

Электрохимическая энергетика. 2021. Т. 21, № 4. С. 206–215

*Electrochemical Energetics*, 2021, vol. 21, no. 4, pp. 206–215

<https://energetica.sgu.ru>

<https://doi.org/10.18500/1608-4039-2021-21-4-206-215>

Научная статья

УДК 542.9526:547.551.1

## ЭЛЕКТРОДНЫЙ МАТЕРИАЛ НА ОСНОВЕ МНОГОСЛОЙНОГО ОКСИДА ГРАФЕНА ДЛЯ ХИМИЧЕСКИХ ИСТОЧНИКОВ ТОКА

С. В. Брудник<sup>✉</sup>, Е. В. Яковлева, Н. В. Горшков, Д. И. Артюхов, А. В. Яковлев

*Саратовский государственный технический университет имени Гагарина Ю. А.  
Россия, 410054, г. Саратов, Политехническая, д. 77*

**Брудник Сергей Витальевич**, аспирант, [sergbrudnik@gmail.com](mailto:sergbrudnik@gmail.com) <https://orcid.org/0000-0001-7093-6494>

**Яковлева Елена Владимировна**, кандидат химических наук, доцент, [elenayakovleva1977@list.ru](mailto:elenayakovleva1977@list.ru), <https://orcid.org/0000-0002-8489-9804>

**Горшков Николай Вячеславович**, кандидат технических наук, доцент, [gorshkov.sstu@gmail.com](mailto:gorshkov.sstu@gmail.com), <https://orcid.org/0000-0003-3248-3257>

**Артюхов Денис Иванович**, аспирант, [mr.tokve@gmail.com](mailto:mr.tokve@gmail.com), <https://orcid.org/0000-0001-9753-8875>

**Яковлев Андрей Васильевич**, доктор технических наук, профессор, [aw\\_71@mail.ru](mailto:aw_71@mail.ru), <https://orcid.org/0000-0002-3542-1927>

**Аннотация.** Приведены результаты исследований электрохимического синтеза многослойного оксида графена, показана возможность его применения в качестве электродного материала суперконденсатора. В спиртовой суспензии толщина частиц многослойного оксида графена составляет менее 0.1 мкм с площадью более 100 мкм<sup>2</sup>. Электрод на основе оксида графена имеет высокую удельную емкость 107 Ф·г<sup>-1</sup> и высокую сохранность заряда 97% после 5000 циклов. Показано, что электрод из оксида графена обладает максимальной удельной энергией 8.7 Вт·ч·кг<sup>-1</sup> при плотности тока 0.1 А·г<sup>-1</sup> и имеет максимальную мощность 2291.1 Вт·кг<sup>-1</sup> при плотности тока 4 А·г<sup>-1</sup>. Проведены испытания литий-тионилхлоридного элемента с катодом из многослойного оксида графена на никелевой сетке. Установлено, что оксид графена, синтезированный электрохимическим методом, является перспективным электродным материалом для создания симметричного суперконденсатора.

**Ключевые слова:** оксид графена, электрохимический синтез, суперконденсатор химический источник тока

**Для цитирования:** Брудник С. В., Яковлева Е. В., Горшков Н. В., Артюхов Д. И., Яковлев А. В. Электродный материал на основе многослойного оксида графена для химических источников тока // Электрохимическая энергетика. 2021. Т. 21, № 4. С. 206–215. <https://www.doi.org/10.18500/1608-4039-2021-21-4-206-215>

Статья опубликована на условиях лицензии Creative Commons Attribution 4.0 International (CC-BY 4.0)

Article

### Electrode material based on multilayer graphene oxide for chemical current sources

S. V. Brudnik<sup>✉</sup>, E. V. Yakovleva, N. V. Gorshkov, D. I. Artyukhov, A. V. Yakovlev

*Yuri Gagarin State Technical University of Saratov  
77 Politechnicheskaya St., Saratov 410054, Russia*

**Sergei V. Brudnik**, [sergbrudnik@gmail.com](mailto:sergbrudnik@gmail.com), <https://orcid.org/0000-0001-7093-6494>

**Elena V. Yakovleva**, [elenayakovleva1977@list.ru](mailto:elenayakovleva1977@list.ru), <https://orcid.org/0000-0002-8489-9804>

**Nikolay V. Gorshkov**, [gorshkov.sstu@gmail.com](mailto:gorshkov.sstu@gmail.com), <https://orcid.org/0000-0003-3248-3257>

Denis I. Artyukhov, mr.tokve@gmail.com, <https://orcid.org/0000-0001-9753-8875>

Andrei V. Yakovlev, aw\_71@mail.ru, <https://orcid.org/0000-0002-3542-1927>

**Abstract.** The results of the studies of the electrochemical synthesis of multilayer graphene oxide were presented, and the possibility of using it as an electrode material of the supercapacitor was shown. In an alcohol suspension the thickness of the particles of multilayer graphene oxide was less than  $0.1 \mu\text{m}$  with an area of more than  $100 \mu\text{m}^2$ . The graphene oxide-based electrode has a high specific capacity of  $107 \text{ F}\cdot\text{g}^{-1}$  and a high charge retention rate of 97% after 5000 cycles. It was shown that the graphene oxide electrode had a maximum specific energy of  $8.7 \text{ W}\cdot\text{h}\cdot\text{kg}^{-1}$  at the current density of  $0.1 \text{ A}\cdot\text{g}^{-1}$  and had a maximum power of  $2291.1 \text{ W}\cdot\text{kg}^{-1}$  at the current density of  $4 \text{ A}\cdot\text{g}^{-1}$ . The application of a lithium-thionyl chloride cell with a multilayer graphene oxide cathode on a nickel grid was tested. It was found that graphene oxide synthesized using the electrochemical method is a promising electrode material for creating a symmetric supercapacitor.

**Keywords:** graphene oxide electrochemical synthesis supercapacitor, chemical current source

**For citation:** Brudnik S. V., Yakovleva E. V., Gorshkov N. V., Artyukhov D. I., Yakovlev A. V. Electrode material based on multilayer graphene oxide for chemical current sources. *Electrochemical Energetics*, 2021, vol. 21, no. 4, pp. 206–215 (in Russian). <https://www.doi.org/10.18500/1608-4039-2021-21-4-206-215>

This is an open access article distributed under the terms of Creative Commons Attribution 4.0 International License (CC-BY 4.0)

## ВВЕДЕНИЕ

Растущая популярность портативных электронных устройств все больше увеличивает необходимость разработки материалов для накопления энергии. В связи с этим суперконденсаторы, которые обладают высокой удельной мощностью, возможностью быстрой зарядки и разрядки и длительным сроком службы, являются перспективными системами хранения электроэнергии с возможностью широкого применения во многих областях [1]. Традиционно различные углеродные материалы [2] использовались в данном приложении за счет большой площади поверхности и лучшей электропроводимости. Активированный уголь – один из наиболее распространенных материалов [3, 4], его площадь поверхности может достигать более  $3000 \text{ м}^2\cdot\text{г}^{-1}$  [5], однако только часть ее может вносить вклад в накопление энергии. Это связано с тем, что материалы на основе активированного угля имеют плохую однородность по размеру пор в диапазоне от микропор ( $\approx 0.3 \text{ нм}$ ) до макропор [6], что приводит к низкой удельной емкости [7]. Углеродные нанотрубки имеют умеренную площадь поверхности и хорошую проводимость, однако суперконденсаторы на их основе не обладают лучшими емкостными характеристиками [8, 9], произ-

водственные трудности и стоимость ограничивают их применение в устройствах хранения энергии.

В качестве перспективного электродного материала для суперконденсатора может использоваться графен и его производные (оксид графена и восстановленный оксид графена). Наиболее цитируемым в литературе методом синтеза оксида графена является метод Хаммерса [10, 11], в котором реакция окисления протекает через стадию образования интеркалированных соединений графита. Главным недостатком данного метода синтеза является применение перманганата калия и концентрированной серной кислоты. Альтернативным методом синтеза оксида графена является электрохимический метод [12–14], который, в отличие от химического, обеспечивает высокую однородность гранулометрического и химического состава частиц оксида графена [15].

Электродные материалы на основе оксида графена для суперконденсаторов, синтезированного методом Хаммерса, имеют высокую удельную емкость, которая может достигать  $300 \text{ Ф}\cdot\text{г}^{-1}$  [16]. Накопление электрохимической энергии происходит вследствие окислительно-восстановительных реакций на границе электрод-электролит с участием кислородсодержащих функциональных групп [17].

Целью данной работы является исследование многослойного оксида графена, полученного электрохимическим анодным окислением графита, для применения в качестве электрода симметричного суперконденсатора.

## МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Электрохимический синтез многослойного оксида графена и механизм диспергирования природного порошка графита в сернокислых электролитах подробно изучен авторами статьи [15, 18]. Углеродный материал диспергировали в этиловом спирте с помощью ультразвукового диспергатора УЗДН 2Т (ООО «НПП “Укрросприбор”», Украина), с мощностью 450 Вт в течение 20 минут. Данным образом получали спиртовую дисперсию многослойного оксида графена с концентрацией 1.4 мг/мл. Полученные пленки электрохимически окисленного графита наносились на стальные (Stainless Steel 304) диски площадью 2 см<sup>2</sup> и никелевую сетку капельным методом с помощью микродозатора 200 мкл при температуре 25°C и сушились при 60°C в течение 5 часов.

Исследования распределения размеров частиц окисленного графита в спиртовой суспензии производилось лазерным анализатором размеров частиц Analysette-22 NanoTech (Fritsch GmbH, Германия) с диапазоном измерения 0.01–2100 мкм.

Изучение морфологии поверхности и структуры частиц наноструктурированного графита осуществляли при помощи сканирующего электронного микроскопа со встроенным энергодисперсионным анализом EXplorer (Aspex, США).

Сопротивление углеродных пленок определяли с помощью измерителя RLC E7-22 (CHY Firemate Co., Ltd Тайвань). Суперконденсатор на основе полученного углеродного материала собирался в симметричном исполнении в корпусе coin cell CR2025. В качестве электролита использо-

вался водный раствор КОН с концентрацией 6 моль/л.

Электрохимическое тестирование: циклические вольтамперограммы и гальваностатические зарядно-разрядные кривые зарегистрированы с помощью потенциостата (ООО «Элинс», Россия) по двухэлектродной схеме. Циклические вольтамперограммы, зарегистрированы при скоростях развертки потенциала 1, 10, 30, 50 и 100 мВ/с. Рабочий диапазон напряжений для исследуемого симметричного суперконденсатора составляет от 0.0 до 0.8 В. Тестирование симметричным зарядом-разрядом выполнено от 0 до 800 мВ при плотностях постоянного тока 0.1, 0.2, 0.5, 1.0, 2.0 и 4.0 А·г<sup>-1</sup>. Сохранность емкости электрода суперконденсатора с активным материалом на основе оксида графена тестировали в течение 5000 циклов заряда-разряда плотностью тока 2 А·г<sup>-1</sup>.

## РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Исследования проводились на основе спиртовых дисперсий многослойного оксида графена. Как описывалось ранее [18], взаимодействие окисленного графита с водой является причиной эксфолиации графитовых частиц в результате поглощения молекул воды молекулами H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> в межслоевых пространствах графитовой матрицы и обуславливается увеличением их объема в 10-11 раз по сравнению с исходным графитом.

При диспергировании оксида графена в этиловом спирте наблюдается значительное снижение агломерации частиц, это подтверждается увеличением доли частиц оксида графена с размером ≤ 10 мкм до 43% при уменьшении модального размера частиц до 17.33 мкм (рис. 1). По результатам данных сканирующей электронной микроскопии, структура частиц многослойного оксида графена состоит из периодически повторяющихся упорядоченных слоев с толщиной менее 0.1 мкм и площадью свыше 100 мкм<sup>2</sup> (рис. 2, а–в).

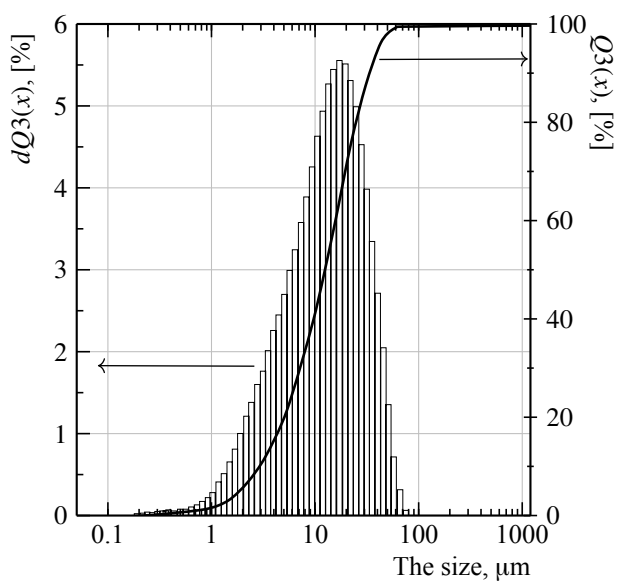


Рис. 1. Распределение частиц окисленного графита по размерам (при воздействии ультразвука 50 Вт) в спиртовой суспензии

Fig. 1. The distribution of oxidized graphite particles by size (exposure to the ultrasound of 50 W) in an alcohol suspension

Полученная спиртовая дисперсия многослойного оксида графена использовалась для осаждения пленок с толщиной 50 мкм и массой 2.8 мг на стальной подложке (рис. 3, а) капельным методом. Аналогично были получены пленки из многослойного оксида графена нанесенного на никелевую сетку (рис. 3, б). Строение пленки представляет собой плоско ориентированные относительно подложки частицы оксида графена (рис. 2, з–е). Расчетная плотность пленки

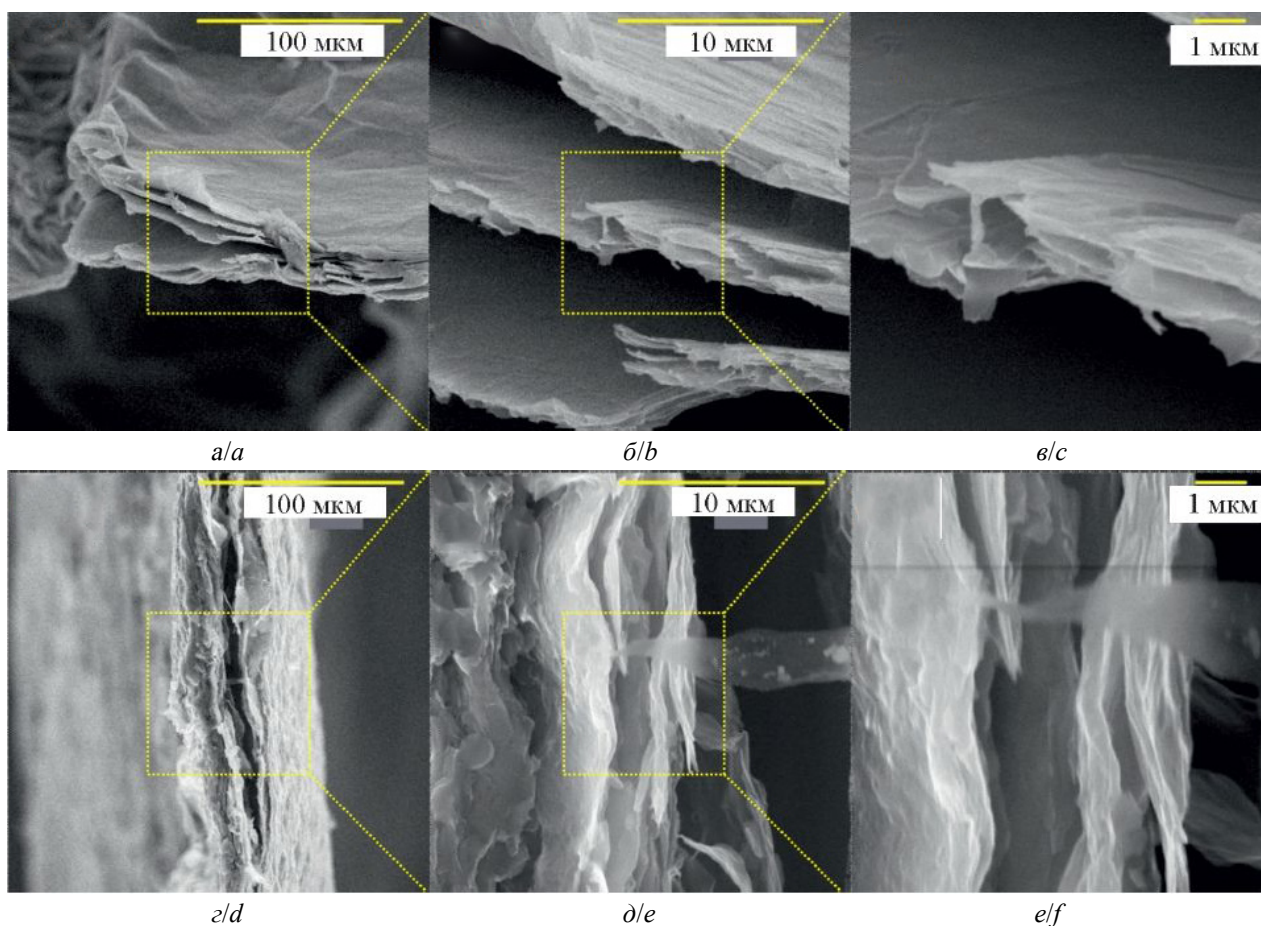


Рис. 2. Сканирующая электронная микроскопия синтезированного электрохимическим методом многослойного оксида графена (а–в) и пленки на его основе (з–е)

Fig. 2. Scanning electron microscopy of electrochemically synthesized multilayer graphene oxide (a–c) and the films based on it (d–f))

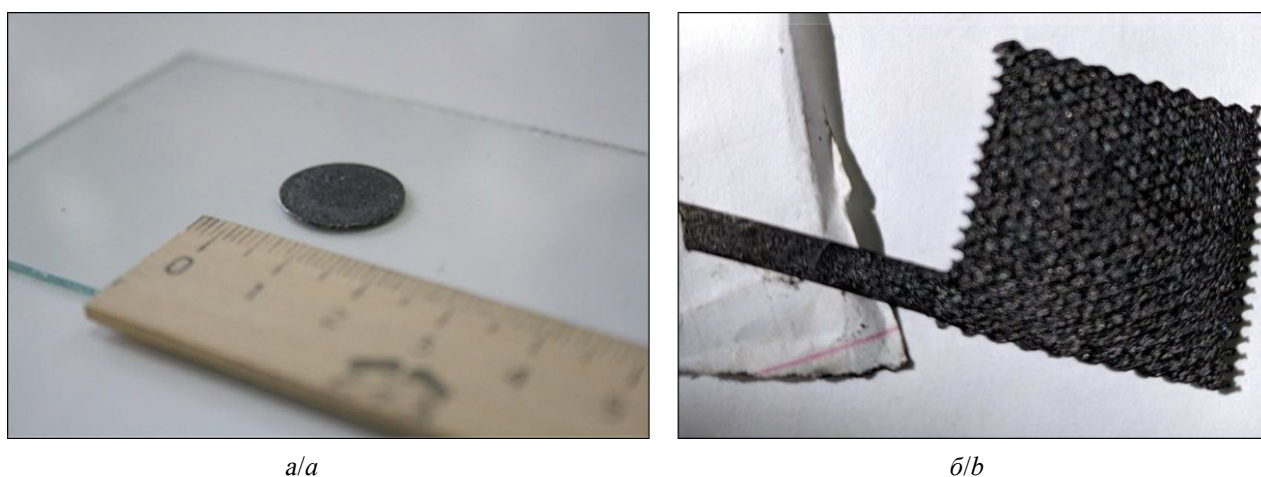


Рис. 3. Стальной диск с пленкой многослойного оксида графена толщиной 50 мкм (электрод симметричного суперконденсатора) (а). Электрод из многослойного оксида графена на никелевой сетке для литий-тионил-хлоридного элемента (б)

Fig. 3. The steel disk with a 50  $\mu\text{m}$  thick multilayer graphene oxide film (symmetric supercapacitor electrode) (a). Multilayer graphene oxide electrode on a nickel grid for a lithium-thionyl chloride cell (b)

составляет  $0.28 \text{ г}\cdot\text{см}^{-3}$ , удельное электрическое сопротивление –  $\approx 22 \cdot 10^{-5} \text{ Ом}\cdot\text{м}$ .

После термовосстановления пленки многослойного оксида графена при температуре  $120^\circ\text{C}$  в течение 2 часов удельное сопротивление снижалось до  $\approx 3.1 \cdot 10^{-5} \text{ Ом}\cdot\text{м}$ . Псевдоемкость суперконденсатора можно объяснить взаимодействием между электролитом и функциональными группами, включающими гидроксильные, карбонильные и хинонные комплексы [19]. Плотность тока циклических вольтамперограмм с ростом скорости развертки потенциала возрастает (рис. 4, а), в связи с этим уменьшается удельная емкость от  $107.1$  до  $57.2 \text{ Ф}\cdot\text{г}^{-1}$  для скоростей развертки  $1$  и  $100 \text{ мВ}\cdot\text{с}^{-1}$  соответственно (рис. 4, б).

Данное уменьшение связано с ограничениями диффузионных процессов при увеличении скорости развертки потенциала, в особенности с уменьшением доступности внутренней поверхности пор, поскольку процесс накопления заряда в основном протекает на внешней поверхности [20]. Кривые симметричного заряда-разряда (рис. 4, в) обусловлены квазилинейным характером, что свидетельствует о псевдоемкостном характере накопления энергии. Между цик-

лами заряда и разряда наблюдалось падение напряжения ( $IR$ ), величина которого взаимосвязана с эквивалентным распределенным сопротивлением [21]. Несоответствие в значениях удельной емкости при изменении плотности тока симметричного заряда-разряда (рис. 4, з) вызваны наличием диффузионного и поверхностного взаимодействия. Так, значения удельной емкости одного электрода составляют от  $75.4$  до  $102.1 \text{ Ф}\cdot\text{г}^{-1}$  для плотности тока  $4.0$  и  $0.1 \text{ А}\cdot\text{г}^{-1}$ .

При рассмотрении диаграммы (рис. 5, а) видно, что значения удельной энергии снижаются с увеличением удельной мощности с  $8.7$  до  $0.8 \text{ Вт}\cdot\text{ч}\cdot\text{кг}^{-1}$  для  $155.5$  и  $2291.1 \text{ Вт}\cdot\text{кг}^{-1}$ . Для плотностей тока ниже  $2 \text{ А}\cdot\text{г}^{-1}$  кривая диаграммы Рагоне не находится в области суперконденсаторов, вследствие этого сохранность емкости электрода суперконденсатора с активным материалом на основе многослойного оксида графена тестировали симметричным заряд-разрядом с плотностью тока  $2 \text{ А}\cdot\text{г}^{-1}$ . Сохранение емкости суперконденсаторов после 5000 циклов процесса заряда-разряда составило  $97.4\%$  (рис. 5, б).

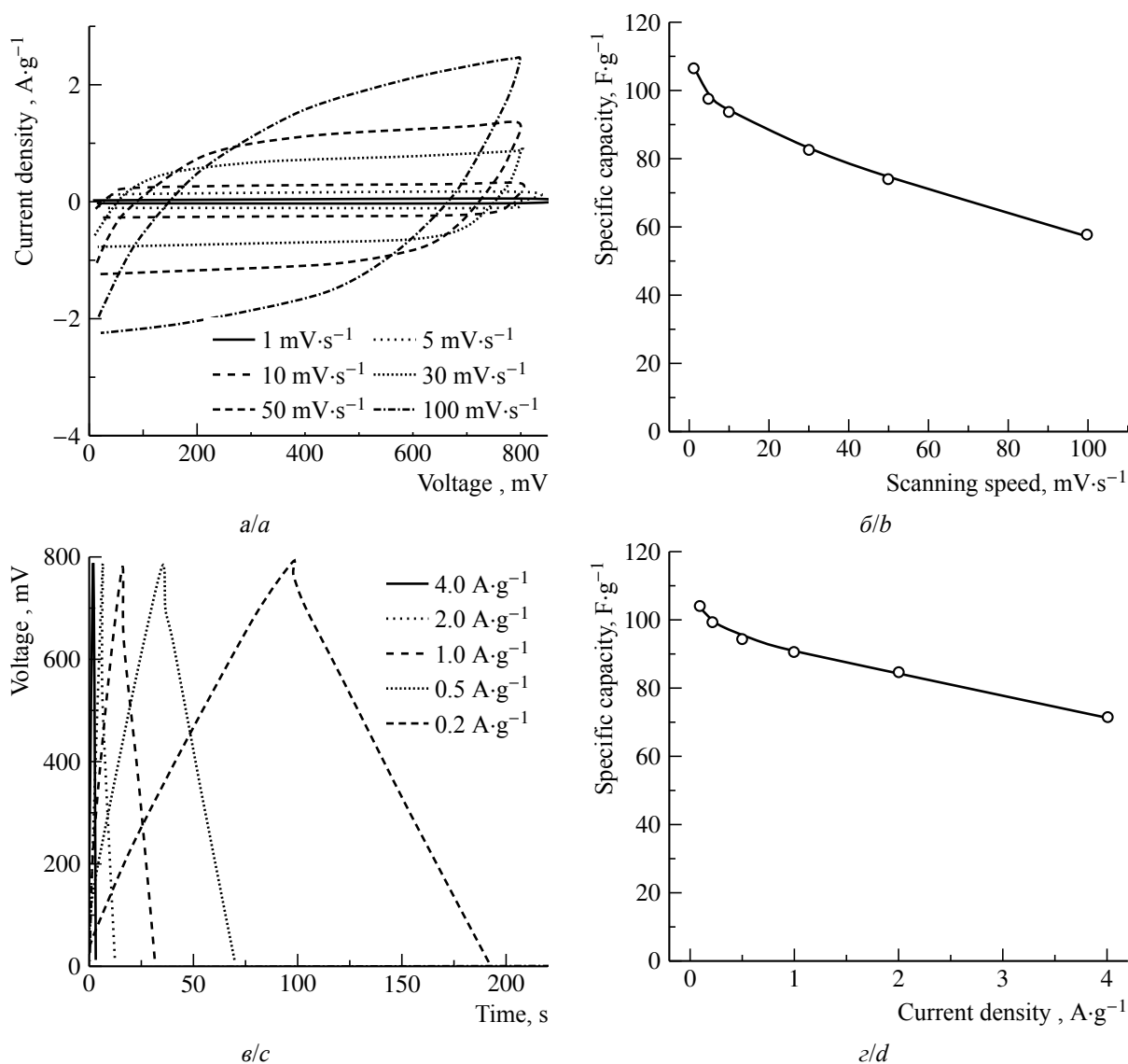


Рис. 4. Электрохимические характеристики электрода на основе многослойного оксида графена: *a* – циклические вольтамперограммы, *b* – зависимость удельной емкости от скорости развертки потенциала циклических вольтамперограмм, *c* – кривые симметричного заряд-разряда при плотностях зарядно-разрядного тока, *d* – удельная емкость от величины плотности зарядно-разрядного тока

Fig. 4. The electrochemical characteristics of a multilayer graphene oxide electrode: *a* – cyclic voltammograms, *b* – the dependence of the specific capacitance on the scan rate of the potential of the cyclic voltammograms, *c* – symmetric charge-discharge curves at the charge-discharge current densities, *d* – the specific capacity from the value of the density of the charge-discharge current

Исследование тионилхлоридных элементов с катодами из многослойного оксида графена, нанесенного на никелевую сетку (см. рис. 3, *b*), показывает, что по сравнению с положительными электродами, изготовленными по традиционной технологии из технического углерода (сажи) с добав-

лением связующего вещества (суспензия Ф-4Д, которая представляет собой 60%-ный водный раствор фторопластовых частиц), электроды, изготовленные на основе многослойного оксида графена, обладают уникальными разрядными характеристиками. При низкой токовой нагрузке данные электроды

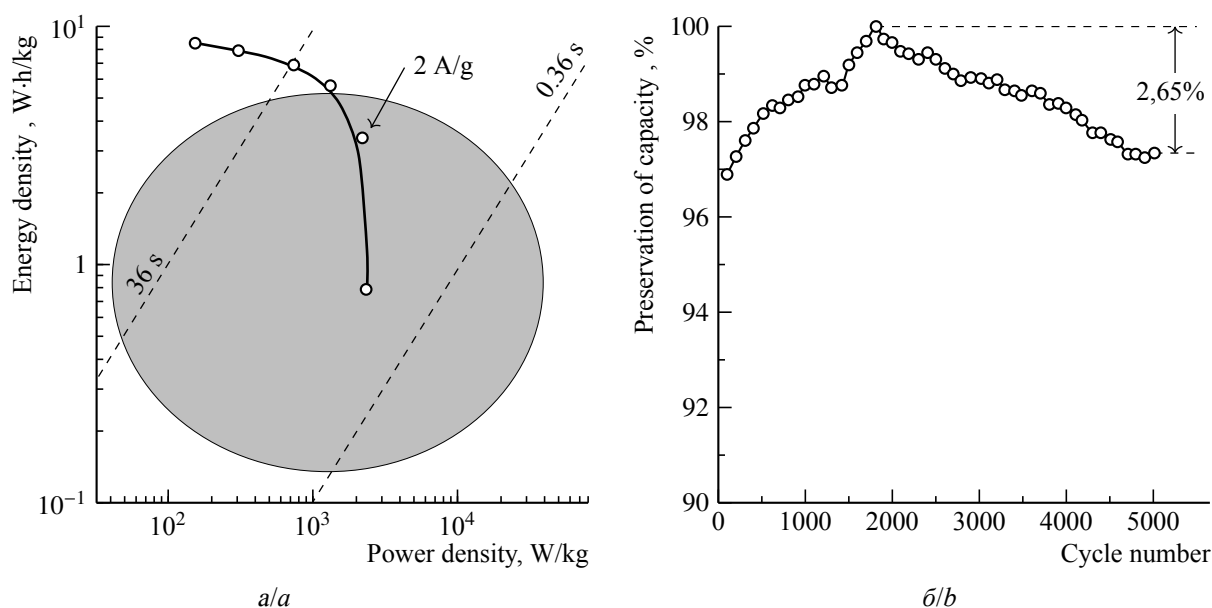


Рис. 5. Диаграмма Рагоне для электрода на основе оксида графена (а). Сохранность емкости при циклировании симметричным заряд-разрядом плотностью тока  $2 \text{ A}\cdot\text{г}^{-1}$  (б)

Fig. 5. Ragone plot for the electrode based on the graphene oxide (a). The retention of capacity during symmetric charge-discharge cycling with the current density of  $\text{A}\cdot\text{g}^{-1}$  (b)

отдают более высокую удельную электрическую емкость. При плотности тока  $2 \text{ mA}/\text{cm}^2$  удельная электрическая емкость составляет

$4543 \text{ mA}\cdot\text{ч}/\text{г}$ , что в три раза больше, чем у сажевых электродов, у которых при той же токовой нагрузке  $Q = 1493 \text{ mA}\cdot\text{ч}/\text{г}$  (таблица).

Результаты испытаний литий-тионилхлоридного элемента с катодом из многослойного оксида графена на никелевой сетке

Test results of testing of a lithium-thionyl chloride cell with a multilayer graphene oxide cathode on a nickel grid

$i$ , $\text{mA}/\text{cm}^2$	$U_{\text{рц}}$ , В	Положительный (С) электрод				Примечание
		Толщина, мм	$m_c$ , г	$\rho$ , $\text{г}/\text{см}^3$	$Q_{\text{уд}}$ , $\text{mA}\cdot\text{ч}/\text{г}$	
2 и 5	3.740	0.21	0.0103	0.1226	$\Sigma 4543.7$	Оксид графена. Двусторонний литиевый электрод использовался повторно после предыдущего разряда. При токе 40 мА отключилось сразу. При 8 мА – 5 ч, доразряд при 20 мА – 20 мин.
2 и 5	3.613	0,57	0.0839	0,3680	$\Sigma 1493.6$	КПО. Использовали повторно двусторонний литиевый электрод после предыдущего разряда. Разряжали два дня токами 8 и 20 мА.
10; 5; 2.5	3.733	0,4	0.0357	0,2231	$\Sigma 1658.3$	Оксид графена. Использовали повторно двусторонний литиевый электрод после предыдущего разряда. Разряд проводили в 3 этапа, уменьшая ток.
10; 5; 2.5	3.548	–	0.0267	–	$\Sigma 393.3$	Оксид графена термообработанный. Использовали повторно двусторонний литиевый электрод после предыдущего разряда. Разряд проводили в 3 этапа, уменьшая ток.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, получен многослойный оксид графена методом электрохимического окисления дисперсного графита в серной кислоте. Произведены анализ размера частиц полученного оксида многослойного графена в спиртовой дисперсии, а также анализ морфологии методом сканирующей электронной микроскопии. Достигнута высокая дисперсность синтезированного оксида графена с применением ультразвуковой обработки спиртовой дисперсии. Электродный материал для суперконденсаторов

нанесен на стальные подложки без применения связующего, изготовлены макеты суперконденсаторов. Электрохимическое тестирование подтверждает высокие значения удельной емкости и удельной энергии для оксида многослойного графена в составе симметричного суперконденсатора. Проведены испытания литий-тионилхлоридного элемента с катодом из многослойного оксида графена на никелевой сетке, которые выявили трехкратное повышение удельной электрической емкости по сравнению с традиционным сажевым электродом.

## БЛАГОДАРНОСТИ

*Исследование выполнено при финансовой поддержке РФФИ в рамках научного проекта № 18-29-19048.*

## ACKNOWLEDGEMENTS

*This study was supported by the Russian Foundation for Basic Research (project No. 18-29-19048).*

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Zhao J., Burke A. F. Review on supercapacitors : Technologies and performance evaluation // Journal of Energy Chemistry. 2021. Vol. 59. P. 276–291. <https://www.doi.org/10.1016/j.jechem.2020.11.013>
2. Frackowiak E. Carbon materials for supercapacitor application // Physical Chemistry Chemical Physics. 2007. Vol. 9. P. 1774–1785. <https://www.doi.org/10.1039/B618139M>
3. Shen H., Liu E., Xiang X., Huang Z., Tian Y., Wu Y., Wu Z., Xie H. A novel activated carbon for supercapacitors // Materials Research Bulletin. 2012. Vol. 47, № 3. P. 662–666. <https://www.doi.org/10.1016/j.materresbull.2011.12.028>
4. Faraji S., Ani F. N. The development supercapacitor from activated carbon by electroless plating—A review // Renewable and Sustainable Energy Reviews. 2015. Vol. 42. P. 823–834. <https://www.doi.org/10.1016/j.rser.2014.10.068>
5. Xiao Y., Long C., Zheng M.-T., Dong H.-W., Lei B.-F., Zhang H.-R., Liu Y.-L. High-capacity porous carbons prepared by KOH activation of activated carbon for supercapacitors // Chinese Chemical Letters. 2014. Vol. 25, № 6. P. 865–868. <https://www.doi.org/10.1016/j.ccl.2014.05.004>
6. Wang Y., Xia Y. Recent progress in supercapacitors : From materials design to system construction // Advanced Materials. 2013. Vol. 25. P. 5336–5342. <https://www.doi.org/10.1002/adma.201301932>
7. Zhao J., Burke A. F. Electrochemical Capacitors : Performance Metrics and Evaluation by Testing and Analysis // Advanced Energy Materials. 2020. Vol. 11. P. 1–29. <https://www.doi.org/10.1002/aenm.202002192>
8. Zhu S., Ni J., Li Y. Carbon nanotube-based electrodes for flexible supercapacitors // Nano Research. 2020. Vol. 13. P. 1825–1841. <https://www.doi.org/10.1007/s12274-020-2729-5>
9. Yang Z., Tian J., Yin Z., Cui C., Qian W., Wei F. Carbon nanotube- and graphene-based nanomaterials and applications in high-voltage supercapacitor : A review // Carbon. 2019. Vol. 41. P. 467–480. <https://www.doi.org/10.1016/j.carbon.2018.10.010>
10. Yu H., Zhang B., Bulin C., Li R., Xing R. High-efficient Synthesis of Graphene Oxide Based on Improved Hummers Method // Scientific Reports. 2016. Vol. 6. P. 1–7. <https://www.doi.org/10.1038/srep36143>
11. Down M. P., Rowley-Neale S. J., Smith G. C., Banks C. E. Fabrication of Graphene Oxide Supercapacitor Devices // ACS Applied Energy Materials. 2018. Vol. 1, № 3. P. 707–714. <https://www.doi.org/10.1021/acs.aem.7b00164>
12. Nishina Y., Eigler S. Chemical and electrochemical synthesis of graphene oxide – a generalized view // Nanoscale. 2020. Vol. 12. P. 12731–12740. <https://www.doi.org/10.1039/D0NR02164D>
13. Singh R., Tripathi C. C. Synthesis of colloidal graphene by electrochemical exfoliation of graphite in lithium sulphate // Materials Today : Proceedings. 2018. Vol. 5, № 1. P. 973–979. <https://www.doi.org/10.1016/j.matpr.2017.11.173>
14. Kumar N., Srivastava V. C. Simple Synthesis of Large Graphene Oxide Sheets via Electrochemical



Method Coupled with Oxidation Process // ACS Omega. 2018. Vol. 3. P. 10233–10242. <https://www.doi.org/10.1021/acsomega.8b01283>

15. Яковлева Е. В., Яковлев А. В., Краснов В. В., Целуйкин В. Н., Мостовой А. С., Курамина Н. Ю., Брудник С. В. Электрохимическое наноструктурирование графита для применения в химических источниках тока // Электрохимическая энергетика. 2020. Т. 20, № 1. С. 45–54. <https://www.doi.org/10.18500/1608-4039-2020-20-1-45-54>

16. Li Z., Gadipelli S., Yang Y., He G., Guo J., Li J., Lu Y., Howard C. A., Brett D. J. L., Parkin I. P., Li F., Guo Z. Exceptional supercapacitor performance from optimized oxidation of graphene-oxide // Energy Storage Materials. 2019. Vol. 17. P. 12–21. <https://www.doi.org/10.1016/j.ensm.2018.12.006>

17. Li Z., Gadipelli S., Yang Y., Guo Z. Design of 3D Graphene-Oxide Spheres and Their Derived Hierarchical Porous Structures for High Performance Supercapacitors // Small. 2017. Vol. 13, № 44. P. 1702474. <https://www.doi.org/10.1002/smll.201702474>

18. Яковлев А. В., Яковлева Е. В., Целуйкин В. Н., Краснов В. В., Мостовой А. С., Викулова М. А., Фролов И. Н., Рахметулина Л. А. Синтез многослойного оксида графена при электрохимическом диспергировании графита в H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> // Журнал прикладной химии. 2020. Т. 93, № 2. С. 222–228. <https://www.doi.org/10.31857/S0044461820020097>

19. Aliyev E., Filiz V., Khan M. M., Lee Y. J., Abetz C., Abetz V. Structural Characterization of Graphene Oxide : Surface Functional Groups and Fractionated Oxidative Debris // Nanomaterials. 2019. Vol. 9. P. 1180–1195. <https://www.doi.org/10.3390/nano9081180>

20. Avouris P., Dimitrakopoulos C. Graphene : Synthesis and applications // Materials Today. 2012. Vol. 15, № 3. P. 86–97. [https://www.doi.org/10.1016/S1369-7021\(12\)70044-5](https://www.doi.org/10.1016/S1369-7021(12)70044-5)

21. Hou R., Gund G. S., Qi K., Nakhnivej P., Liu H., Li F., Park H. S. Hybridization design of materials and devices for flexible electrochemical energy storage // Energy Storage Materials. 2019. Vol. 19. P. 212–241. <https://www.doi.org/10.1016/j.ensm.2019.03.002>

## REFERENCES

1. Zhao J., Burke A. F. Review on supercapacitors : Technologies and performance evaluation. *Journal of Energy Chemistry*, 2021, vol. 59, pp. 276–291. <https://www.doi.org/10.1016/j.jchem.2020.11.013>

2. Frackowiak E. Carbon materials for supercapacitor application. *Physical Chemistry Chemical Physics*, 2007, vol. 9, pp. 1774–1785. <https://www.doi.org/10.1039/B618139M>

3. Shen H., Liu E., Xiang X., Huang Z., Tian Y., Wu Y., Wu Z., Xie H. A novel activated carbon for supercapacitors. *Materials Research Bulletin*, 2012, vol. 47, no. 3, pp. 662–666. <https://www.doi.org/10.1016/j.materresbull.2011.12.028>

4. Faraji S., Ani F. N. The development supercapacitor from activated carbon by electroless plating – A review. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 2015, vol. 42, pp. 823–834. <https://www.doi.org/10.1016/j.rser.2014.10.068>

5. Xiao Y., Long C., Zheng M.-T., Dong H.-W., Lei B.-F., Zhang H.-R., Liu Y.-L. High-capacity porous carbons prepared by KOH activation of activated carbon for supercapacitors. *Chinese Chemical Letters*, 2014, vol. 25, no. 6, pp. 865–868. <https://www.doi.org/10.1016/j.cclet.2014.05.004>

6. Wang Y., Xia Y. Recent progress in supercapacitors : From materials design to system construction. *Advanced Materials*, 2013, vol. 25, pp. 5336–5342. <https://www.doi.org/10.1002/adma.201301932>

7. Zhao J., Burke A. F. Electrochemical Capacitors : Performance Metrics and Evaluation by

Testing and Analysis. *Advanced Energy Materials*, 2020, vol. 11, pp. 1–29. <https://www.doi.org/10.1002/aenm.202002192>

8. Zhu S., Ni J., Li Y. Carbon nanotube-based electrodes for flexible supercapacitors. *Nano Research*, 2020, vol. 13, pp. 1825–1841. <https://www.doi.org/10.1007/s12274-020-2729-5>

9. Yang Z., Tian J., Yin Z., Cui C., Qian W., Wei F. Carbon nanotube- and graphene-based nanomaterials and applications in high-voltage supercapacitor : A review. *Carbon*, 2019, vol. 41, pp. 467–480. <https://www.doi.org/10.1016/j.carbon.2018.10.010>

10. Yu H., Zhang B., Bulin C., Li R., Xing R. High-efficient Synthesis of Graphene Oxide Based on Improved Hummers Method. *Scientific Reports*, 2016, vol. 6, pp. 1–7. <https://www.doi.org/10.1038/srep36143>

11. Down M. P., Rowley-Neale S. J., Smith G. C., Banks C. E. Fabrication of Graphene Oxide Supercapacitor Devices. *ACS Applied Energy Materials*, 2018, vol. 1, no. 3, pp. 707–714. <https://www.doi.org/10.1021/acsaem.7b00164>

12. Nishina Y., Eigler S. Chemical and electrochemical synthesis of graphene oxide – a generalized view. *Nanoscale*. 2020, vol. 12, pp. 12731–12740. <https://www.doi.org/10.1039/D0NR02164D>

13. Singh R., Tripathi C. C. Synthesis of colloidal graphene by electrochemical exfoliation of graphite in lithium sulphate. *Materials Today : Proceedings*, 2018, vol. 5, no. 1, pp. 973–979. <https://www.doi.org/10.1016/j.matpr.2017.11.173>

14. Kumar N., Srivastava V. C. Simple Synthesis of Large Graphene Oxide Sheets via Electrochemical Method Coupled with Oxidation Process. *ACS Omega*, 2018, vol. 3, pp. 10233–10242. <https://www.doi.org/10.1021/acsomega.8b01283>
15. Yakovleva E. V., Yakovlev A. V., Krasnov V. V., Tseluikin V. N., Mostovoy A. S., Kuramina N. Y., Brudnik S. V. Electrochemical nanostructuring of graphite for application in chemical current sources. *Electrochemical Energetics*, 2020, vol. 20, no. 1, pp. 45–54 (in Russian). <https://www.doi.org/10.18500/1608-4039-2020-20-1-45-54>
16. Li Z., Gadipelli S., Yang Y., He G., Guo J., Li J., Lu Y., Howard C. A., Brett D. J. L., Parkin I. P., Li F., Guo Z. Exceptional supercapacitor performance from optimized oxidation of graphene-oxide. *Energy Storage Materials*, 2019, vol. 17, pp. 12–21. <https://www.doi.org/10.1016/j.ensm.2018.12.006>
17. Li Z., Gadipelli S., Yang Y., Guo Z. Design of 3D Graphene-Oxide Spheres and Their Derived Hierarchical Porous Structures for High Performance Supercapacitors. *Small*, 2017, vol. 13, no. 44, pp. 1702474. <https://www.doi.org/10.1002/smll.201702474>
18. Yakovlev A. V., Yakovleva E. V., Tseluikin V. N., Krasnov V. V., Mostovoy A. S., Vikulova M. A., Frolov I. N., Rakhmetulina L. A. Synthesis of multilayer graphene oxide during electrochemical dispersion of graphite in H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>. *Journal of Applied Chemistry*, 2020, vol. 93, no. 2, pp. 222–228 (in Russian). <https://www.doi.org/10.31857/S0044461820020097>
19. Aliyev E., Filiz V., Khan M. M., Lee Y. J., Abetz C., Abetz V. Structural Characterization of Graphene Oxide : Surface Functional Groups and Fractionated Oxidative Debris. *Nanomaterials*, 2019, vol. 9, pp. 1180–1195. <https://www.doi.org/10.3390/nano9081180>
20. Avouris P., Dimitrakopoulos C. Graphene : Synthesis and applications. *Materials Today*, 2012, vol. 15, no. 3, pp. 86–97. [https://www.doi.org/10.1016/S1369-7021\(12\)70044-5](https://www.doi.org/10.1016/S1369-7021(12)70044-5)
21. Hou R., Gund G. S., Qi K., Nakhnivej P., Liu H., Li F., Park H. S. Hybridization design of materials and devices for flexible electrochemical energy storage. *Energy Storage Materials*, 2019, vol. 19, pp. 212–241. <https://www.doi.org/10.1016/j.ensm.2019.03.002>

---

Поступила в редакцию 8.11.2021 / После рецензирования 17.11.2021 / Принята 10.12.2021  
Received 8.11.2021 / Revised 17.11.2021 / Accepted 10.12.2021