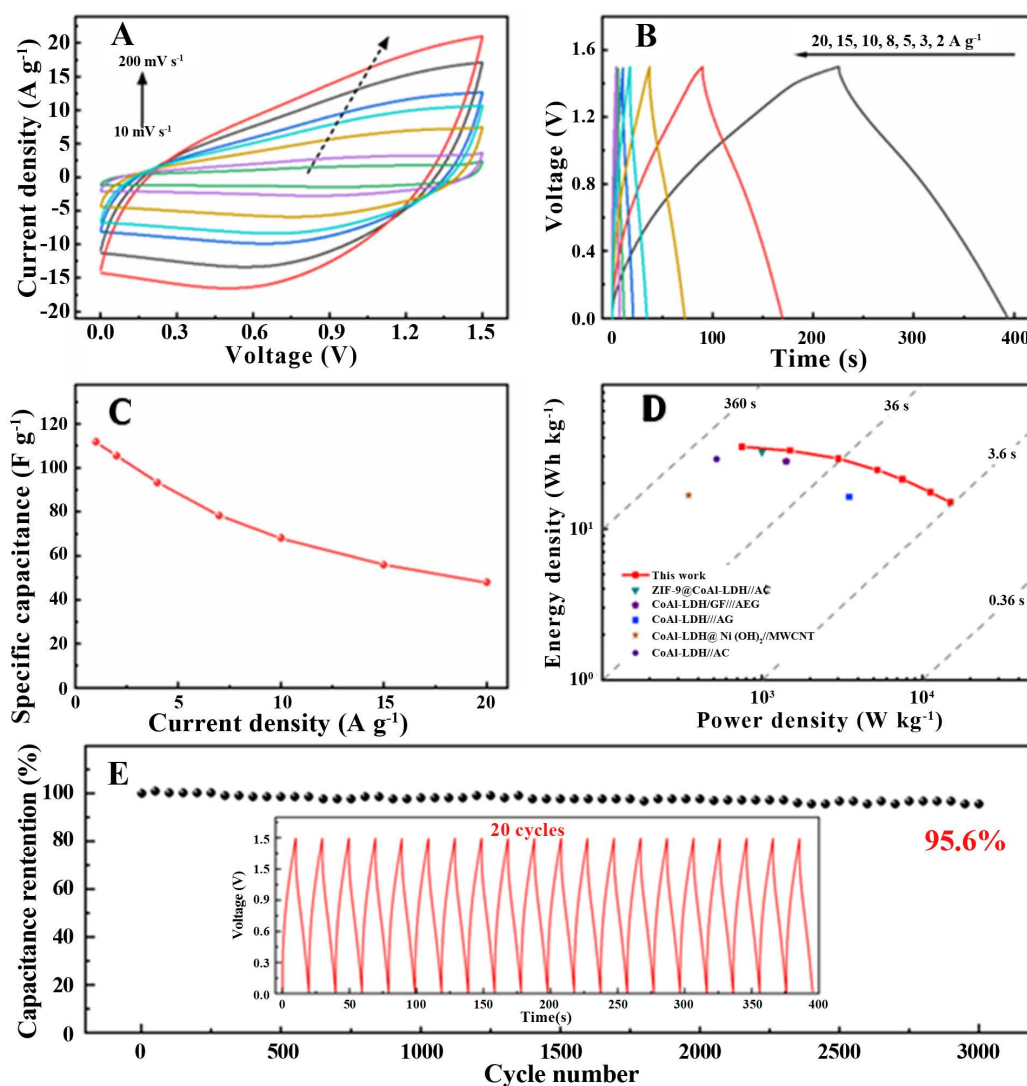


Figure 12. (A) CV curves at different sweep speeds; (B) GCD curves at different current densities; (C) Specific capacitance calculated based on GCD results; (D) Ragone diagram of energy density and power density; (E) 5000 charge-discharge cycles at 10 A g^{-1} current density

图 12. (A) 不同扫速下的 CV 曲线; (B) 不同电流密度下的 GCD 曲线; (C) 基于 GCD 结果计算的比电容; (D) 能量密度与功率密度 Ragone 图; (E) 在 10 A g^{-1} 电流密度下充放电循环 5000 次

为了进一步评估 ASC 的潜在应用价值, 在 10 A g^{-1} 的电流密度下, 充放电循环 3000 次, 结果如图 12(E) 所示, 3000 次循环后电容保持率为 95.6%; 同时, 内插图可以看出, 20 次 GCD 曲线几乎保持不变, 证实了该 ASC 优异的稳定性能。实际应用中, 需要考虑 ASC 的能量密度与功率密度, 从 Ragone 图可以看出, CoAl-LDH//AC 器件在 749.2 W kg^{-1} 时具有 34.9 Wh kg^{-1} 的最大能量密度, 即使在 1.5 kW kg^{-1} 的高功率密度下, 能量密度依然保持在 15.0 Wh kg^{-1} 。这些结果证实了我们制造的器件在未来储能系统中的可行性和潜在应用。

ASC 实际应用场景需要考虑充放电效率, 因此同样需要进行一系列的电化学测试。图 12(A) 所示, 从 10 mV s^{-1} 到 200 mV s^{-1} , 随着扫速的增大, CV 曲线形状基本保持不变。与此同时, GCD 测试结果与 CV 一致, 如图 12(B) 所示, 从 1 A g^{-1} 到 20 A g^{-1} 充放电时间相近。计算材料的比电容, 在 1 A g^{-1} 时的比电容为 111.8 F g^{-1} , 20 A g^{-1} 时的比电容为 48.0 F g^{-1} , 电容保持率为 42.9%。这一结果意味着在需要快速充放电的时候, 材料仍能具有优异的电化学性质。

为了演示储能的实际应用, 如图将电能以肉眼可见的方式呈现出来。将两个 ASC 串联, 给风扇模型供电的实拍图, 对器件充电后, 闭合开关, 小风扇快速转动, 成功实现了电能到化学能再到风能的转换 (图 13(A))。受风扇模型系统能量转换的启发, 做了一个风能驱动的小船模型, 图 13(B) 是给小船模型供电的实物图, 可以看出, 风扇转动后推着小船在水中向前运动。这一结果表明, 由 CoAl-LDH 和 AC 构建的 ASC 将有望用于实际的能源存储与能源转换系统。

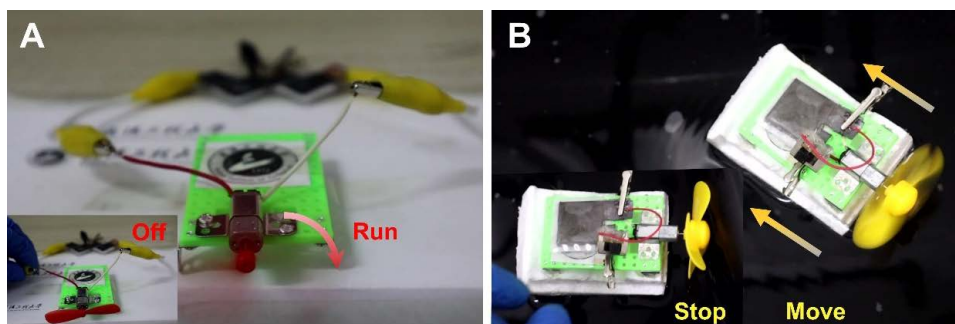


Figure 13. CoAl-LDH//AC device for fan model (A) and boat model (B)
图 13. CoAl-LDH//AC 器件用于风扇模型(A)和小船模型(B)

4. 结论

本文使用简单的共沉淀法构建了 CoAl-LDH 三维层状纳米结构。电化学测试结果表明, CoAl-LDH 在 1 A g^{-1} 电流密度下表现出较高的比电容(805.0 F g^{-1}), 在较大电流密度下, 仍表现出的优异倍率性能。同时, 得益于三维层状结构, 在 10 A g^{-1} 电流密度下充放电循环 4000 圈电容保持率高达 95.2%。实验成功组装了 CoAl-LDH//AC ASC 器件工作, 在功率密度为 749.2 W kg^{-1} 时, 实现 34.9 Wh kg^{-1} 的高能量密度, 5000 次循环后容量保持 95.6%。当这两个器件串联在一起, 可以给风扇和小船模型正常供电。

基金项目

武汉工程大学研究生创新基金(CX2022446)。

参考文献

- [1] Wang, Y., Yang, H., Lv, H., *et al.* (2022) High Performance Flexible Asymmetric Supercapacitor Constructed by Cobalt Aluminum Layered Double Hydroxide @ Nickel Cobalt Layered Double Hydroxide Heterostructure Grown *in-Situ* on Carbon Cloth. *Journal of Colloid and Interface Science*, **610**, 35-48.

- <https://doi.org/10.1016/j.jcis.2021.12.019>
- [2] Li, X., Zhou, J., Li, X., *et al.* (2017) Bifunctional Petaloid Nickel Manganese Layered Double Hydroxides Decorated on a Freestanding Carbon Foam for Flexible Asymmetric Supercapacitor and Oxygen Evolution. *Electrochimica Acta*, **252**, 275-285. <https://doi.org/10.1016/j.electacta.2017.08.028>
- [3] Zhao, Z., Xia, K., Hou, Y., *et al.* (2021) Designing Flexible, Smart and Self-Sustainable Supercapacitors for Portable/Wearable Electronics: From Conductive Polymers. *Chemical Society Reviews*, **50**, 12702-12743. <https://doi.org/10.1039/D1CS00800E>
- [4] Yu, S., Zhang, Y., Lou, G., *et al.* (2018) Synthesis of NiMn-LDH Nanosheet@Ni₃S₂ Nanorod Hybrid Structures for Supercapacitor Electrode Materials with Ultrahigh Specific Capacitance. *Scientific Reports volume*, **8**, Article No. 5246. <https://doi.org/10.1038/s41598-018-23642-6>
- [5] Xiang, K., Guo, J., Xu, J., *et al.* (2018) Surface Sulfurization of NiCo-Layered Double Hydroxide Nanosheets Enable Superior and Durable Oxygen Evolution Electrocatalysis. *ACS Applied Energy Materials*, **1**, 4040-4049. <https://doi.org/10.1021/acsaelm.8b00723>
- [6] Li, J., Xie, Y., Cao, M., *et al.* (2023) Tailoring the Morphology and Electrochemical Properties of Co-ZIF-L Derived CoNi Layered Double Hydroxides via Ni₂₊ Etching towards High-Performance Supercapacitors. *Journal of Colloid and Interface Science*, **631**, 222-230. <https://doi.org/10.1016/j.jcis.2022.11.012>
- [7] Xuan, H., Zhang, G., Liang, T., *et al.* (2021) Hierarchical Design of Core-Shell Structured Ni₃S₂/CoAl-LDH Composites on rGO/Ni Foam with Enhanced Electrochemical Properties for Asymmetric Supercapacitor. *Journal of Alloys and Compounds*, **873**, Article ID: 159801. <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2021.159801>
- [8] Panda, P., Mishra, R., Panigrahy, S. and Barman, S. (2021) Design of Co₁Al₃(OH)_(m)/Carbon Nitride Hybrid Nanostructures for Enhanced Capacitive Energy Storage in an Alkaline Electrolyte. *Materials Advances*, **2**, 7671-7680. <https://doi.org/10.1039/D1MA00665G>
- [9] Guo, X., Zhang, X., Wang, Y., *et al.* (2022) Converting Furfural Residue Wastes to Carbon Materials for High Performance Supercapacitor. *Green Energy & Environment*, **7**, 1270-1280. <https://doi.org/10.1016/j.gee.2021.01.021>
- [10] Wang, G. and Jin, Z. (2021) Oxygen-Vacancy-Rich Cobalt-Aluminium Hydroxalcite Structures Served as High-Performance Supercapacitor Cathode. *Journal of Materials Chemistry C*, **9**, 620-632. <https://doi.org/10.1039/D0TC03640D>
- [11] Li, H., Musharavati, F., Sun, J., *et al.* (2018) Investigation of the Electrochemical Properties of CoAl-Layered Double Hydroxide/Ni(OH)₂. *Journal of The Electrochemical Society*, **165**, A407-A415. <https://doi.org/10.1149/2.0111803jes>
- [12] Liu, Y., Yu, C., Che, H., *et al.* (2021) Ag Nanoparticles-Decorated CoAl-Layered Double Hydroxide Flower-Like Hollow Microspheres for Enhanced Energy Storage Performance. *Journal of Colloid and Interface Science*, **581**, 485-495. <https://doi.org/10.1016/j.jcis.2020.08.018>
- [13] Ahmed, S., Ahmed, A. and Rafat, M. (2019) Performance of Chitosan Derived Activated Carbon in Supercapacitor. *Advances in Natural Sciences: Nanoscience and Nanotechnology*, **10**, Article 025003. <https://doi.org/10.1088/2043-6254/ab1647>
- [14] Liu, Y.N., Zhang, J.N., Wang, H.T., *et al.* (2019) Boosting the Electrochemical Performance of Carbon Cloth Negative Electrodes by Constructing Hierarchically Porous Nitrogen-Doped Carbon Nanofiber Layers for All-Solid-State Asymmetric Supercapacitors. *Materials Chemistry Frontiers*, **3**, 25-31. <https://doi.org/10.1039/C8QM00293B>
- [15] Phakkhawan, A., Horprathum, M., Chanlek, N., *et al.* (2022) Activated Carbons Derived from Sugarcane Bagasse for High-Capacitance Electrical Double Layer Capacitors. *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, **33**, 663-674. <https://doi.org/10.1007/s10854-021-07334-y>
- [16] Gao, M., Wang, W.K., Zheng, Y.M., *et al.* (2020) Hierarchically Porous Biochar for Supercapacitor and Electrochemical H₂O₂ Production. *Chemical Engineering Journal*, **402**, Article ID: 126171. <https://doi.org/10.1016/j.cej.2020.126171>