Ảnh hưởng của nồng độ HF và thời gian siêu âm đến tính chất của vật liệu 2D-MXene-Ti_3C_2 tổng hợp bằng phương pháp hóa học ướt

Cao Thị Hồng[1, 2], Nguyễn Thị Thơm[1*], Phạm Thị Năm[1], Nguyễn Thu Phương[1], Vũ Thị Thu[3], Đinh Thị Mai Thanh[3], Ngô Văn Hoành[4], Trần Đại Lâm[1]

[1]Viện Kỹ thuật Nhiệt đới, Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam, 18 Hoàng Quốc Việt, phường Nghĩa Đô, quận Cầu Giấy, Hà Nội, Việt Nam
[2]Học viện Khoa học và Công nghệ, Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam, 18 Hoàng Quốc Việt, phường Nghĩa Đô, quận Cầu Giấy, Hà Nội, Việt Nam
[3]Trường Đại học Khoa học và Công nghệ Hà Nội, Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam, 18 Hoàng Quốc Việt, phường Nghĩa Đô, quận Cầu Giấy, Hà Nội, Việt Nam
[4]Viện Hóa học - Vật liệu, 17 Hoàng Sâm, phường Nghĩa Đô, quận Cầu Giấy, Hà Nội, Việt Nam

Ngày nhận bài 21/7/2023; ngày chuyển phản biện 23/7/2023; ngày nhận phản biện 4/8/2023; ngày chấp nhận đăng 9/8/2023

Tóm tắt:

Gần đây, một họ vật liệu mới cấu trúc hai chiều gọi là MXene, bao gồm các carbides/nitrides/carbonitrides kim loại chuyển tiếp đang nhận được sự quan tâm của các nhà khoa học. MXene có cấu trúc lớp 2D độc đáo nên chúng có thể dễ dàng kết hợp với các vật liệu khác để tăng cường thuộc tính cho vật liệu tổ hợp được tạo ra. Vật liệu này đang được nghiên cứu cho những ứng dụng rộng rãi, bao gồm tích trữ năng lượng, siêu tụ điện, xúc tác, màng dẫn điện, vật liệu gia cường và hấp phụ. MXene có thể được tổng hợp thông qua quá trình ăn mòn chọn lọc từ tiền chất MAXene bằng cách sử dụng dung dịch ăn mòn HF. Nghiên cứu này báo cáo ảnh hưởng của nồng độ HF và thời gian siêu âm tách lớp đến hình thái, thành phần của vật liệu 2D-MXene-Ti_3C_2 tổng hợp được bằng phương pháp kính hiển vi điện tử quét và phân tích quang phổ tán xạ năng lượng tia X. Các kết quả cho thấy, ở hàm lượng HF 48% và thời gian siêu âm 90 phút, vật liệu 2D-MXene-Ti_3C_2 có sự tách lớp tốt với hàm lượng nhôm trong phân tử còn khoảng 1,5%. Vật liệu 2D-MXene-Ti_3C_2 tổng hợp được có diện tích bề mặt tăng gấp 5,8 lần so với vật liệu MAX-Ti_3AlC_2 ban đầu.

Từ khóa: **ăn mòn chọn lọc, MAX-Ti_3AlC_2, nồng độ HF, thời gian siêu âm, 2D-MXene-Ti_3C_2.**

Chỉ số phân loại: **2.4, 2.5**

The effect of HF concentration and ultrasound time on 2D-MXene-Ti_3C_2 material synthesised by wet chemical method

Thi Hong Cao[1, 2], Thi Thom Nguyen[1*], Thi Nam Pham[1], Thu Phuong Nguyen[1], Thi Thu Vu[3], Thi Mai Thanh Dinh[3], Van Hoanh Ngo[4], Dai Lam Tran[1]

[1]Institute for Tropical Technology, Vietnam Academy of Science and Technology, 18 Hoang Quoc Viet Street, Nghia Do Ward, Cau Giay District, Hanoi, Vietnam
[2]Graduate University of Science and Technology, Vietnam Academy of Science and Technology, 18 Hoang Quoc Viet Street, Nghia Do Ward, Cau Giay District, Hanoi Vietnam
[3]University of Science and Technology of Hanoi, Vietnam Academy of Science and Technology, 18 Hoang Quoc Viet Street, Nghia Do Ward, Cau Giay District, Hanoi, Vietnam
[4]Institute of Chemistry - Material, 17 Hoang Sam Street, Nghia Do Ward, Cau Giay District, Hanoi, Vietnam

Received 21 July 2023; revised 4 August 2023; accepted 9 August 2023

Abstract:

Recently, a new family of two-dimensional materials, called MXenes, which are layered structure materials of carbides/nitrides/carbonitrides of transition metal, are receiving the attention of scientists. MXene, with its unique 2D layered structure, can easily combine with other materials to enhance the properties of the resulting composite material. The materials are being investigated for wide applications including energy storage, supercapacitors, catalysis, conductive films, reinforcement and adsorbents. MXene can be synthesised through selective etching from the MAXene precursor using HF etching solution. This study reports the effect of HF concentration and ultrasonication time on the morphology and composition of the synthesised 2D-MXene-Ti_3C_2 materials. These characterisations were evaluated by scanning electron microscopy and X-ray energy-dispersive spectroscopy analysis. The results showed that at 48% HF and 90 min of ultrasonication time, 2D-MXene-Ti_3C_2 material has good delamination with the aluminum content in the molecule remaining about 1.5%. The material has an approximately 5.8-fold increase in surface area compared to the original MAX-Ti_3AlC_2 material.

Keywords: **HF concentration, MAX-Ti_3AlC_2, selective etching, ultrasonication time, 2D-MXene-Ti_3C_2.**

Classification numbers: **2.4, 2.5**

[*]Tác giả liên hệ: Email: nguyenthithomsp@gmail.com

1. Đặt vấn đề

MXenes là họ vật liệu cacbua và nitrua kim loại chuyển tiếp hai chiều (2D) có công thức hóa học chung là $M_{n+1}X_n$ (n=1,2,3), trong đó, M là kim loại chuyển tiếp (Ti, Ta, Nb, V, Mo) và X có thể là C và/hoặc N [1]. MXenes thường được tổng hợp thông qua quá trình ăn mòn hóa học ướt từ pha MAX [2]. Các quá trình ăn mòn hóa học này dẫn đến các bề mặt thường được chức năng hóa với các nhóm –O, –F hoặc –OH [1, 3] và ký hiệu là T_x [1].

MXene đầu tiên (Ti_3C_2) có nguồn gốc từ Ti_3AlC_2 được phát hiện ra năm 2011, sau đó các MXene khác nhau đã được tổng hợp cho các ứng dụng bao gồm lưu trữ năng lượng, sàng lọc ion và khí, che chắn nhiễu điện từ, quang điện tử và y học [4-6]. Trong số đó, các MXene dựa trên titan (như $Ti_3C_2T_x$ và Ti_2CT_x) được sử dụng rộng rãi cho các ứng dụng môi trường [1, 7]. Bên cạnh cacbua, các cấu trúc MXene khác với nitride và carbonitride được sử dụng trong các lĩnh vực khác nhau [8]. MXene có cấu trúc lớp 2D độc đáo nên chúng có thể dễ dàng kết hợp với các vật liệu khác để tăng cường thuộc tính cho vật liệu tổ hợp được tạo ra [9, 10]. Ngoài ra, MXene có tính tương thích sinh học, dễ chức năng hóa, tính dẫn kim loại cao và tính ưa nước làm cho chúng trở thành một ứng cử viên lý tưởng cho các ứng dụng khác nhau như xử lý môi trường, lưu trữ năng lượng, điện tử, cảm biến, tách nước và xúc tác [11, 12]. Gần đây, MXenes được quan tâm nghiên cứu cho những ứng dụng trong lọc nước theo công nghệ khử ion bằng điện dung và hấp phụ [13, 14].

Do MXene có thể được ứng dụng rộng rãi trong nhiều lĩnh vực khác nhau nên gần đây các nhà khoa học đã và đang nghiên cứu để đưa ra quy trình công nghệ mới tổng hợp các vật liệu MXene từ các loại tiền chất ban đầu khác nhau. MXenes thể hiện các tính chất khác nhau tùy thuộc vào điều kiện tổng hợp như bản chất của chất ăn mòn, nồng độ chất ăn mòn, bản chất của dung môi và thời gian siêu âm. Thông thường, MXene được tạo ra bằng cách loại bỏ lớp A khỏi pha MAX thông qua quá trình ăn mòn chọn lọc bằng cách sử dụng HF làm chất ăn mòn. Dung dịch HF làm suy yếu các liên kết hóa học mạnh giữa các phần tử A và M trong pha MAX. Quá trình tổng hợp MXenes đã được báo cáo bởi M. Naguib và cs (2011) [1], trong báo cáo này các tác giả đề cập đến phản ứng hóa học giữa pha MAX và môi trường nước giàu flo. Nguyên tử Al bị loại bỏ theo phản ứng 1 và các MXene tổng hợp được có các nhóm –OH, –F (tương ứng với phản ứng 2 và 3). Nói cách khác, liên kết Ti-Al đã được thay thế bởi Ti-F hoặc Ti-OH.

$$Ti_3AlC_2 + 3HF \rightarrow Ti_3C_2 + AlF_3 + 3/2\ H_2 \quad (1)$$

$$Ti_3C_2 + 2H_2O \rightarrow Ti_3C_2(OH)_2 + H_2 \quad (2)$$

$$Ti_3C_2 + 2HF \rightarrow Ti_3C_2F_2 + H_2 \quad (3)$$

Bài báo này báo cáo một kỹ thuật đơn giản để tổng hợp vật liệu 2D-MXene-Ti_3C_2 từ tiền chất MAX-Ti_3AlC_2; đồng thời, nghiên cứu ảnh hưởng của nồng độ chất ăn mòn HF, thời gian siêu âm đến hình thái học và thành phần các nguyên tố trong vật liệu thu được. Vật liệu 2D-MXene-Ti_3C_2 tổng hợp được định hướng ứng dụng trong chế tạo điện cực composite xốp dẫn điện trên cơ sở carbon hoạt tính gáo dừa để xử lý nước nhiễm mặn tại khu vực Đồng bằng sông Cửu Long theo công nghệ điện dung khử ion (Capacitive deionisation - HCDI). Đây là một hướng nghiên cứu mới và tiềm năng để có thể ứng dụng trong thực tiễn.

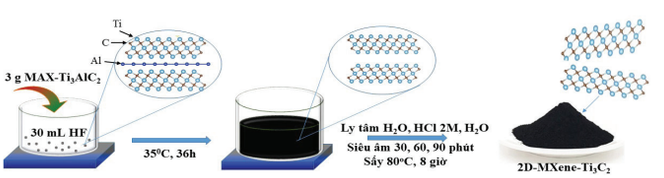
2. Thực nghiệm và phương pháp nghiên cứu

2.1. Hóa chất, thiết bị

Hóa chất MAX-Ti_3AlC_2 (độ tinh khiết 98%, <200 µm), HF nồng độ 48% và HCl nồng độ 37% là sản phẩm của hãng Sigma Aldrich. Các thiết bị sử dụng trong nghiên cứu bao gồm: cân phân tích 5 số Mettler Toledo (Đức), máy khuấy từ gia nhiệt VELP (Ý), máy siêu âm S60H Elmasonic (Đức) và máy ly tâm Hermle Z366K (Đức).

2.2. Tổng hợp 2D-MXene-Ti_3C_2

2D-MXene-Ti_3C_2 được tổng hợp bằng phương pháp ăn mòn chọn lọc "etching" từ tiền chất MAX-Ti_3AlC_2 trong dung dịch HF (hình 1). 3 g bột MAX-Ti_3AlC_2 được thêm vào 30 ml HF với nồng độ HF thay đổi 20, 30 và 48%. Hỗn hợp được đựng trong bình Teflon dung tích 50 ml có nắp đậy và được đun cách thủy trên máy khuấy từ gia nhiệt với tốc độ khuấy 250 vòng/phút, ở nhiệt độ 35°C trong thời gian 36 giờ. Hỗn hợp được ly tâm rửa bằng nước cất với tốc độ 9.000 vòng/phút trong 5 phút (3 lần), bằng dung dịch axit HCl 2M (thực hiện 3 lần), sau đó ly tâm rửa bằng nước cất đến pH trung tính. Tiếp theo, hỗn hợp được siêu âm ở nhiệt độ phòng với thời gian khác nhau 30, 60 và 90 phút sử dụng bể siêu âm. Cuối cùng, ly tâm thu lấy chất rắn và sấy chân không ở 80°C trong 8 giờ, nghiền bằng cối mã não thu được 2D-MXene-Ti_3C_2 dạng bột mịn màu đen.



Hình 1. Tổng hợp 2D-MXene-Ti_3C_2 bằng phương pháp hóa học ướt trong HF.

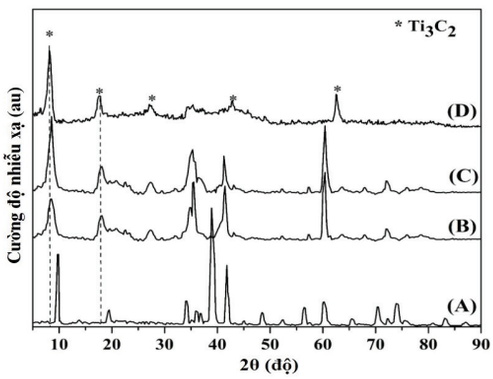
2.3. Phân tích đặc trưng tính chất của MAX-Ti_3AlC_2 và 2D-MXene-Ti_3C_2

Hình thái học bề mặt của các vật liệu MAX-Ti_3AlC_2 và 2D-MXene-Ti_3C_2 được phân tích bằng phương pháp kính hiển vi điện tử quét (SEM) sử dụng thiết bị Jeol 6490 JED 2300 (Jeol, Nhật Bản). Thành phần các nguyên tố của các vật liệu được đánh giá bằng phương pháp tán xạ năng lượng tia X (EDX) trên thiết bị Jeol 6490 JED 2300 (Jeol, Nhật Bản).

3. Kết quả và bàn luận

3.1. Ảnh hưởng của nồng độ HF

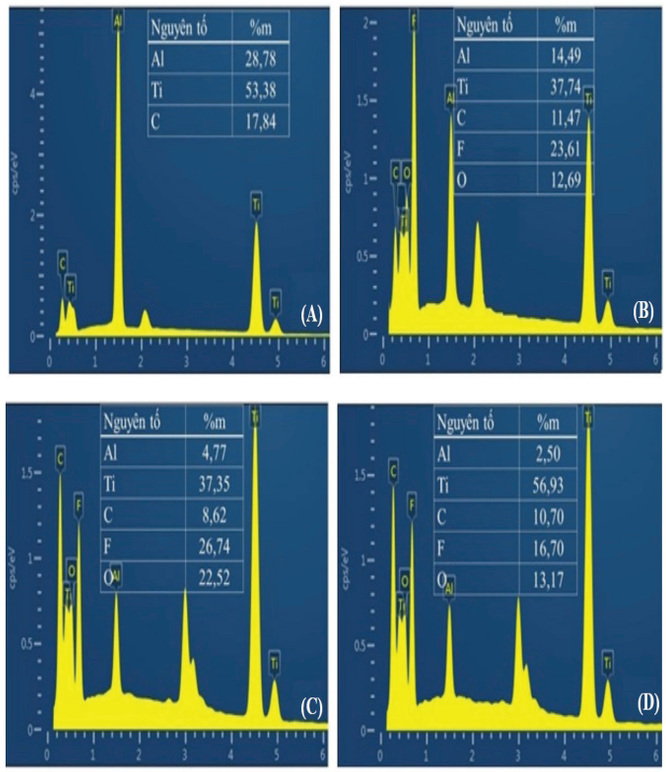
Giản đồ XRD của mẫu MAX-Ti_3AlC_2 và MXene-Ti_3C_2 tổng hợp ở nồng độ HF khác nhau đã được ghi lại để cung cấp thêm thông tin về cấu trúc tinh thể của chúng. Như được thấy trong hình 2, giản đồ XRD của MAX-Ti_3AlC_2 thể hiện hai pic điển hình ở 9,7 và 19,3° tương ứng với các mặt phẳng phản xạ (002) và (004).



Hình 2. Giản đồ XRD của MAX-Ti_3AlC_2 (A) và MXene-Ti_3C_2 tổng hợp trong dung dịch HF có nồng độ khác nhau 20% (B), 30% (C) và 40% (D).

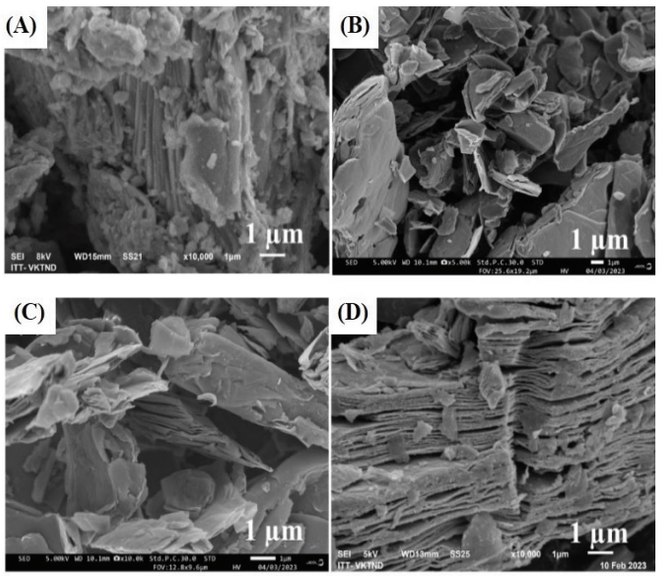
Sau khi ăn mòn trong các dung dịch HF có nồng độ khác nhau, hai pic này được dịch chuyển sang các góc nhỏ hơn (8,4 và 17,4°) và độ rộng của pic cũng được mở rộng (hình 2B, 2C và 2D). Nguyên nhân do sự xen kẽ của các nhóm hydroxyl và các phân tử nước vào các mặt phẳng cơ bản của vật liệu đã làm tăng tham số mạng c, dẫn đến sự dịch chuyển và mở rộng các pic nhiễu xạ. Khi được tổng hợp trong dung dịch HF có nồng độ 20 và 30% MAX-Ti_3AlC_2 không chuyển hóa hoàn toàn thành MXene-Ti_3C_2 và vẫn còn hiện diện trong các mẫu (hình 2B và 2C). Vật liệu thu được là đơn pha của MXene-Ti_3C_2 khi được tổng hợp trong dung dịch HF nồng độ 48% (hình 2D). Các pic đặc trưng của MXene-Ti_3C_2 quan sát được ở 2θ là 8,4, 17,6, 27,3, 42,4 và 62,6° tương ứng với các mặt phẳng phản xạ (002), (004), (008), (105) và (110) mặt phẳng. Kết quả khẳng định MXene-Ti_3C_2 đã tổng hợp thành công và đề xuất chọn dung dịch HF có nồng độ 48% để tổng hợp MXene-Ti_3C_2.

Thành phần các nguyên tố và ảnh SEM của MAX-Ti_3AlC_2 và MXene-Ti_3C_2 tổng hợp với nồng độ chất ăn mòn HF khác nhau được thể hiện trên hình 3 và 4. Phổ EDX của MAX-Ti_3AlC_2 quan sát thấy các pic đặc trưng cho nguyên tố Ti, C và Al với hàm lượng Al chiếm 28,78% theo khối lượng (%m). Sau khi phản ứng trong dung dịch HF hàm lượng Al giảm do sự ăn mòn chọn lọc nguyên tố Al, đồng thời xuất hiện pic đặc trưng cho O và F (hình 3B, 3C, 3D). Hàm lượng Al giảm 50% (còn 14,49% m) sau 36 giờ phản ứng trong dung dịch HF nồng độ 20% nhưng trên ảnh SEM sự tách lớp của MXene chưa được quan sát (hình 4B). Khi nồng độ HF tăng lên 30 và 48%, hàm lượng Al còn lại là 4,77 m và 2,50% m tương ứng.



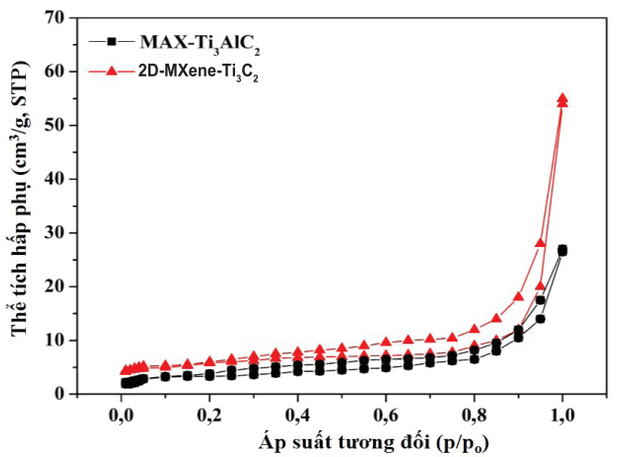
Hình 3. Phổ EDX của MAX-Ti_3AlC_2 (A) và 2D-MXene-Ti_3C_2 tổng hợp ở nồng độ HF khác nhau: 20% (B), 30% (C) và 48% (D).

Như đã trình bày trong phần đặt vấn đề, sự ăn mòn có chọn lọc nguyên tố Al sẽ tạo ra sự tách lớp trong cấu trúc của vật liệu MXene. Ảnh SEM của MAX-Ti_3AlC_2 có dạng hình tấm, với cấu trúc có thể được phân lớp (hình 4A). Sau khi ăn mòn trong dung dịch HF cấu trúc lớp được quan sát rất rõ, đặc biệt sau khi được ăn mòn trong HF 48%. Từ kết quả EDX, SEM và XRD cho phép kết luận đã tổng hợp thành công vật liệu 2D-MXene-Ti_3C_2 từ MAX-Ti_3AlC_2 bằng phương pháp etching. Trong nghiên cứu này, nhóm chúng tôi lựa chọn nồng độ HF 48% làm dung môi ăn mòn để tổng hợp 2D-MXene-Ti_3C_2.



Hình 4. Ảnh SEM của MAX-Ti_3AlC_2 (A) và 2D-MXene-Ti_3C_2 tổng hợp ở nồng độ HF khác nhau: 20% (B), 30% (C) và 48% (D).

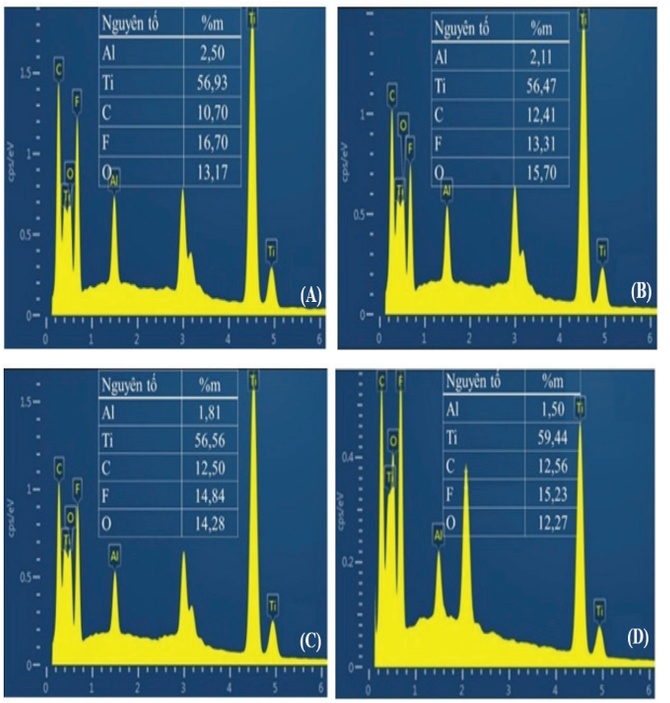
Để minh chứng cho kết luận về sự tách lớp trong cấu trúc của vật liệu MXene do sự ăn mòn có chọn lọc lớp nhôm trong tiền chất MAX, phương pháp đẳng nhiệt hấp phụ N_2 (BET) được sử dụng để xác định diện tích bề mặt riêng của vật liệu (hình 5). Diện tích bề mặt riêng của vật liệu MAX-Ti_3AlC_2 là khoảng 1,6 m^2/g, sau khi được etching trong dung dịch HF 48%, diện tích bề mặt riêng của 2D-MXene-Ti_3C_2 đạt 10,56 m^2/g (tăng 5,6 lần so với vật liệu MAX).



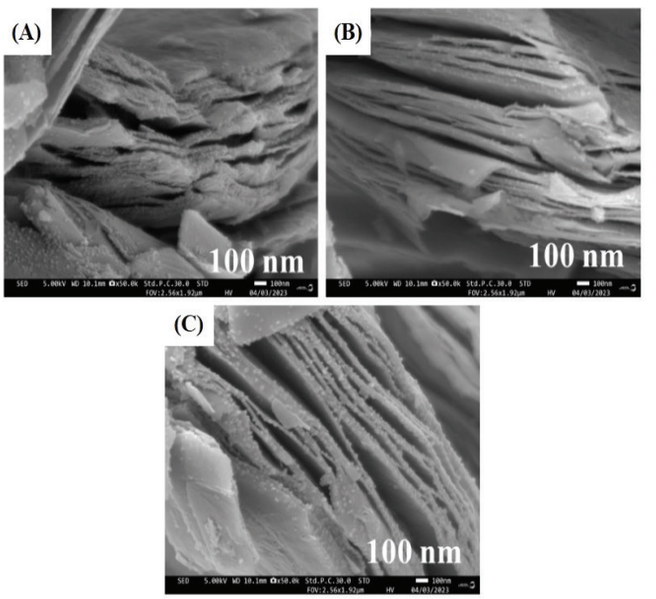
Hình 5. Đường đẳng nhiệt hấp phụ N_2 của MAX-Ti_3AlC_2 và 2D-MXene-Ti_3C_2.

3.2. Ảnh hưởng của thời gian siêu âm

Trong phần này, chúng tôi khảo sát ảnh hưởng của thời gian siêu âm đến sự tách lớp vật liệu 2D-MXene-Ti_3C_2. Mẫu 2D-MXene-Ti_3C_2 sau khi được tổng hợp trong dung môi HF nồng độ 48% trong 36 giờ ở nhiệt độ 35°C sẽ được ly tâm lọc rửa về pH trung tính. Sau đó, thêm nước cất và siêu âm mẫu ở nhiệt độ phòng với thời gian khác nhau: 30 phút, 60 phút và 90 phút. Cuối cùng ly tâm lọc rửa bằng nước cất



Hình 6. Phổ EDX của các mẫu 2D-MXene-Ti_3C_2 tổng hợp ở HF nồng độ 48% và siêu âm với thời gian khác nhau: 0 phút (A), 30 phút (B), 60 phút (C) và 90 phút (D).



Hình 7. Ảnh SEM của 2D-MXene-Ti_3C_2 tổng hợp ở HF nồng độ 48% và siêu âm với thời gian khác nhau 30 phút (A), 60 phút (B) và 90 phút (C).

(3 lần) để thu lấy vật liệu 2D-MXene-Ti_3C_2. Các đặc trưng về thành phần các nguyên tố và hình thái học bề mặt của vật liệu được phân tích bằng phép đo EDX và SEM (hình 6 và 7). Dựa trên kết quả EDX có thể thấy, quá trình siêu âm và rửa sau siêu âm còn tiếp tục làm giảm hàm lượng nguyên tố Al trong mẫu 2D-MXene-Ti_3C_2. Khi tăng thời gian siêu

âm từ 30 phút đến 90 phút, hàm lượng Al trong mẫu còn khoảng 1,5%m. Ảnh SEM cho thấy, quá trình siêu âm đã làm tách các lớp MXene (hình 7) và thời gian siêu âm tăng, sự tách lớp quan sát được rõ hơn. Từ các kết quả EDX và SEM, chúng tôi lựa chọn thời gian siêu âm 90 phút để thu được vật liệu 2D-MXene-Ti_3C_2 có sự tách lớp tốt. Các kết quả về sự tách lớp tốt cho thấy đã tổng hợp thành công vật liệu 2D-MXene-Ti_3C_2 tương tự như trong báo cáo của F. Liu và cs (2017) [15].

4. Kết luận

Vật liệu 2D-MXene-Ti_3C_2 đã được tổng hợp thành công bằng phương pháp ăn mòn hóa học ướt từ tiền chất MAX-Ti_3AlC_2. Để khám phá hiệu quả của quá trình ăn mòn chọn lọc nguyên tố Al trong pha MAX, ảnh hưởng của nồng độ chất ăn mòn HF và thời gian thời gian siêu âm đã được nghiên cứu. Bằng cách so sánh các đặc trưng về thành phần pha, thành phần nguyên tố và hình thái học bề mặt của vật liệu tổng hợp được, chúng tôi kết luận rằng, MXene-Ti_3C_2 được tổng hợp trong HF nồng độ 48% và siêu âm 90 phút cho thấy sự tách lớp tốt. Vật liệu 2D-MXene-Ti_3C_2 tổng hợp được có diện tích tăng khoảng 5,8 lần so với vật liệu MAX-Ti_3AlC_2 ban đầu. Những nghiên cứu đánh giá ảnh hưởng của dung môi đến sự tách lớp của vật liệu MXene và nghiên cứu chế tạo điện cực trên cơ sở vật liệu MXene ứng dụng trong xử lý nước lợ theo công nghệ điện dung khử ion (CDI) sẽ được chúng tôi báo cáo trong các công bố tiếp theo.

LỜI CẢM ƠN

Nguyễn Thị Thơm được tài trợ bởi Chương trình Học bổng sau tiến sỹ trong nước của Quỹ Đổi mới sáng tạo Vingroup (VINIF), mã số: VINIF.2022.STS.44 và được hỗ trợ bởi Bộ Khoa học và Công nghệ thông qua đề tài mã số ĐTĐLCN.66/22. Các tác giả xin chân thành cảm ơn.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

[1] M. Naguib, M. Kurtoglu, V. Presser, et al. (2011), "Two-dimensional nanocrystals produced by exfoliation of Ti_3AlC_2", *Advanced Materials*, **23**, pp.4248-4253, DOI: 10.1002/adma.201102306.

[2] M.W. Barsoum (2013), *MAX Phases: Properties of Machinable Ternary Carbides and Nitrides*, Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, 436pp.

[3] M.A. Hope, A.C. Forse, K.J. Griffith, et al. (2016), "NMR reveals the surface functionalisation of Ti_3C_2 MXene", *Physical Chemistry Chemical Physics*, **18**, pp.5099-5102, DOI: 10.1039/C6CP00330C.

[4] U.U. Rahman, M. Humayun, U. Ghani, et al. (2022), "MXenes as emerging materials: Synthesis, properties, and applications", *Molecules*, **27**, pp.4909-4945, DOI: 10.3390/molecules27154909.

[5] Z.U.D. Babar, B.D. Ventura, R. Velotta, et al. (2022), "Advances and emerging challenges in MXenes and their nanocomposites for biosensing applications", *RSC Advances*, **12(30)**, pp.19590-19610, DOI: 10.1039/D2RA02985E.

[6] L. Jiang, D. Zhou, J. Yang, et al. (2022), "2D-single-and few-layered MXene: Synthesis, applications and perspectives", *Journal of Materials Chemistry A*, **10**, pp.13651-13672, DOI: 10.1039/D2TA01572B.

[7] K. Rasool, R.P. Pandey, P.A. Rasheed, et al. (2019), "Water treatment and environmental remediation applications of two-dimensional metal carbides (MXenes)", *Materials Today*, **30**, pp.80-102, DOI: 10.1016/j.mattod.2019.05.017.

[8] K. Hantanasirisakul, M. Alhabeb, A. Lipatov, et al. (2019), "Effects of synthesis and processing on optoelectronic properties of titanium carbonitride MXene", *Chemistry of Materials*, **31**, pp.2941-2951, DOI: 10.1021/acs.chemmater.9b00401.

[9] K. Huang, Z. Li, J. Lin, et al. (2018), "Two-dimensional transition metal carbides and nitrides (MXenes) for biomedical applications", *Chemical Society Reviews journal,* **47**, pp.5109-5124, DOI: 10.1039/C7CS00838D.

[10] X. Zhan, C. Si, J. Zhou, et al. (2020), "MXene and MXene-based composites: Synthesis, properties and environment-related applications", *Nanoscale Horizons*, **5**, pp.235-258, DOI: 10.1039/C9NH00571D.

[11] N.N. Wang, H. Wang, Y.Y. Wang, et al. (2019), "Robust, lightweight, hydrophobic, and fire-retarded polyimide/MXene aerogels for effective oil/water separation", *ACS Applied Materials & Interfaces*, **11**, pp.40512-40523, DOI: 10.1021/acsami.9b14265.

[12] C.J. Zhang, V. Nicolosi (2019), "Graphene and MXene-based transparent conductive electrodes and supercapacitors", *Energy Storage Materials*, **16**, pp.102-125, DOI: 10.1016/j.ensm.2018.05.003.

[13] J. Lei, F. Yu, H. Xie, et al. (2023), "$Ti_3C_2T_x$ MXene/carbon nanofiber multifunctional electrode for electrode ionization with antifouling activity", *Chemical Science*, **14**, pp.3610-3621, DOI: 10.1039/d2sc06946f.

[14] A.A.P.R. Perera, K.A.U. Madhushani, B.T. Punchihewa, et al. (2023), "MXene-based nanomaterials for multifunctional applications", *Materials*, **16**, pp.1138-1162, DOI: 10.3390/ma16031138.

[15] F. Liu, A. Zhou, J. Chen, et al. (2017), "Preparation of Ti_3C_2 and Ti_2C MXenes by fluoride salts etching and methane adsorptive properties", *Applied Surface Science,* **416**, pp.781-789, DOI: 10.1016/j.apsusc.2017.04.239.