

doi: 10.3969/j.issn.1001-3849.2023.09.007

三维石墨烯的制备及其应用

何天翊¹, 郭旭丽¹, 李小丽², 史雨菲¹, 姜越^{2*}

(1. 河北工程大学 医学院, 河北 邯郸 056000; 2. 河北工程大学 材料科学与工程学院, 河北 邯郸 056000)

摘要: 三维石墨烯材料因其高孔隙率、大比表面积、优异的导电性能和机械强度以及良好的生物相容性被广泛应用于众多领域。本文综述了三维石墨烯材料的主要制备方法, 介绍三维石墨烯材料在传感器、能源、环保、生物医学领域的应用。分析了当前三维石墨烯各类制备技术的优缺点。最后针对三维石墨烯材料制备面临的问题和未来发展趋势进行了总结和展望。

关键词: 三维石墨烯; 制备方法; 应用

中图分类号: O613.71 **文献标识码:** A

Preparation and application of three-dimensional graphene

He Tianyi¹, Guo Xuli¹, Li Xiaoli², Shi Yufei¹, Jiang Yue^{2*}

(1. Medical College, Hebei University of Engineering, Handan 056000, China; 2. School of Materials Science and Engineering, Hebei University of Engineering, Handan 056000, China)

Abstract: Three-dimensional graphene materials are widely used in many fields because of their high porosity, large specific surface area, excellent electrical conductivity, mechanical strength and good biocompatibility. In this paper, the main preparation methods of three-dimensional graphene materials are reviewed, and the applications of three-dimensional graphene materials in sensors, energy, environmental protection and biomedicine are introduced. The advantages and disadvantages of various preparation technologies of three-dimensional graphene are analyzed. Finally, the problems and future development trends of three-dimensional graphene materials are summarized and prospected.

Keywords: three-dimensional graphene; preparation method; application

石墨烯是由 sp^2 杂化的碳原子组成的具有单层原子厚度的平面结构, 是组建其它维度碳材料的基本单元^[1]。上述特殊的二维平面结构使其表现出许多优异的理化性质。石墨烯片层之间存在 $\pi-\pi$ 键以及范德华力^[2], 易发生团聚和堆叠现象, 阻碍石墨烯基材料相关应用及发展。三维石墨烯是由二维石墨烯片层构筑的三维宏观结构, 不仅继承了石墨烯

优异的性能, 并且具有低密度、导电性能良好、可压缩、高孔隙率、比表面积大等特点。将三维石墨烯与其他材料复合, 可以在一定程度上改变其内部结构, 从而满足不同领域的需求。这些性能使得三维石墨烯在储能、环境管理、航空航天、生物医药等领域都有着广泛的应用^[3-5]。

虽然三维石墨烯具有优异性能, 但生产成本昂

收稿日期: 2023-02-06

修回日期: 2023-02-26

作者简介: 何天翊(2001—), 男, 本科生, email: 2621047239@qq.com

*通信作者: 姜越, email: yuej1986@yeah.net.

基金项目: 河北省自然科学基金资助项目(E2019402213); 河北工程大学博士专项基金资助项目.

贵,大规模制备的不稳定性以及生产过程中产生的有毒物质等问题限制了其发展与应用。因此,为了解决所面临的问题并为相关的研究工作提供新的思路,全面了解三维石墨烯材料至关重要。本文在综述国内外最新研究进展后,对三维石墨烯材料的制备方法、复合材料性能和应用领域等方面进行了详细的分析和讨论,并对三维石墨最新发展趋势进行了展望。

1 三维石墨烯的制备方法

三维石墨烯具有比表面积大、密度低、高导电性和优异的电化学稳定性。如何降低生产成本并且大规模制备三维石墨烯材料便成为最主要的问题。目前其制备方法分为无模板法和有模板法。不同的三维石墨烯制备方法各有相应的优缺点。

1.1 无模板法

氧化石墨烯(GO)作为石墨烯的衍生物,广泛用于组装各种三维石墨烯宏观结构。其中,无模板法就主要是以GO溶液为原材料,经过自组装和还原后形成三维石墨烯材料。这是目前最常使用的方法之一。无模板法制备的三维石墨烯存在导电性能较差以及三维石墨烯网络结构和孔隙结构难以调控等问题。但由于其低成本和高产量的优点使得大规模生产三维石墨烯成为可能。常用无模板法有水热(溶剂热)还原法、化学还原法、交联法、气体膨胀法、电化学还原法、三维(3D)打印法等。

1.1.1 水热还原法或溶剂热法

水热反应是使用水溶液作为反应介质,通过加热反应系统,形成高温、高压环境,而溶剂热法则是将上述反应介质更换为有机溶剂,来制备三维石墨烯。Xu Y等人^[6]首次采用水热还原法,将不同浓度的GO溶液在高压反应釜中,180℃水热反应一定时间后,得到结构稳定的三维石墨烯水凝胶。Wu Y等人^[7]通过GO在乙醇中的溶剂热反应和进一步热退火处理合成了可重复压缩的石墨烯基海绵材料。通过使用冷冻干燥或超临界干燥法,这些石墨烯水凝胶/有机凝胶可以转化为石墨烯基气凝胶。水热法或溶剂热法是最常见且高效制备三维石墨烯的方法。该方法无需添加其它化学物质,缺点是由于对设备的依赖导致难以大规模生产。

1.1.2 化学还原法

相比于水热(溶剂热)反应的高温、耗时,化学还

原法是通过添加还原剂(抗坏血酸、多巴胺、水合肼等),在较温和的条件下实现三维石墨烯网络的自组装。目前已不满足添加单一还原剂,多种还原剂协同制备三维石墨烯材料已被广泛采用。Pham H D等人^[8]使用次磷酸和碘协同还原GO,此复合体系制备的三维石墨烯较水热法合成的材料,具有更高的导电率。化学还原法操作简单,反应条件温和,常用于大规模、低成本生产三维石墨烯。

1.1.3 交联法

GO含有大量的羟基、羧基、环氧基以及疏水大分子平面。这些官能团给化学/物理交联提供了丰富的连接位点,借助交联剂,如聚合物、生物分子、多价离子、有机小分子等,通过 $\pi-\pi$ 堆叠、氢键、配位、静电或共价相互作用将GO片层连接起来,形成三维结构。Bai H等人^[9]报道了一种用聚乙烯醇(PVA)作为交联剂,制备的GO/PVA水凝胶。该水凝胶表现出在不同pH值诱导下的凝胶-溶胶转变。Qin Y等人^[10]将水溶性聚酰亚胺与一定量的GO溶液混合,进行冷冻干燥和热退火处理后,获得具有泡沫结构的三维石墨烯基材料。虽然通过交联方法制备的三维石墨烯通常表现出低密度、高机械柔韧性和导电性,但它们在三维多孔材料的结构和功能控制上受到限制。

1.1.4 气体膨胀法

二维层状石墨烯薄膜内部通过化学反应产生的气体膨胀会在石墨烯片层之间产生一些孔隙和空间,从而形成三维多孔石墨烯结构。Niu Z等人^[11]利用“发酵”的策略将致密石墨烯层状结构转化为具有多孔网络的三维石墨烯。制备的还原氧化石墨烯(rGO)泡沫在超级电容器以及选择性吸收有机溶剂方面具有潜在的应用。此外,Wang X等人^[12]报道了一种基于聚合物前体通过中温熔融吹泡以及高温聚合碳化步骤的“吹糖法”制备具有三维气泡网络结构的石墨烯产品,该方法合成的材料具有产率高、成本低、结构完整性好等优点。

1.1.5 电化学还原

电化学还原策略是在电极上沉积三维自组装石墨烯。常用的方法包括循环伏安法(CV)、线性扫描伏安法(LSV)或恒电位还原等,通过电化学还原GO,所得的rGO片在电极表面上自组装,形成三维多孔网络。GO的电化学还原可以在不同类型的电极上进行,例如石墨烯纸、泡沫镍、金属或纤维等。

Sheng K 等人^[13]通过在金属电极(Au)上电解含有 $0.1 \text{ mol} \cdot \text{dm}^{-3}$ 高氯酸锂的GO($3 \text{ mg} \cdot \text{mL}^{-1}$)形成具有三维网络的电化学还原氧化石墨烯(ErGO),沉积的ErGO孔径在几微米到十几微米的范围内。该方法类似于电镀工艺,它快速、简单、廉价并且易于扩展到工业实验水平。

1.1.6 3D打印法

3D打印技术是一种以计算机辅助设计为基础,通过逐层堆积材料的方式,实现制造结构可编辑的三维框架的一种工艺^[14]。Cao K 等人^[15]通过抗坏血酸还原GO,然后将rGO与卡波姆水凝胶混合均匀后滴加NaOH调节溶液的流变性,利用上述材料制备3D打印产品,然后产品经过冷冻干燥和高温退火处理制备具有特定形状的石墨烯材料。3D打印法具有制作工艺简单并且可以控制产品形貌等优点,在生产具有特殊结构的三维石墨烯方面具有优势。但是目前3D打印法的成本过高,对原料以及设备都有较高要求。这限制其在大规模生产三维石墨烯基材料中的发展。

1.2 模板法

三维石墨烯材料的性能与其多孔结构密切相关,其中孔隙率、孔径、孔隙形状等结构对三维石墨烯材料的性能起到决定性作用。因此,设计和控制三维石墨烯材料的结构具有重要意义。模板法被认为是制备具有特定孔隙结构的三维石墨烯材料的有效控制方法。其是通过不同材质的模板对石墨烯基材料定向组装后除去相应模板,得到形成有序结构的三维石墨烯材料。模板法通常需要复杂的实验操作和模板的牺牲。此法合成的三维石墨烯的形貌受模板材质和实验温度等条件控制。通过模板法合成的三维石墨烯材料具有孔隙率高、尺寸可控性等优点。但此法操作难度较大、成本较高、在大规模生产领域发展受限。目前常用的模板法有化学气相沉积法、聚合物模板法、软模板法等。

1.2.1 化学气相沉积法

化学气相沉积法(CVD)是利用碳源,在高温条件下发生反应,使石墨烯沉积在三维模板表面,再通过化学蚀刻除去模板,形成多孔三维结构的石墨烯材料。通常,金属框架、氧化物、矿物(如沸石)等被用做模板。Chen Z等^[16]首次使用CVD法,利用泡沫镍为模板,制备出三维泡沫状石墨烯宏观结构。Shi L 等人^[17]开发了一种基于贝壳的CVD生长技

术,用于生长具有不同形态的石墨烯泡沫。该泡沫表现出对一定种类的有机溶剂的快速吸附性能。相比于金属模板成本昂贵及难以充分除去,非金属模板具有低成本,易于移除,污染小等优点为三维石墨烯的大规模生产提供了可能。CVD法制备的三维石墨烯导电性能优于其它方法。缺点是该方法需要高温、苛刻的制备条件,而且必须选择合适的模板材料。

1.2.2 聚合物模板法

以聚合物泡沫(三聚氰胺、聚氨酯(PU)等)/聚合物颗粒(聚苯乙烯(PS)颗粒、聚甲基丙烯酸甲酯颗粒等)作为模板也是制备三维石墨烯的常用方法之一。Yao H B 等人^[18]将GO纳米片涂在PU海绵的骨架上,在氢碘酸溶液中还原后经过水热处理并压缩一定时间得到了一种柔性低成本压力传感器材料。此外,Yang L 等人^[19]以PS微球为模板研发了一种高度有序的三维石墨烯基材料。以聚合物泡沫/颗粒为基础的模板法具有生产规模大、成本低、操作简单等优点。缺点是制备的三维石墨烯材料电化学性能会有一定程度的下降。

1.2.3 软模板法

常用的软模板有冰晶、有机物分子、气泡等。以冰晶为模板主要是过改变冷冻的温度、方向以及速率等来控制冰晶的数量、大小和形态用以制备具有特殊结构的三维石墨烯。Gao H L 等人^[20]以冰晶为模板应用双向冷冻工艺获得具有层状连拱结构的超弹性、高压缩性三维石墨烯。Zhang P 等人^[21]以气泡为软模板,批量制备出具有超高弹性的密实化石墨烯泡沫。该泡沫具有优异的机械和电化学性能。软模板法是一种简单易行的三维石墨烯制备方法。通过此法,可以大规模制备出具有不同形状的三维石墨烯材料。

2 三维石墨烯材料的应用

三维石墨烯材料相较于零维石墨烯量子点、一维石墨烯纤维、二维石墨烯薄膜,具有孔隙率高、比表面积大等特点。三维石墨烯独特的结构和性能为其在多个领域的发展带来良好的前景。

2.1 三维石墨烯材料在传感领域的应用

目前,三维石墨烯材料已被开发用于:压电传感器、电化学传感器、气体传感器等。三维石墨烯由于其独特的多孔结构,在高性能气体传感领域具有广

阔的应用前景。Dong Q等人^[22]提出了一种新的燃烧方法来构建3D-rGO。这种复合泡沫由蔗糖、GO和碳酸钠在乙醇火焰中混合而成。所得泡沫结构的三维石墨烯具有较高的灵敏度和良好的选择性,有望用于痕量和快速检测NO₂。此外,Zeng Z等人^[23]以GO和亲水大分子(木质素、PVA等)为原料,通过定向冷冻干燥和热退火处理,成功制备了一种超轻、

高柔性、交联石墨烯基仿生气凝胶。该超轻气凝胶传感器可以应用于0.2 V的超低电压下,能够在13~2750 Pa的压力范围内实现了10 kPa⁻¹的超高压灵敏度,并且还具有良好的传感稳定性和耐久性(图1)。三维石墨烯因其优良的性能对于实现传感器的高灵敏度、快速响应、可穿戴性、低成本等具有非常重要的意义。

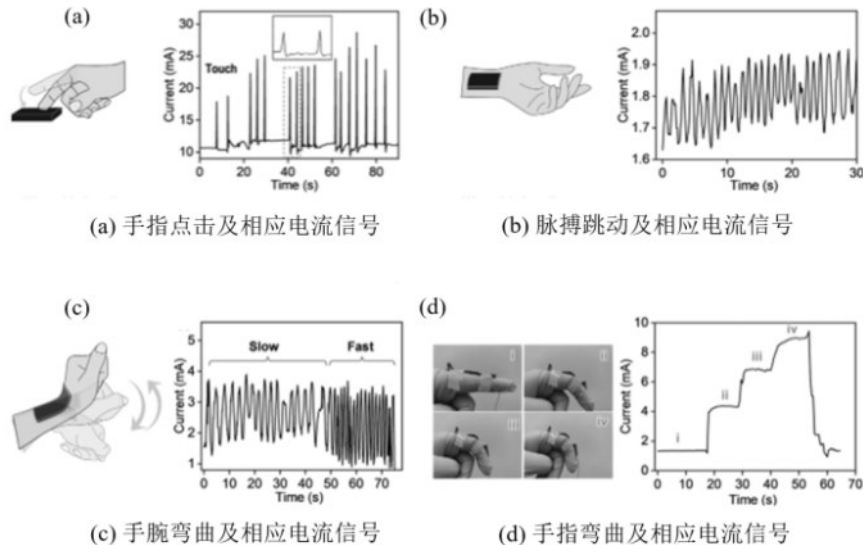


图1 石墨烯气凝胶传感器的应用演示^[23]

Fig.1 Application demonstration of the graphene-based aerogel sensors.^[23]

2.2 三维石墨烯材料在能源领域的应用

由于其高导电网络和大比表面积以及较高的机械强度,三维石墨烯基材料已被广泛用于超级电容器电极材料。近年来,三维石墨烯在电池(锂离子电池、锂硫电池、金属空气电池等)领域中的应用也受到越来越多的关注。此外,三维石墨烯材料在燃料电池/微生物燃料电池、太阳能电池、析氢等能量转换方面发挥着关键作用。

Mohamed N B等人^[24]利用一种简单的电化学方法,通过GO和阳离子表面活性剂之间的静电相互作用,直接沉积功能化石墨烯框架(图2)。该超级电容器表现出低内阻,优异的循环稳定性,并且具有高比电容(320 F·g⁻¹)和高面积电容,与商用活性炭超级电容器相比具有明显的优势。此外,该材料可以作为电化学传感器测定抗坏血酸、多巴胺和尿酸等生物分子。

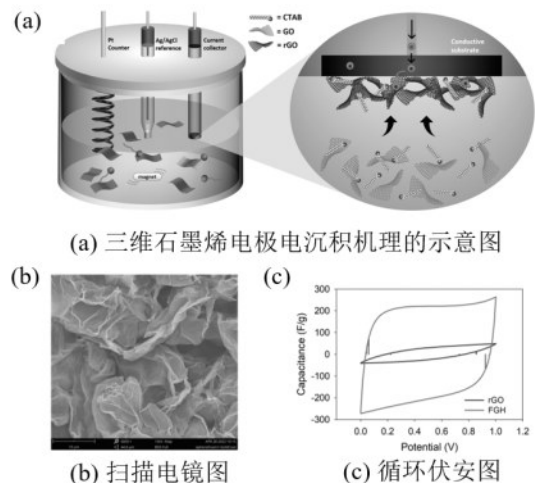


图2 3D石墨烯电极电沉积机理的示意图、扫描电镜图像和循环伏安图^[24]

Fig.2 A schematic illustration showing the mechanism of direct electrodeposition of the 3D graphene electrode, SEM images of graphene networks, and cyclic voltammograms^[24]

除了在能量储存方面三维石墨烯有着巨大潜力,在能量转换方面也有着不错的应用前景。Ding Y 等人^[25]开发了一种吸附-热解方法来构建负载超细钌纳米晶的氮掺杂石墨烯气凝胶(Ru-NCs/N-GA)。Ru-NCs 的粒径和 N-GA 衬底的电导率可以通过改变热解温度来控制。该气凝胶表现出优异的活性和耐久性,从而为商用析氢反应的催化剂的生产开辟了新的途径。

2.3 三维石墨烯材料在环保领域的应用

随着社会的发展,环境问题越来越受到人们的关注。治理石油泄漏,有机物、重金属造成的水污染也成为当下的研究热点。三维石墨烯具有的高孔隙率、低密度、大比表面积以及超亲油性和超疏水性^[26],成为制备新型吸附材料的首选。

Hu Y 等人^[27]制备了一种具有高弹性、光热转换能力和吸附能力的三维石墨烯气凝胶(MEGA),制备的 MEGA 呈层状结构,这种多孔结构不仅提高了气凝胶的疏水性,而且使其具有较强的吸油能力(是自身重量的 41-118 倍)。特别是 MEGA 表现出优异的光热转换能力,其在光照下,温度在 100 s 内由室温上升到 80 °C。对一滴原油的吸附时间由原来的 5 h 缩短至 40 s。研究表明,所制备的 MEGA 在石油特别是原油分离中具有广阔的应用前景(图 3)。

Ding M 等人^[28]使用商业泡沫作为牺牲骨架制备了超弹性、任意形状的三维粘土/石墨烯气凝胶(CGAs),疏水性的 CGAs 对有机溶剂的吸附能力为自身重量的 186-519 倍。压缩和燃烧两种方法都可以使 CGAs 被重复利用。这项作为三维组装 CGAs 的设计提供了新的见解,并推进了其在太阳能海水淡化和高效油/有机溶剂吸附中的应用。

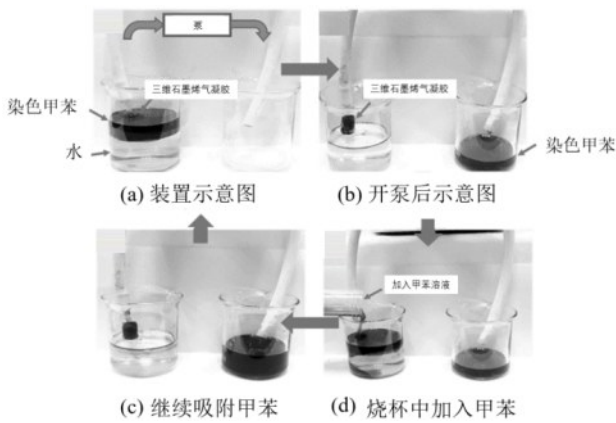


图3 由 MEGA 组成的集油装置^[27]
Fig.3 The oil collecting device composed of MEGA^[27]

2.4 三维石墨烯材料在生物医学材料领域的应用

由于其超高的力学性能、良好的化学稳定性和良好的生物相容性,可以将三维石墨烯纳米材料应用于生物医学领域。Sanati A 等研究人员^[29]将 GO 涂在商用聚氨酯泡沫上,随后用抗坏血酸还原聚氨酯泡沫,生产出具有更强生物力学、生物活性以及组织和骨再生性能的 3D 支架(3DrGO/PU)。实验对大鼠颅骨缺损的体内骨形成进行评估。8 周时,大鼠颅骨缺损边缘部位向中心方向有细胞增殖和骨形成(图 4)。这种创新的设计在不规则骨缺损的治疗方面极有潜力。Hu T 等人^[30]制备了一种基于多孔三维石墨烯气凝胶(3D-GA)的高灵敏度电化学免疫生物芯片,用于检测多种肿瘤生物标志物和外泌体。通过用 L-抗坏血酸原位化学还原 GO,然后利用冷冻干燥法制备 3D-GA。由于其固有的三维多孔结构,所获得的 3D-GA 具有较大的比表面积。对 3D-GA 进行化学活化和修饰后,制备的微流控生物芯片可通过电化学阻抗谱(EIS)检测液体样品中的各种肿瘤标志物。此外,三维石墨烯材料已被成功地用于创伤愈合、再生医学及组织工程学等领域。

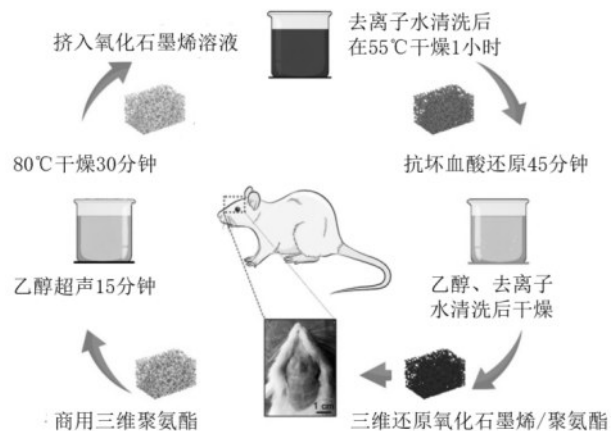


图4 3DrGO/PU 支架的制备及其在大鼠颅骨再生中的应用^[29]

Fig. 4 Stepwise procedure of 3DrGO/PU scaffold fabrication and its application for rat's skull bone regeneration^[29]

3 总结与展望

综上,目前三维石墨烯材料的制备方法,可分为无模板法和模板法。常用的无模板法有水热(溶剂热)还原法、化学还原法、交联法、气体膨胀法、电化学还原法、3D 打印法等。无模板法的优点在于低成本

本与高产量,但其缺点是制备的三维石墨烯材料性能较差,结构难以调控。常用的模板法有化学气相沉积法、聚合物模板法、软模板法等。相较于无模板法,模板法的优势在于可以合成性能优良并且尺寸、结构可控的三维石墨烯材料。然而其缺点主要集中在制备成本高,操作难度大,难以应用于大规模生产。所以如何实现三维石墨烯材料高品质、低成本、规模化制备成为当下研究热点。三维石墨烯材料有着独特的网络结构,优良的导电性能和力学性能使得其在传感器、能源、环保、生物医学等众多领域都有着广阔的发展前景。进一步加深三维石墨烯材料在各领域的应用与发展,提高材料性能与安全性,将会是未来研究的重点。

参考文献

- [1] Huang X, Qi X, Boey F, et al. Graphene-based composites[J]. *Chemical Society Reviews*, 2012, 41(2): 666-686.
- [2] Wang Z, Gao H, Zhang Q, et al. Recent advances in 3d graphene architectures and their composites for energy storage applications[J]. *Small*, 2019, 15(3): 1803858.
- [3] Mu Y, Han M, Li J, et al. Growing vertical graphene sheets on natural graphite for fast charging lithium-ion batteries[J]. *Carbon*, 2021, 173: 477-484.
- [4] Yang K, Wan J, Zhang S, et al. In vivo pharmacokinetics, long-term biodistribution, and toxicology of pegylated graphene in mice[J]. *ACS Nano*, 2011, 5(1): 516-522.
- [5] Neto A H C, Guinea F, Peres N M R, et al. The electronic properties of graphene[J]. *Reviews of Modern Physics*, 2009, 81(1): 109.
- [6] Xu Y, Sheng K, Li C, et al. Self-assembled graphene hydrogel via a one-step hydrothermal process[J]. *ACS Nano*, 2010, 4(7): 4324-4330.
- [7] Wu Y, Yi N, Huang L, et al. Three-dimensionally bonded spongy graphene material with super compressive elasticity and near-zero Poisson's ratio[J]. *Nature Communications*, 2015, 6(1): 1-9.
- [8] Pham H D, Pham V H, Cuong T V, et al. Synthesis of the chemically converted graphene xerogel with superior electrical conductivity[J]. *Chemical Communications*, 2011, 47(34): 9672-9674.
- [9] Bai H, Li C, Wang X, et al. A pH-sensitive graphene oxide composite hydrogel[J]. *Chemical Communications*, 2010, 46(14): 2376-2378.
- [10] Qin Y, Peng Q, Ding Y, et al. Lightweight, superelastic, and mechanically flexible graphene/polyimide nanocomposite foam for strain sensor application[J]. *ACS Nano*, 2015, 9(9): 8933-8941.
- [11] Niu Z, Chen J, Hng H H, et al. A leavening strategy to prepare reduced graphene oxide foams[J]. *Advanced Materials*, 2012, 24(30): 4144-4150.
- [12] Wang X, Zhang Y, Zhi C, et al. Three-dimensional strutted graphene grown by substrate-free sugar blowing for high-power-density supercapacitors[J]. *Nature Communications*, 2013, 4(1): 1-8.
- [13] Sheng K, Sun Y, Li C, et al. Ultrahigh-rate supercapacitors based on electrochemically reduced graphene oxide for ac line-filtering[J]. *Scientific Reports*, 2012, 2(1): 1-5.
- [14] Goyanes A, Wang J, Buanz A, et al. 3D printing of medicines: engineering novel oral devices with unique design and drug release characteristics[J]. *Molecular Pharmaceutics*, 2015, 12(11): 4077-4084.
- [15] Cao K, Wu M, Bai J, et al. Beyond skin pressure sensing: 3D printed laminated graphene pressure sensing material combines extremely low detection limits with wide detection range[J]. *Advanced Functional Materials*, 2022, 32(28): 2202360.
- [16] Chen Z, Ren W, Gao L, et al. Three-dimensional flexible and conductive interconnected graphene networks grown by chemical vapour deposition[J]. *Nature Materials*, 2011, 10(6): 424-428.
- [17] Shi L, Chen K, Du R, et al. Scalable seashell-based chemical vapor deposition growth of three-dimensional graphene foams for oil-water separation[J]. *Journal of the American Chemical Society*, 2016, 138(20): 6360-6363.
- [18] Yao H B, Ge J, Wang C F, et al. A flexible and highly pressure-sensitive graphene-polyurethane sponge based on fractured microstructure design[J]. *Advanced Materials*, 2013, 25(46): 6692-6698.
- [19] Yang L, Wang Z, Ji Y, et al. Highly ordered 3d graphene-based polymer composite materials fabricated by "particle-constructing" method and their outstanding conductivity[J]. *Macromolecules*, 2014, 47(5): 1749-1756.
- [20] Gao H L, Zhu Y B, Mao L B, et al. Super-elastic and fatigue resistant carbon material with lamellar multi-arch microstructure[J]. *Nature Communications*, 2016, 7(1): 1-8.
- [21] Lv L, Zhang P, Cheng H, et al. Solution-processed ultra-elastic and strong air-bubbled graphene foams[J]. *Small*, 2016, 12(24): 3229-3234.

- [22] Dong Q, Chu Z, Gong X, et al. Reduced graphene oxide spatially scaffolded by a sucrose-derived carbon framework for trace and fast gas detection[J]. *Carbon*, 2022, 191: 164-174.
- [23] Zeng Z, Wu N, Yang W, et al. Sustainable-macromolecule-assisted preparation of cross-linked, ultralight, flexible graphene aerogel sensors toward low-frequency strain/pressure to high-frequency vibration sensing[J]. *Small*, 2022, 18(24): 2202047.
- [24] Mohamed N B, El-Kady M F, Kaner R B. Macroporous graphene frameworks for sensing and supercapacitor applications[J]. *Advanced Functional Materials*, 2022, 32(42): 2203101.
- [25] Ding Y, Cao K W, He J W, et al. Nitrogen-doped graphene aerogel-supported ruthenium nanocrystals for pH-universal hydrogen evolution reaction[J]. *Chinese Journal of Catalysis*, 2022, 43(6): 1535-1543.
- [26] Sun H, Xu Z, Gao C. Multifunctional, ultra-flyweight, synergistically assembled carbon aerogels[J]. *Advanced Materials*, 2013, 25(18): 2554-2560.
- [27] Hu Y, Jiang Y, Ni L, et al. An elastic MOF/graphene aerogel with high photothermal efficiency for rapid removal of crude oil[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2023, 443: 130339.
- [28] Ding M, Lu H, Sun Y, et al. Superelastic 3D assembled clay/graphene aerogels for continuous solar desalination and oil/organic solvent absorption[J]. *Advanced Science*, 2022, 9(36): 2205202.
- [29] Sanati A, Kefayat A, Rafienia M, et al. A novel flexible, conductive, and three-dimensional reduced graphene oxide/polyurethane scaffold for cell attachment and bone regeneration[J]. *Materials & Design*, 2022, 221: 110955.
- [30] Hu T, Wu Z, Sang W, et al. A sensitive electrochemical platform integrated with a 3D graphene aerogel for point-of-care testing for tumor markers[J]. *Journal of Materials Chemistry B*, 2022, 10(36): 6928-6938.