



移动扫码阅读

范瑞博, 陈亮, 薛北辰, 等. 生物质基工程生物炭材料应用于超级电容器: 现状、挑战及前景 [J]. 能源环境保护, 2024, 38(6): 13-24.

FAN Ruibo, CHEN Liang, XUE Beichen, et al. Transforming biomass into engineered biochar materials for high-performance supercapacitors: Recent advances, challenges, and prospects [J]. Energy Environmental Protection, 2024, 38(6): 13-24.

生物质基工程生物炭材料应用于超级电容器: 现状、挑战及前景

范瑞博¹, 陈亮¹, 薛北辰², 王傲³, 苏银海¹, 张会岩¹, 袁湘洲^{1,*}

(1. 东南大学能源与环境学院能源热转换及其过程测控教育部重点实验室, 江苏南京 210096;

2. 海南大学海洋科学与工程学院, 海南海口 570228; 3. 中国林业科学研究院

林产化学工业研究所, 江苏南京 210042)

摘要: 超级电容器因其比能量高、稳定性好等优异性能, 被视为一种具有广阔发展前景的先进储能装置。近年来, 开发新型高性能超级电容器受到了学者们的广泛关注。作为超级电容器重要组成部分之一, 电极材料对超级电容器性能具有关键性影响。基于生物质资源丰富、廉价易得以及碳中和等优点, 工程生物炭不仅具备可再生、低成本和环境友好等特性, 还具有发达的孔结构、丰富的官能团及优异的稳定性。因此, 高性能工程生物炭基超级电容器的研发成为了当前研究的焦点。梳理生物质基工程生物炭材料作为超级电容器电极材料的最新研究进展, 讨论炭化、活化和杂原子掺杂等电极材料制备过程的基本原理。另外, 借助于机器学习方法阐述高性能工程生物炭电极材料的性能精准预测原理和结构高效构筑机制, 以揭示工程生物炭材料特性与超级电容器性能之间存在的内在关联。最后, 总结生物质基工程生物炭材料应用于高效储能系统所面临的挑战与前景, 同时为其商业化应用发展提供参考。

关键词: 超级电容器; 多孔炭材料; 生物质; 机器学习; 电化学性能

中图分类号: X505

文献标识码: A

文章编号: 2097-4183(2024)06-0013-12

Transforming biomass into engineered biochar materials for high-performance supercapacitors: Recent advances, challenges, and prospects

FAN Ruibo¹, CHEN Liang¹, XUE Beichen², WANG Ao³, SU Yin Hai¹,

ZHANG Huiyan¹, YUAN Xiangzhou^{1,*}

(1. Key Laboratory of Energy Thermal Conversion and Control of Ministry of Education, School of Energy and

Environment, Southeast University, Nanjing 210096, China; 2. School of Marine Science and

Engineering, Hainan University, Haikou 570228, China; 3. Institute of Chemical Industry of

Forest Products, Chinese Academy of Forestry, Nanjing 210042, China)

Abstract: Supercapacitors are widely considered as advanced energy storage devices with vast development prospects due to their excellent properties, including high specific energy and good cyclic stability. Recently, the development of novel and high-performance supercapacitors has attracted extensive attention. As one of the key components, the electrode material has a significant impact on the

收稿日期: 2024-02-21

修回日期: 2024-03-15

接受日期: 2024-03-18

DOI: 10.20078/j.eep.20240308

基金项目: 国家重点研发计划资助项目(2023YFB4203704)

作者简介: 范瑞博(2002—), 男, 江苏新沂人, 硕士研究生, 主要研究方向为能源与动力工程(高性能炭材料开发)。

E-mail: Ruibo_Fan@163.com

通讯作者: 袁湘洲(1987—), 男, 河南商丘人, 教授, 主要研究方向为生物质及有机固废热转化。E-mail: yuanxz@seu.edu.cn

electrochemical performance of supercapacitors. Engineering biochar not only has natural advantages such as renewability, cost-effectiveness, and environmental-friendliness but also possesses well-developed properties, including pore structure, functional group, and cyclic stability. Therefore, numerous investigations have been conducted to develop high-performance engineered biochar-based supercapacitors. This review provides an overview of emerging synthesis routes for engineered biochar-based electrode materials and discusses recent advances in various synthesis approaches, offering deeper and more comprehensive information on engineered biochar-based supercapacitors. Machine learning (ML)-based predictions and inverse designs have contributed to the innovation of engineered biochar-based electrode materials for high-performance applications, clarifying the inherent mechanisms and complex relationships between the properties of engineering biochar and the electrochemical performance of supercapacitors. Finally, detailed assessments from perspectives of environmental benefits and economic feasibilities are proposed as science-based guidelines for industries and policymakers. The main existing challenges and solutions of engineered biochar-based energy storage systems are discussed, aiming to accelerate commercial applications of engineered biochar-based supercapacitors.

Keywords: Supercapacitor; Porous carbon materials; Biomass; Machine learning; Electrochemical performance

0 引言

当今世界,能源危机与环境污染是全人类共同关注的焦点。传统化石燃料的大规模使用对环境造成了破坏性的影响(如气候变化或全球变暖)^[1],过度依赖有限的化石燃料加剧了能源危机。在碳中和背景下,亟须开发绿色低碳、可持续的新能源,高效清洁地替代传统化石能源,同时符合零碳或负碳排放的国家战略需求^[2]。近年来,随着新能源技术的突飞猛进,可以低成本、高效率地利用可再生能源^[3]。然而这些可再生能源(如太阳能、风能等)存在间歇性和不稳定性等缺点。因此,对高性能、环境友好型能源存储装置的需求越来越大^[4]。超级电容器(Supercapacitor)是一种高

能量、高功率密度的新型储能装置,依据其储能机制可以分为双电层超级电容器(Electric Double-Layer Capacitance, EDLC)、赝电容超级电容器(Pseudocapacitor)和混合型超级电容器(Hybrid Supercapacitor)。混合型超级电容器因其两极储能方式不同又称为非对称超级电容器,集聚了双电层型和赝电容型 2 种电容器的优点,显示出更大的能量密度、更优异的循环稳定性及更宽的电压窗口等特点^[5]。相比于电池,超级电容器具有充放电速度快、循环寿命长、功率密度高、工作温度范围宽等优点,但其能量密度偏低(表 1)。基于以上特点,超级电容器被广泛应用于电子设备^[6]、交通运输^[7]、可再生能源储存^[8-10]、工业设备^[11]、医疗设备^[12-13]、航空航天^[14]等领域。

表 1 超级电容器与电池性能参数对比^[15-19]

Table 1 Performance comparisons of supercapacitor and battery^[15-19]

| 储能装置 | 充放电速度/s | 循环寿命/h | 功率密度/(W·kg ⁻¹) | 可工作温度范围/℃ | 能量密度/(W·h·kg ⁻¹) |
|-------|-------------|----------|----------------------------|-----------|------------------------------|
| 电池 | 3 000~3 600 | 500 | 1 000 | 20~60 | > 250 |
| 超级电容器 | 1~10 | > 30 000 | 10 000 | -40~70 | < 30 |

电极材料是决定超级电容器性能的重要因素之一^[20]。电极材料的比表面积、孔隙结构和表面官能团等是影响超级电容器性能的重要因素: 1)比表面积: EDLC 是通过电极表面与电解质溶液形成的“双电层”存储电荷,因此提高比表面积可增加电极与电解液接触面积,从而在一定程度

上提高碳电极的比电容^[21]; 2)孔隙结构: 通过优化电极材料中的孔隙结构,一方面可以提高碳电极的比表面积,另一方面特定的孔道结构有助于提高电解质离子的迁移速度,从而加快超级电容器的响应速度^[22]; 3)表面官能团: 未经处理的炭材料表面亲水性弱甚至具有疏水性,阻碍了电解液浸

润电极表面^[23], 引入相应的官能团可提高电极表面亲水性和导电性, 从而提高其比电容。当前超级电容器的电极材料主要有导电聚合物、金属氧化物和多孔炭材料。生物质基工程生物炭材料, 作为生物质高值化利用的一种主要产品, 不仅具有可再生、低成本、亲环境、易制备等资源属性, 还具有可控的孔结构与官能团、稳定的机械与化学性能等物化属性^[24]。因此, 工程生物炭材料作为超级电容器电极材料具有较好的应用前景, 备受当今学者的关注。基于 Web of Science 核心数据库, 以“Biomass”和“Supercapacitors”为检索主题, 汇总了 2009 年至 2023 年生物质和超级电容器主题的出版物数量(3 055 篇)和引文情况(2024 年 1 月更新)。一方面, 如图 1 所示, 近 5 年以超级电容器和生物质为主题的文章发表量大幅上升, 文章每年引用量增长迅速; 另一方面, 如图 2

所示, 对 3 055 篇文章的前 30 个关键词进行了科学计量可视化分析(VOSviewer Ver. 1.6.20), 发现木质素基电极材料的研究得到了学者们的广泛关注。

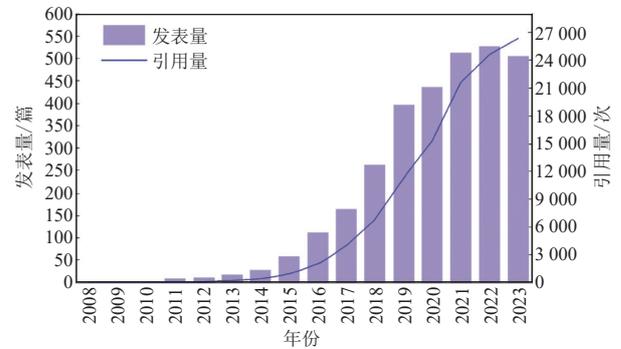


图 1 生物质、超级电容器相关出版物数量与引文情况

Fig. 1 Publications and citations related to biomass and supercapacitors

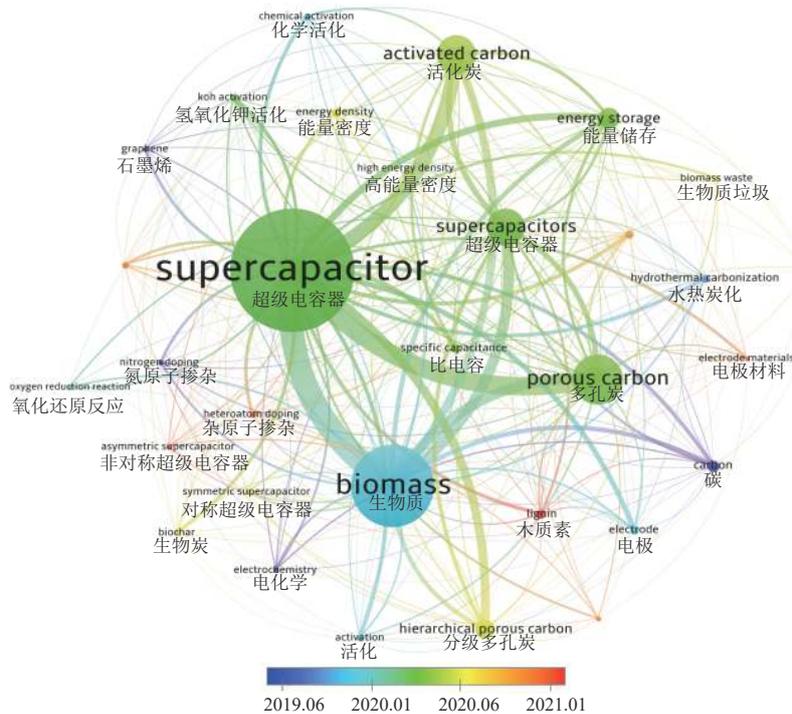


图 2 关键词统计可视化图形

Fig. 2 Keywords statistical visualization graphics

通过对炭化、活化和杂原子掺杂等处理方式开展广泛研究, 研究人员有效提升了工程生物炭基超级电容器应用性能。随着人工智能的发展和普及, 数据驱动实验及科技发展已经初见成效。

如图 3 所示, 作为典型的数据驱动方法, 机器学习受到了广泛关注, 其不仅可以替代繁重低效的传统试错法, 还可以通过数据驱动的方法对数据进行学习, 从中提取知识并进行预测, 极大提高

电极材料开发效率, 有助于推动材料科学和储能科学领域的快速发展。

炭化、活化和掺杂等先进技术的应用对超级电容器电极材料的性能产生深刻影响, 因此及时总结最新的技术进展对于推动超级电容器的发展具有重要意义。机器学习作为一种强大的工具, 将在材料研究领域引发颠覆性变革, 为传统的研究方法带来新可能。本文基于工程生物炭材料基

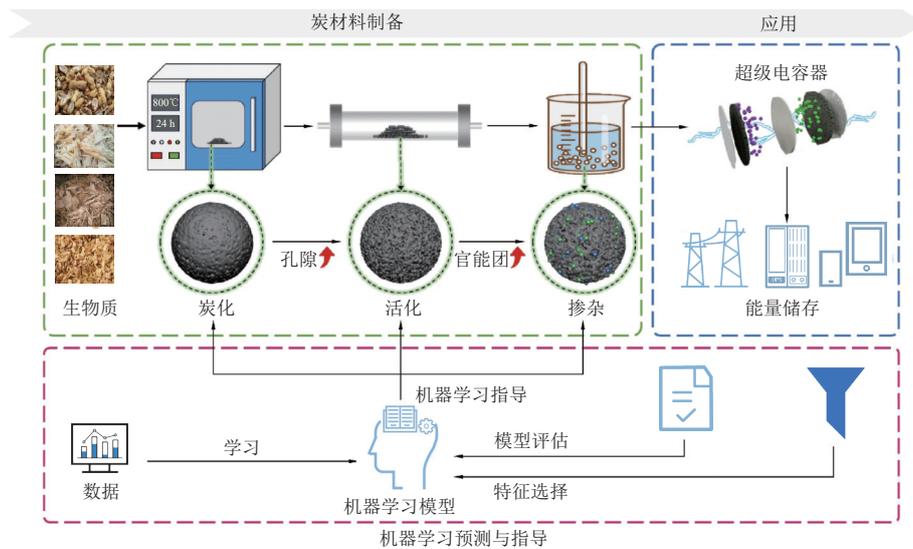


图 3 机器学习指导合成生物质基超级电容器电极材料

Fig. 3 Machine learning-guided syntheses of biomass-based supercapacitor electrode materials

电极材料的焦点问题,综述了利用生物质制备高性能超级电容器电极材料的研究进展,为后续超级电容器电极材料的研究指明了方向。同时,深入讨论机器学习在指导高性能炭材料开发领域的最新应用成果,为后续机器学习与材料开发的深入融合提供启示。

1 生物质制备高性能电极材料的技术进展

1.1 炭化—制备工程生物炭材料的基础

为了制备高性能工程生物炭,生物质的多种炭化方法,如水热炭化法、直接炭化法、模板法以及微波炭化法等已被广泛应用。本节介绍了炭化技术的基本原理,剖析了炭化技术的新进展与优缺点。

1.1.1 水热炭化法

在密闭体系中,将生物质与水溶液混合,加热至临界或亚临界状态,进行在常规条件下难以发生的生物质炭化反应。水热炭化法无需干燥预处理,炭化反应温度低,节能高效^[25]。生物质原料的多样性和水热炭化处理条件的差异性使水热炭性能难于控制,产物展现出不同的比表面积、孔径分布和表面官能团。水热炭化多作为预处理方式,将生物质转化为活化反应的原料^[26]。LIU等^[27]以去离子水为溶剂,采用水热炭化法对纤维素进行了处理。也有学者采用非水溶剂进行炭化,LI等^[28]以甲酰胺为溶剂,在220℃的条件下对山茶壳进行5h的水热处理来制备水热炭。

1.1.2 直接炭化法

直接炭化法通过马弗炉、管式炉等设备直接

对生物质前驱体进行高温热处理,在高温下将有机物分解^[29],使原料中的可挥发非碳元素组分逸出,生产具有一定孔隙结构和比表面积的多孔炭^[30],操作简易,无需复杂设备。相较于水热炭化法,直接炭化法炭化温度高、原料需要提前干燥,因此该方法能耗偏高。总的来说,水热炭化和直接炭化产物的比表面积均偏小($\leq 800.0 \text{ m}^2/\text{g}$)^[31],因此生物质仅经简单炭化后不适合用作超级电容器电极材料。值得注意的是,将一定比例的生物质和塑料掺混进行共热解的过程中会出现协同效应^[32],有助于生物质的热解过程,此研究方向受到了一定程度的关注。GANESHAN等^[33]的研究表明,芒果种子仁与PET(聚对苯二甲酸乙二醇酯)热解的重叠温区为367~477℃。在该温区内,PET不仅分解活性高,且可作为氢源向生物质持续供氢,对于生物质完全热解起到了促进作用。ÖZSIN等^[34]将核桃壳分别与PET、PS(聚苯乙烯)和PVC(聚氯乙烯)在500℃下1:1掺混进行共热解,结果表明,核桃壳与PET共热解时,生物炭产率最高,且生物炭孔隙最为丰富。

1.1.3 模板法

模板法合成工程生物炭的基本原理是利用模板物质的结构来导向炭材料的形成,随后去除模板材料留下多孔炭结构。聚合物,如硅胶、金属有机框架(MOFs)、离子液体、深共晶溶剂等^[30]均可作为模板剂。模板应具有性质稳定和容易去除的特性。相较于其他方法,模板法可精确调控生物炭的孔隙结构,有助于优化生物炭性能,但也存在

模板去除困难、去除模板过程中会破坏孔结构和造成环境污染等问题。WANG 等^[35]以水凝胶为模板,利用食物垃圾制备得到的生物炭,具有独特的海绵状微观结构。YUAN 等^[36]以豆渣基焦油为原料,醋酸钾为模板剂,合成了用于双电层电容器的氮自掺杂分级多孔炭。

1.1.4 微波炭化法

在微波加热过程中,微波能量被高效传递至生物质中,引发分子振动和摩擦,产生高温。微波加热具有高度的选择性。某些特定材料或分子对微波能量尤为敏感,使得反应过程能够被精确控制。与传统热源相比,微波加热无需依赖传导介

质,实现能量高效传递和利用,避免了耗能低效的热传导过程。然而微波加热设备结构较为复杂、价格高昂且需要专业的操作和维护,这无疑增加了微波炭化法的使用成本和难度。ZHANG 等^[37]以水葫芦为原料,通过微波辅助两步热解法制备了氮自掺杂多孔炭,所制备的多孔炭呈现蜂窝状分级孔结构,具有丰富的孔隙通道。在加热功率为 500 W,终温 700 °C 下获得了 WPC-T7P5 炭材料,其比表面积为 2 649.0 m²/g,在 2.0 A/g 的电流密度下比电容为 374.0 F/g。

表 2 列举了部分实验参数,通过参数对比明确了不同炭化方法的特点。

表 2 不同炭化方法之间参数对比

Table 2 Comparison of parameters between different carbonization methods

| 生物质前驱体 | 炭化方法 | 模板剂/ 水热溶剂 | 比表面积/ (m ² ·g ⁻¹) | 电流密度/ (A·g ⁻¹) | 比电容/ (F·g ⁻¹) | 循环次数/次 (电流密度 10 A·g ⁻¹) | 电容 保持率/% | 参考文献 |
|---------|--------|--------------|---|-------------------------------|------------------------------|--|-------------|------|
| α-纤维素粉末 | 水热炭化 | 去离子水 | 952.3 | 1.0 | 235.8 | 20 000 | 99.9 | [27] |
| 山茶壳 | 水热炭化 | 甲酰胺 | — | 1.0 | 271.0 | 2 000 | 99.2 | [28] |
| 杜仲木 | 微波水热炭化 | 去离子水 | 2 138.3 | 1.0 | 346.9 | 10 000 | 95.4 | [38] |
| 过期面包 | 直接炭化 | — | 1 813.2 | 1.0 | 290.5 | 5 000 | 99.9 | [39] |
| 大蒜皮 | 直接炭化 | — | 2 808.7 | 1.0 | 396.3 | 10 000 | 92.5 | [40] |
| 生物焦油 | 直接炭化 | — | 1 298.3 | 0.5 | 309.5 | 10 000 | 80.1 | [41] |
| 食物垃圾 | 模板法 | 水凝胶 | 693.0 | 1.0 | 461.0 | 10 000 | 88.2 | [35] |
| 豆渣基焦油 | 模板法 | 醋酸钾 | 1 610.0 | 1.0 | 363.7 | — | — | [36] |
| 水葫芦 | 微波热解 | — | 2 649.0 | 2.0 | 374.0 | 5 000 | 91.4 | [37] |

1.2 活化—改善工程生物炭孔隙结构

炭化所得生物炭的孔隙结构差,结构特性仍待提升^[31]。活化旨在提高比表面积并优化孔隙结构,进而增强生物炭在吸附、催化和电化学等方面的表现。

1.2.1 物理活化法

物理活化法的基本原理是在高温条件下,利用 H₂O、CO₂、O₂ 等活化剂与结构中其他活性碳原子相互作用^[42],改变炭材料理化性质,以增强炭材料吸附、导电等性能。物理活化法成本低、操作简易且不造成污染。然而采用物理活化法在活化炭材料时外表面易气化不均匀,从而导致孔隙发育程度较低、活化产率较低、孔体积和比表面积较小。活化温度高、时间长,在一定程度上限制了物理活化法的应用^[30]。

1.2.2 化学活化法

化学活化的基本原理是采用 ZnCl₂、KOH^[30] 等化学试剂与生物质前驱体混合,在惰性气体氛围中高温加热。KOH 可促进孔隙形成,提高生物炭比表面积^[43],但 KOH 腐蚀性强,有毒性,对环境危害较大。ZnCl₂ 的使用则存在重金属污染的问题,排放未经处理的含 Zn 废水会对生态环境造成巨大危害^[44-45]。因此,寻找绿色、环境友好的化学活化剂已成为当前研究的重要方向。

YUAN 等^[46]分别以棉花、膨化大米和红树蕨为前驱体,KHCO₃ 作为活化剂制备工程生物炭材料。从环境影响的角度看,KHCO₃ 相较于 KOH 腐蚀性小且全球变暖指数(Global Warming Potential)低;从活化效果的角度看,KHCO₃ 在高温下分解产生大量气体,更有助于优化工程生物炭材料的孔隙结构。实验中膨化大米样品(PR-2)

具有高比表面积(2 035.6 m²/g), 基于 PR-2 的超级电容器在 0.5 A/g 的电流密度下比电容为 280.7 F/g。ZHAO 等^[47]以普通商品棉布为前驱体, 通过炭化和 H₂O₂ 活化制备了多孔炭, 最佳样品比表面积可达 874.7 m²/g, 在 0.5 A/g 下比电容可达 243.0 F/g, 在 30.0 A/g 的条件下充放电 15 000 次后电容保持率可达 85%, 研究结果表明 H₂O₂ 是一种绿色高效的活化剂。

1.2.3 复合活化法

复合活化法也称物理化学活化法或双重活化法, 兼有物理活化法和化学活化法的优点, 但存在反应不易控制、产物均匀性差等缺点^[4]。FARMA 等^[48]以椰枣种子作为前驱体, 先在 0.3 mol/L KOH 溶液中搅拌 2 h, 随后在管式炉中进行炭化、CO₂ 活化。结果表明, 经过 KOH 和 CO₂ 复合活化后的工程生物炭电极材料, 具有分层纳米纤维结构和相互连接的孔隙框架, 展现出优异的电化学性能, 当电流密度为 1.0 A/g 时, 获得的最高比电容为 259.0 F/g。

1.3 杂原子掺杂—工程生物炭表面功能化

杂原子掺杂旨在增加工程生物炭材料表面有效官能团种类和数量, 即活性位点的增加有助于提高其电化学性能。杂原子掺杂, 根据原子来源可分为自掺杂和外部掺杂^[49]。常见的掺杂元素有 N、O、S、P、B 等, 且多种元素复合的掺杂方式较为常见(表 3)。N 原子掺杂可提高工程生物炭材料的电导率^[50], O 原子掺杂可以增强电解液与电极的浸润效果并加快离子扩散速度^[50], S 原子掺杂可提供更多活性位点, 改善电化学性能^[51], P 原子掺杂有助于电荷转移, 而且掺杂 P 原子后的多孔炭材料具有更高的产炭率和更大的微孔体积^[52], B 原子可影响 N 原子在炭材料中的分布, 提高电

表 3 常见掺杂方式与掺杂元素

Table 3 Traditional doping methods and doping elements

| 生物质前驱体 | 掺杂方式 | 掺杂元素 | 参考文献 |
|------------|------|-------|------|
| 腐烂的西葫芦 | 自掺杂 | N、O | [50] |
| 废弃椰壳 | 外部掺杂 | O、P | [52] |
| 龙眼壳 | 自掺杂 | N、O、S | [54] |
| 豆渣基焦油 | 自掺杂 | N | [36] |
| 蛋黄/白和大米废弃物 | 自掺杂 | N、O | [57] |
| 钝顶螺旋藻 | 自掺杂 | N、O | [58] |
| 向日葵秸秆 | 外部掺杂 | N、O、P | [56] |
| 红甜菜根 | 外部掺杂 | N | [59] |

荷转移能力、提供更多的电化学活性位点^[53]。

1.3.1 自掺杂

生物质前驱体中含有 N、P、S、O 等元素, 在热解过程中, 杂原子可均匀地掺杂到炭材料中。相较于其他掺杂方式, 自掺杂无需额外掺杂试剂, 成本低、操作简便、环境友好, 但掺杂过程难以控制。NIU 等^[54]以龙眼壳和 KOH 为前驱体和活化剂, 通过杂原子自掺杂和结构设计整合, 制备了一种新型的 N、O、S 等杂原子掺杂分层多孔炭材料。其比表面积高达 2 112.3 m²/g, 具有出色的比电容(342.0 F/g)和优异的循环稳定性(20 000 次循环后电容保持率为 99.5%)。

1.3.2 外部掺杂

外部掺杂所需的元素由掺杂试剂引入。常用的掺杂试剂有三聚氰胺、硫脲等。外部掺杂大多进行多元素掺杂, 可产生更多缺陷和活性位点, 进一步优化电子分布, 提高材料电化学特性^[55]。ZENG 等^[56]以向日葵秸秆为碳源, 以 NH₂H₂PO₄ 为氮源和磷源, 通过一步活化法制备了 O、N、P 共掺杂多孔炭片(ONPC)。得益于其合适的比表面积和大量的 O(13.98%)、N(7.43%)和 P(0.81%)原子, ONPC-700 在 0.5 A/g 条件下具有 340.0 F/g 的比电容。

1.4 挑战与前景

工程生物炭因其独特的优势成为当前研究的热点, 其作为商业化电极材料应用前景广阔, 然而该领域也面临诸多挑战。

首先, 工程生物炭结构特性与电化学性能的内关联仍不明确, 工程生物炭的比表面积、孔隙结构、表面官能团等均会对电化学特性产生影响。深入探究结构特性与电化学性能之间的内在机理, 对于制备高性能工程生物炭具有重要的指导意义。

第二, 生物质制备高性能工程生物炭需经过炭化、活化、掺杂等多道工艺, 制备过程对生物炭理化性质起到决定性作用, 进而影响其电化学性能。目前, 工程生物炭工艺流程繁杂, 工艺流程中带来的二次污染较难避免。因此, 亟须开发绿色低碳、操作简易的工艺以制备高性能工程生物炭基超级电容器。

第三, 在双碳背景下, 绿色低碳不仅是工程生物炭生产应用的先决条件, 更是其核心价值和长远的发展方向。因此, 通过综合考量优化工程生物炭生产工艺, 真正实现工程生物炭的绿色低碳

应用,不仅有助于推动工程生物炭的可持续发展,也符合当前社会的低碳环保发展趋势。生命周期评价(Life Cycle Assessment, LCA)主要关注从原材料提取、生产、使用到废弃整个生命周期对环境的影响,为整个工艺流程提供了量化的环境影响参数。另外,通过技术经济可行性研究(Techno-economic Assessment, TEA)可以对工程生物炭生产技术、成本、经济效益等进行全面评估,为工程生物炭开发提供科学依据和决策支持,促进工程生物炭产业的可持续发展。

2 机器学习指导的高性能炭材料制备与应用

2.1 机器学习

机器学习作为人工智能领域的典型代表,善于分析数据、提取信息,能够智能学习、优化模型,在新兴材料合成中发挥至关重要的作用。因此,近几年来,学者们成功地将机器学习应用于工程生物炭基超级电容器的研发中^[60],可以实现电化学特性的精准预测,同时揭示了工程生物炭材料特性与其电化学特性的内在关联,俨然成为一个重要的研究方向^[61]。

研究表明,机器学习在生物质基炭材料合成

方面具有以下作用。

(1)数据处理:生物炭材料制备过程中会产生大量实验数据,包括制备条件、炭材料特性、炭材料元素组成以及炭材料产率等。机器学习可利用算法对数据进行高效处理,如自然语言处理技术,可以解释成像数据、进行图像分析等^[62]。

(2)性能预测:基于数据建立模型,对材料物化特性进行高效、准确地预测^[63-64]。

(3)过程优化:基于已积累的实验数据库,可建立并优化模型,实现自动调整控制参数,提高工艺过程效率^[65]、降低能耗和成本,为后续工程生物炭高效量产奠定基础。

(4)全过程智能化:自动完成数据收集、处理、分析和模型预测等任务,实现自主实验,更有望在未来实现全流程自动化制备高性能工程生物炭材料^[66]。

2.2 性能预测与精准构筑

针对超级电容器的应用,对工程生物炭材料的电化学特性进行性能预测主要有以下步骤,图4将性能预测流程进行了可视化,有助于读者更好地理解预测过程。



图4 机器学习预测生物质基炭材料性能过程简图

Fig. 4 Schematic of the process of predicting the performance of biomass-based carbon materials by machine learning

(1)数据预处理:主要包含使用内插法和估算法对缺失值进行补充和对数据进行标准化处理。

(2)特征选择:选择合适的特征至关重要,对模型的准确性、普适性和复杂性会产生重大的影响^[67]。

(3)模型开发与评估:在进行性能预测时常用的模型有 LR(Linear Regression)、Lasso(Lasso Regression)、DT(Decision Tree)、XGBoost(eXtreme Gradient Boosting)、SVM(Support Vector Machine)、

BPNN(Back Propagation Neural Network)、ANN(Artificial Neural Network)、OLS(Ordinary Least Square)、RF(Random Forest)、MLP(Multilayer Perceptron)等。在性能预测时通常会选择多个模型同时进行训练,随后对各个模型的拟合效果进行评估,选取拟合效果最好的模型。常用于评估模型性能的指标有均方根误差(RMSE)、平均绝对误差(MAE)和判定系数(R^2)。其中 RMSE 和 MAE 的值越小精度越高, R^2 越接近于 1,模型的拟合度

越高。表4汇总了部分机器学习训练数据的规模、选取的特征和模型性能,为后续机器学习模型的数据收集、特征选取和模型评估等过程提供参考。

由表4可知,不同项目间模型数据可用量悬殊。在特征选择方面,比表面积、电压窗口和孔隙的性质多次出现,表明了其对电化学性质的影响关键。

表4 机器学习应用于生物质基炭材料性能预测的常见参数

Table 4 Machine learning-predicated performance on typical parameters of biomass-based carbon materials

| 总数据集 | 训练数据集 | 测试数据集 | 特征选择 | 模型 | 模型性能数值 | | | 参考文献 |
|-------|-------|-------|--|---------|--------|--------|----------------|------|
| | | | | | RMSE | MAE | R ² | |
| 148 | 133 | 15 | 电压窗口, 比表面积, 孔径, I _b /I _G , 氮原子含量 | LR | 71.35 | 57.78 | 0.52 | [68] |
| | | | | Lasso | 74.49 | 59.49 | 0.48 | |
| | | | | XGBoost | 41.02 | 28.06 | 0.84 | |
| | | | | RF | 37.97 | 28.97 | 0.86 | |
| | | | | ANN | 29.32 | 21.93 | 0.92 | |
| 4 538 | 3 176 | 1 362 | 比表面积, 孔径, 孔体积, I _b /I _G , 氮原子掺杂百分比, 氧原子掺杂百分比, 硫原子掺杂百分比, 碘原子掺杂百分比, 电压窗口, 电流密度 | OLS | 71.52 | 100.62 | 0.32 | [69] |
| | | | | SVR | 46.30 | 31.59 | 0.72 | |
| | | | | DT | 55.63 | 36.28 | 0.60 | |
| | | | | RF | 43.96 | 27.09 | 0.75 | |
| | | | | XGBoost | 40.27 | 30.08 | 0.79 | |
| 73 | 58 | 15 | 活化剂使用量, 活化温度, 活化时间, 比表面积, C/O, C/N, 电流密度 | DT | 15.00 | 7.35 | 0.98 | [61] |
| | | | | ANN(BP) | 102.41 | 85.32 | 0.21 | |
| | | | | XGBoost | 12.37 | 3.40 | 0.98 | |
| 141 | 113 | 28 | 电压窗口, 比表面积, 孔径, I _b /I _G , 氮原子掺杂百分比, 氧原子掺杂百分比 | RF | 67.95 | 59.37 | 0.56 | [70] |
| | | | | ANN | — | — | >0.99 | |
| | | | | MLP | 58.83 | 45.07 | 0.67 | |
| 167 | 150 | 17 | 比表面积, 孔体积, C/O, 氮原子掺杂百分比, I _b /I _G , KOH电解液浓度, 电压窗口, 电流密度 | LR | 86.69 | 70.07 | 0.23 | [71] |
| | | | | RT | 73.87 | 46.62 | 0.54 | |
| | | | | M5 Rule | 75.54 | 60.10 | 0.41 | |
| | | | | MLP | 58.83 | 45.07 | 0.67 | |

注: I_b/I_G为Raman光谱中D峰与G峰强度比; C/O为C、O质量比; C/N为C、N质量比。

(4)模型解释:除进行性能预测外,探究输入输出值之间的相关性也具有重要意义,基于树的算法(RF和GB)可通过平均计算树的特征重要性来进行解释^[72]。预测生物质基炭材料的性能可以明确其电化学性能受何因素影响以及如何影响,并以此指导材料合成。

性能预测是利用机器学习进行的正向应用,而精准构筑是利用机器学习进行的反向应用。精准构筑是机器学习更深层次应用的体现。目前,机器学习应用的研究主要集中于性能预测阶段^[31,73-75]。基于高效的性能预测模型,通过“模型指导—实验验证—模型优化”多次迭代,可得到优化后的模型以实现工程生物基炭材料的精准构筑,从而满足高性能超级电容器电极材料的应用需求。精准构筑可大大提高工程生物炭材料研发

时效与应用性能,加速新型生物质基炭材料的制备以及在能源、环境、信息等领域应用进程。另外,高性能工程生物炭材料应用前景广阔,精准构筑策略将为这些领域的发展提供有力技术支持。

当前机器学习多用于对炭材料的性能预测,而鲜有利用机器学习技术对炭材料进行精准构筑的研究。YANG等^[61]采用机器学习方法,以生物炭活化条件、生物质性质和测试条件作为输入特征,开发了预测生物炭电容量的模型。TAWFIK等^[76]采用3种机器学习模型(Lasso、SVMR、ANN)选取了8个特征(电解液材料、比表面积、电压窗口、孔体积、电流密度、电极配置体系、等效串联电阻和电荷转移电阻)作为输入变量进行预测。LENG等^[77]采用梯度提升回归(GBR)和RF2种机器学习算法对水热炭性质进行了预测。LI等^[78]

使用 RF 和 GBR 实现了生物炭产率、比表面积和总孔体积的预测, ML 模型解释表明, 热解温度、生物质灰分和挥发分是目标物最重要的特征。LENG 等^[79] 使用 RF 和 GBR 模型对生物炭的比表面积、氮含量和产率进行了预测, 多数预测中 GBR 优于 RF。

2.3 挑战与前景

机器学习作为一种数据驱动的方法, 利用大量数据训练模型, 使模型能够从数据中提取信息与规律。然而当前可供机器学习使用以指导高性能工程生物炭材料合成的数据库小且不完整, 训练数据的不足将导致模型的准确性和通用性下降, 限制了机器学习在生物质基炭材料制备与应用进程。因此, 亟须组建数据量大且完整的数据库以提高机器学习模型在性能预测的高效性与材料结构构筑的精准性。以下几种具有发展前景的技术有望解决上述问题。

(1) 自然语言处理技术 (Natural Language Processing, NLP)^[80]: 其在数据扩充方面具有广阔的应用前景, 可从文本信息中提取关键数据, 自动生成训练数据库。值得注意的是, 数据提取的质量主要受输入关键词或者文本的影响, 直接决定了机器学习模型的准确性。因此, 亟须开发出针对不同文章数据表述实现统一标准化的 NLP, 大幅度提升数据提取的效率和准确率。

(2) 区块链技术 (Blockchain)^[81]: 区块链技术具有去中心化、透明和不可篡改等特点, 研究人员可将研究数据标准化后上链, 建立庞大的共享数据库, 提高可用数据量, 消除信息不对称性。区块链技术的高效利用不仅可以提高数据规模, 也能够增加数据可信度, 有助于提高机器学习模型的准确性和通用性。

(3) 主动学习技术 (Active Learning)^[82]: 主动学习模型可对研究对象提出问题, 以获取特定的信息, 对实验进行高效指导, 结合实验反馈进一步优化模型。这种人机协作方式能够充分利用人类专业知识, 达到用更少的实验数据获取更高性能的目的。

(4) 迁移学习 (Transfer Learning)^[83]: 其核心是将源领域 (Source Domain) 上训练的一个模型应用于目标领域 (Target Domain)。通过利用源领域上学到的知识, 迁移学习可以在目标领域上更有效地学习, 特别是当目标领域的数据相对稀缺或难以获取时。因此, 可通过使用更大的源领域数据

集对模型进行预训练, 改善模型在小数据集集中的学习效果。

3 结语与展望

生物质制备高性能工程生物质基炭材料不仅显著提高了我国资源利用效率, 而且为生物质处理及资源回收提供了有效手段, 同时为我国生态文明建设提供了科技保障。除原料优势之外, 生物质基工程生物炭材料具有更多的储能活性位点和更适宜的离子扩散动力学, 虽已成功应用于超级电容器、电池等先进储能系统, 但工程生物质炭基电极材料的绿色制备仍存在一些挑战。

第一, 工程生物质炭基电极材料制备工艺仍存在能耗高、污染大、工艺复杂等问题, 亟须开发绿色低碳的工程生物炭电极材料制备新方法, 以实现高性能电极材料高效制备, 同时最大程度上减少制备过程中带来环境污染。第二, 相对于传统试错式实验方法, 机器学习不仅可以大幅度地节约人工和时间成本, 还可以实现电极材料性能高效预测及结构精准构筑。机器学习有助于阐释工程生物炭结构特性与超级电容器性能间内在关联。然而, 机器学习在超级电容器电极材料开发方面尚未得到广泛应用, 主要是由数据库缺失和不完整等原因造成的。因此, 组建大数据库及数据平台等是精确应用机器学习方法的基本前提。第三, 绿色、经济、低碳工艺路径的评判是碳中和背景下的重要需求, 即 LCA 和 TEA 必不可少。相关结果将为学术界、工业界学者以及政府人员提供理论支持和决策指导。

综上所述, 实现高容量、长寿命、大规模的工程生物炭基超级电容器装备是接下来的研究重点, 其中研发绿色低碳、廉价高效的工程生物炭制备工艺是关键, 整体工艺的全生命周期和技术经济性全面评价是支撑, 为超级电容器商业化进程提供技术支持与理论基础。

参考文献 (References):

- [1] SAHU R K, GANGIL S, BHARGAV V K, et al. Synthesizing biomass into nano carbon for use in high-performance supercapacitors—A brief critical review[J]. *Journal of Energy Storage*, 2023, 72: 108348.
- [2] RAZA S, GHASALI E, RAZA M, et al. Advances in technology and utilization of natural resources for achieving carbon neutrality and a sustainable solution to neutral environment[J]. *Environmental Research*, 2023, 220: 115135.
- [3] SAYED E, OLABI A, ALAMI A, et al. Renewable

- energy and energy storage systems[J]. *Energies*, 2023, 16(3): 1415.
- [4] 杨怡洛, 龙垠茨, 曹海兵, 等. 生物质基多孔碳材料作为超级电容器电极的研究进展 [J]. *中国造纸*, 2023, 42(7): 118-129.
- YANG Yiluo, LONG Yinying, CAO Haibing, et al. Research progress of biomass-based porous carbon materials as supercapacitor electrodes[J]. *China Pulp & Paper*, 2023, 42(7): 118-129.
- [5] GAO Dan, LUO Zhiling, LIU Changhong, et al. A survey of hybrid energy devices based on supercapacitors[J]. *Green Energy & Environment*, 2023, 8(4): 972-988.
- [6] LEUNG G, SMITH L, LAU J, et al. Carbon-ionogel supercapacitors for integrated microelectronics[J]. *Nanotechnology*, 2016, 27(3): 035204.
- [7] GUO Lingcong, HU Pan, WEI Hong. Development of supercapacitor hybrid electric vehicle[J]. *Journal of Energy Storage*, 2023, 65: 107269.
- [8] MA Tao, YANG Hongxing, LU Lin. Development of hybrid battery-supercapacitor energy storage for remote area renewable energy systems[J]. *Applied Energy*, 2015, 153: 56-62.
- [9] NARAYANAN R, KUMAR P N, DEEPA M, et al. Combining energy conversion and storage: A solar powered supercapacitor[J]. *Electrochimica Acta*, 2015, 178: 113-126.
- [10] FU Xudong, WANG Jiadai, PENG Fukang, et al. A hybrid PEMFC/supercapacitor device with high energy and power densities based on reduced graphene oxide/Nafion/Pt electrode[J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2023, 48(42): 16072-16082.
- [11] PEGUEROLES QUERALT J, BIANCHI F D, GOMIS BELLMUNT O. A power smoothing system based on supercapacitors for renewable distributed generation[J]. *IEEE Transactions on Industrial Electronics*, 2015, 62(1): 343-350.
- [12] MENG Chuizhou, GALL O Z, IRAZOQUI P P. A flexible super-capacitive solid-state power supply for miniature implantable medical devices[J]. *Biomedical Microdevices*, 2013, 15(6): 973-983.
- [13] ANBALAGAN A C, VENKATACHALAM G, DOBLE M, et al. Organically modified polyaniline for physiological fluids operatable supercapacitor electrodes[J]. *Microchemical Journal*, 2022, 181: 107819.
- [14] FARES A M, KIPPKE M, RASHED M, et al. Development of a smart supercapacitor energy storage system for aircraft electric power systems[J]. *Energies*, 2021, 14(23): 8056.
- [15] WANG Guoping, ZHANG Lei, ZHANG Jiujuan. A review of electrode materials for electrochemical supercapacitors[J]. *Chemical Society Reviews*, 2012, 41(2): 797-828.
- [16] JIN X, GE Q, CONG H, et al. Recent breakthroughs in supercapacitors boosted by macrocycles[J]. *ChemSusChem*, 2023, 16(15): 202300027-202300050.
- [17] ZHU Qiancheng, ZHAO Danyang, CHENG Mingyu, et al. A new view of supercapacitors: Integrated supercapacitors[J]. *Advanced Energy Materials*, 2019, 9(36): 1901081.
- [18] YANG Caiyun, WU Hao, CAI Mengyu, et al. Valorization of biomass-derived polymers to functional biochar materials for supercapacitor applications via pyrolysis: Advances and perspectives[J]. *Polymers*, 2023, 15(12): 2741.
- [19] PRIYA D S, KENNEDY L J, ANAND G T. Emerging trends in biomass-derived porous carbon materials for energy storage application: A critical review[J]. *Materials Today Sustainability*, 2023, 21: 100320.
- [20] ZHANG Yong, PAN Haoxin, ZHOU Qingyun, et al. Biomass-derived carbon for supercapacitors electrodes—A review of recent advances[J]. *Inorganic Chemistry Communications*, 2023, 153: 110768.
- [21] BOSE S, KUILA T, MISHRA A K, et al. Carbon-based nanostructured materials and their composites as supercapacitor electrodes[J]. *Journal of Materials Chemistry*, 2012, 22(3): 767-784.
- [22] YANG Hui, YE Shewen, ZHOU Jiaming, et al. Biomass-derived porous carbon materials for supercapacitor[J]. *Frontiers in Chemistry*, 2019, 7: 274.
- [23] ZHANG Shuai, SHI Xiaoze, WRÓBEL R, et al. Low-cost nitrogen-doped activated carbon prepared by polyethylenimine (PEI) with a convenient method for supercapacitor application[J]. *Electrochimica Acta*, 2019, 294: 183-191.
- [24] 张学民, 贺冠宇, 尹绍奇, 等. 多孔生物质碳材料的制备及其在超级电容器中的应用研究进展 [J]. *过程工程学报*, 2024, 24(2): 127-138.
- Zhang Xuemin, He Guanyu, Yin Shaoqi, et al. Research progress in the preparation of porous biomass carbon materials and their applications in supercapacitors[J]. *The Chinese Journal of Process Engineering*, 2024, 24(2): 127-138.
- [25] CHEN Fubin, ZHANG Yongxiang, ZHENG Mingtao, et al. Preparation of high-performance porous carbon materials by citric acid-assisted hydrothermal carbonization of bamboo and their application in electrode materials[J]. *Energy & Fuels*, 2022, 36(16): 9303-9312.
- [26] TEKIN K, KARAGÖZ S, BEKTAŞ S. A review of hydrothermal biomass processing[J]. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 2014, 40: 673-687.
- [27] LIU Chang, WANG Kun, DU Yuhan, et al. Hydrothermal carbonization of cellulose with ammonium sulfate and thiourea for the production of supercapacitor carbon[J]. *Polymers*, 2023, 15(23): 4478.
- [28] LI Linghao, ZHENG Xiaoen, ZHANG Fan, et al. Formamide hydrothermal pretreatment assisted camellia shell for upgrading to N-containing chemical and supercapacitor electrode preparation using the residue[J]. *Energy*, 2023, 265: 126247.
- [29] CHEN Junxiu, LI Jinhao, DAI Gang, et al. Research progress of porous carbon materials prepared by salt template method[J]. *Journal of Advances in Physical Chemistry*, 2022, 11(1): 21-27.
- [30] 赵晓玲, 曾丹林, 黄刚, 等. 生物质多孔碳的制备、掺杂及应用 [J]. *化工新型材料*, 2023, 51(7): 49-54.
- ZHAO Xiaoling, ZENG Danlin, HUANG Gang, et al. Preparation, doping and application of biomass porous carbon[J]. *New Chemical Materials*, 2023, 51(7): 49-54.

- [31] YUAN Xiangzhou, WANG Junyao, DENG Shuai, et al. Recent advancements in sustainable upcycling of solid waste into porous carbons for carbon dioxide capture[J]. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 2022, 162: 112413.
- [32] BERTHOLD E E S, DENG Wei, ZHOU Junbo, et al. Impact of plastic type on synergistic effects during co-pyrolysis of rice husk and plastics[J]. *Energy*, 2023, 281: 128270.
- [33] GANESHAN G, SHADANGI K P, MOHANTY K. Degradation kinetic study of pyrolysis and co-pyrolysis of biomass with polyethylene terephthalate (PET) using Coats-Redfern method[J]. *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry*, 2018, 131(2): 1803-1816.
- [34] ÖZSIN G, PÜTÜN A E. A comparative study on co-pyrolysis of lignocellulosic biomass with polyethylene terephthalate, polystyrene, and polyvinyl chloride: Synergistic effects and product characteristics[J]. *Journal of Cleaner Production*, 2018, 205: 1127-1138.
- [35] WANG Saier, SHI Ying, CHEN Sujuan, et al. Porous biochars with nitrogen defects prepared from hydrogel template-modified food waste for high-performance supercapacitors[J]. *Journal of Energy Storage*, 2023, 72: 108720.
- [36] YUAN Xiaodan, XU Liwen, ZHANG Jubing, et al. Template synthesis of nitrogen self-doped hierarchical porous carbon with supermicropores and mesopores for electrical double-layer capacitors[J]. *BioResources*, 2022, 18(1): 87-99.
- [37] ZHANG Xikui, MA Xiaoqian, YU Zhaosheng, et al. Microwave-assisted two-step pyrolysis of water hyacinth for the preparation of N-self-doped porous carbon[J]. *Journal of Analytical and Applied Pyrolysis*, 2023, 173: 106061.
- [38] CHI Zhizhen, YUAN Bixin, QU Qiang, et al. Preparation of *Eucommia ulmoides* Oliver wood derived activated carbons by combined microwave hydrothermal pretreatment and microwave pyrolysis as electrode materials for super capacitive performance[J]. *Materials Today Sustainability*, 2024, 25: 100621.
- [39] E Yi, SHEN Xing, CHEN Xin, et al. Preparation of biomass composite activated carbon based supercapacitor materials and their application in energy storage devices[J]. *Chemical Engineering Science*, 2023, 282: 119193.
- [40] LIU Sha, DONG Kaiming, GUO Feiqiang, et al. Facile and green synthesis of biomass-derived N,O-doped hierarchical porous carbons for high-performance supercapacitor application[J]. *Journal of Analytical and Applied Pyrolysis*, 2024, 177: 106278.
- [41] JIA Jixiu, SUN Yuxuan, LIU Zhidan, et al. Waste bio-tar based N-doped porous carbon for supercapacitors under dual activation: Performance, mechanism, and assessment[J]. *Biochar*, 2023, 5(1): 91.
- [42] LU Hao, ZHAO X S. Biomass-derived carbon electrode materials for supercapacitors[J]. *Sustainable Energy & Fuels*, 2017, 1(6): 1265-1281.
- [43] HAI A, BHARATH G, BABU K R, et al. Date seeds biomass-derived activated carbon for efficient removal of NaCl from saline solution[J]. *Process Safety and Environmental Protection*, 2019, 129: 103-111.
- [44] LUO Xinghua, WU Chuan, LIN Yongcheng, et al. Soil heavy metal pollution from Pb/Zn smelting regions in China and the remediation potential of biomineralization[J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2023, 125: 662-677.
- [45] ADIMALLA N. Heavy metals pollution assessment and its associated human health risk evaluation of urban soils from Indian Cities: A review[J]. *Environmental Geochemistry and Health*, 2020, 42(1): 173-190.
- [46] YUAN Yudan, SUN Yi, LIU Chenguang, et al. Influence of KHCO₃ activation on characteristics of biomass-derived carbons for supercapacitor[J]. *Coatings*, 2023, 13(7): 1236.
- [47] ZHAO Wei, YAN Bing, CHEN Dai, et al. Free-standing carbon network with enhanced capacitive performance synthesized via green H₂O₂ activation[J]. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 2023, 668: 131425.
- [48] FARMA R, INDRIANI A, APRIYANI I. Hierarchical-nanofiber structure of biomass-derived carbon framework with direct CO₂ activation for symmetrical supercapacitor electrodes[J]. *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, 2023, 34(2): 81.
- [49] GOPALAKRISHNAN A, BADHULIKA S. Effect of self-doped heteroatoms on the performance of biomass-derived carbon for supercapacitor applications[J]. *Journal of Power Sources*, 2020, 480: 228830.
- [50] PENG Shangshu, WU Yang, LU Shengshang, et al. N₂O Co-doped porous activated carbon derived from rotted *Cucurbita Pepo* as anode material for high-performance supercapacitors[J]. *Diamond and Related Materials*, 2024, 141: 110646.
- [51] ABBAS S C, HUA Zifeng, DENG Qidu, et al. Natural polymers as sustainable precursors for scalable production of N/SO_x doped carbon material enabling high-performance supercapacitors[J]. *EcoMat*, 2024, 6(2): e12434.
- [52] DONG Kaiming, WANG Jiajun, GUO Feiqiang, et al. Facile synthesis of O and P Co-doped hierarchical porous carbon nanosheets from biomass for high-performance supercapacitors[J]. *Diamond and Related Materials*, 2023, 140: 110531.
- [53] 王帅晴, 杨思文, 李娜, 等. 元素掺杂生物质炭材料在电化学储能中的研究进展 [J]. *化工进展*, 2023, 42(8): 4296-4306.
- WANG Shuaiqing, YANG Siwen, LI Na, et al. Research progress on element doped biomass carbon materials for electrochemical energy storage[J]. *Chemical Industry and Engineering Progress*, 2023, 42(8): 4296-4306.
- [54] NIU Yuan, GUO Maoqiang, ZHANG Yuting, et al. Heteroatom-doped layered hierarchical porous carbon electrodes with high mass loadings for high-performance supercapacitors[J]. *Journal of Energy Storage*, 2023, 73: 109064.
- [55] GUO Shasha, CHEN Yaxin, SHI Liluo, et al. Nitrogen-doped biomass-based ultra-thin carbon nanosheets with interconnected framework for high-performance Lithium-ion batteries[J]. *Applied Surface Science*, 2018, 437: 136-143.
- [56] ZENG Yuting, ZHAO Wenbo, LI Xiaohan, et al. Biomass waste derived heteroatom doping porous carbon sheets for

- high performance supercapacitor[J]. *Materials Today Communications*, 2023, 36: 106623.
- [57] QIN Shumeng, LIU Peiliang, WANG Jieni, et al. *In situ* N,O Co-doped nanoporous carbon derived from mixed egg and rice waste as green supercapacitor[J]. *Molecules*, 2023, 28(18): 6543.
- [58] GENG Yihao, WANG Jieni, CHEN Xuanyu, et al. *In situ* N,O-dually doped nanoporous biochar derived from waste eutrophic spirulina for high-performance supercapacitors[J]. *Nanomaterials*, 2023, 13(17): 2431.
- [59] SELVARAJ M, BALAMOORTHY E, MANIVASAGAM T G. Biomass derived nitrogen-doped activated carbon and novel biocompatible gel electrolytes for solid-state supercapacitor applications[J]. *Journal of Energy Storage*, 2023, 72: 108543.
- [60] LI Xiaohua, HUANG Ziheng, SHAO Shanshan, et al. Machine learning prediction of physical properties and nitrogen content of porous carbon from agricultural wastes: Effects of activation and doping process[J]. *Fuel*, 2024, 356: 129623.
- [61] YANG Xuping, YUAN Chuan, HE Sirong, et al. Machine learning prediction of specific capacitance in biomass derived carbon materials: Effects of activation and biochar characteristics[J]. *Fuel*, 2023, 331: 125718.
- [62] DONNELLY L F, GRZESZCZUK R, GUIMARAES C V. Use of natural language processing (NLP) in evaluation of radiology reports: An update on applications and technology advances[J]. *Seminars in Ultrasound, CT and MRI*, 2022, 43(2): 176-181.
- [63] CHAN C H, SUN Mingzi, HUANG Bolong. Application of machine learning for advanced material prediction and design[J]. *EcoMat*, 2022, 4(4): e12194.
- [64] HUANG Guannan, GUO Yani, CHEN Ye, et al. Application of machine learning in material synthesis and property prediction[J]. *Materials*, 2023, 16(17): 5977.
- [65] RAO R, CARPENA NÚÑEZ J, NIKOLAEV P, et al. Advanced machine learning decision policies for diameter control of carbon nanotubes[J]. *NPJ Computational Materials*, 2021, 7: 157.
- [66] TABOR D P, ROCH L M, SAIKIN S K, et al. Accelerating the discovery of materials for clean energy in the era of smart automation[J]. *Nature Reviews Materials*, 2018, 3: 5-20.
- [67] PAULSON N H, KUBAL J, WARD L, et al. Feature engineering for machine learning enabled early prediction of battery lifetime[J]. *Journal of Power Sources*, 2022, 527: 231127.
- [68] KUSHWAHA R, SINGH M K, KRISHNAN S, et al. Machine learning enabled property prediction of carbon-based electrodes for supercapacitors[J]. *Journal of Materials Science*, 2023, 58(39): 15448-15458.
- [69] MISHRA S, SRIVASTAVA R, MUHAMMAD A, et al. The impact of physicochemical features of carbon electrodes on the capacitive performance of supercapacitors: A machine learning approach[J]. *Scientific Reports*, 2023, 13(1): 6494.
- [70] REDDY B S, NARAYANA P L, MAURYA A K, et al. Modeling capacitance of carbon-based supercapacitors by artificial neural networks[J]. *Journal of Energy Storage*, 2023, 72: 108537.
- [71] JAMALUDDIN A, HARJUNOWIBOWO D, BUDI-AWANTI S, et al. Applying machine learning to understand the properties of biomass carbon materials in supercapacitors[J]. *Energy Reports*, 2023, 10: 3125-3132.
- [72] YUAN Xiangzhou, LI Jie, LIM J Y, et al. Machine learning for heavy metal removal from water: Recent advances and challenges[J]. *ACS ES&T Water*, 2024, 4(3): 820-836.
- [73] LI Yize, GUPTA R, YOU Siming. Machine learning assisted prediction of biochar yield and composition via pyrolysis of biomass[J]. *Bioresource Technology*, 2022, 359: 127511.
- [74] ULLAH H, KHAN S, CHEN Baoliang, et al. Machine learning approach to predict adsorption capacity of Fe-modified biochar for selenium[J]. *Carbon Research*, 2023, 2(1): 29.
- [75] ZHU Xinzhe, XU Zibo, YOU Siming, et al. Machine learning exploration of the direct and indirect roles of Fe impregnation on Cr(VI) removal by engineered biochar[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2022, 428: 131967.
- [76] TAWFIK W Z, MOHAMMAD S N, RAHOUMA K H, et al. An artificial neural network model for capacitance prediction of porous carbon-based supercapacitor electrodes[J]. *Journal of Energy Storage*, 2023, 73: 108830.
- [77] LENG Lijian, ZHOU Junhui, ZHANG Weijin, et al. Machine-learning-aided hydrochar production through hydrothermal carbonization of biomass by engineering operating parameters and/or biomass mixture recipes[J]. *Energy*, 2024, 288: 129854.
- [78] LI Hailong, AI Zejian, YANG Lihong, et al. Machine learning assisted predicting and engineering specific surface area and total pore volume of biochar[J]. *Bioresource Technology*, 2023, 369: 128417.
- [79] LENG Lijian, YANG Lihong, LEI Xinni, et al. Machine learning predicting and engineering the yield, N content, and specific surface area of biochar derived from pyrolysis of biomass[J]. *Biochar*, 2022, 4(1): 63.
- [80] LEE J H, LEE M, MIN K. Natural language processing techniques for advancing materials discovery: A short review[J]. *International Journal of Precision Engineering and Manufacturing-Green Technology*, 2023, 10(5): 1337-1349.
- [81] YLI H J, KO D, CHOI S, et al. Where is current research on blockchain technology?—A systematic review[J]. *PLoS One*, 2016, 11(10): e0163477.
- [82] KREMER J, STEENSTRUP PEDERSEN K, IGEL C. Active learning with support vector machines[J]. *WIREs Data Mining and Knowledge Discovery*, 2014, 4(4): 313-326.
- [83] HUA Jiang, ZENG Liangcai, LI Gongfa, et al. Learning for a robot: Deep reinforcement learning, imitation learning, transfer learning[J]. *Sensors (Basel, Switzerland)*, 2021, 21(4): 1278.