

T.C.  
ERZİNCAN BİNALİ YILDIRIM ÜNİVERSİTESİ  
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

DOKTORA TEZİ

**Fe<sub>2</sub>AlB<sub>2</sub> VE MoAlB MAB FAZLARININ SENTEZİ VE  
SÜPERKAPASİTÖR UYGULAMALARI İÇİN Fe<sub>2</sub>Al<sub>1-x</sub>B<sub>2</sub> VE  
MoAl<sub>1-x</sub>B MBene YAPILARININ ARAŞTIRILMASI**

Ahmed Jalal Salih SALIH

Danışman: Dr. Öğr. Üyesi Yaşar Özkan YEŞİLBAĞ

FİZİK  
ANABİLİM DALI

ERZİNCAN  
2026  
Her Hakkı Saklıdır.

## Kabul ve Onay Sayfası

Dr. Öğr. Üyesi Yaşar Özkan YEŞİLBAĞ danışmanlığında, Ahmed Jalal Salih SALIH tarafından hazırlanan bu çalışma 11/06/2026 tarihinde aşağıdaki jüri tarafından Fizik Anabilim Dalı Fizik Bilim Dalı'nda Doktora Tezi olarak kabul oybirliği ile kabul edilmiştir.

Başkan:	Prof. Dr. Kemal Volkan ÖZDOKUR	İmza:
Danışman:	Dr. Öğr. Üyesi Yaşar Özkan YEŞİLBAĞ	İmza:
Üye:	Doç. Dr. Erhan KARACA	İmza:
Üye :	Doç. Dr. Fatma Nur TUZLUCA YEŞİLBAĞ	İmza:
Üye :	Dr. Öğr. Üyesi Şahin COŞKUN	İmza:

Yukarıdaki sonuç Enstitü Yönetim Kurulunun 08/ 06/ 2026 tarih ve 23/6 sayılı kararı ile onaylanmıştır.

**Prof. Dr. Kemal Volkan ÖZDOKUR**  
Enstitü Müdür V.

**Not:** Bu tezde kullanılan özgün ve başka kaynaklardan yapılan bildirişlerin, şekil ve tabloların kaynak olarak kullanımı, 5846 sayılı Fikir ve Sanat Eserleri Kanunundaki hükümlere tabidir.

## **Bilimsel Etięe Uygunluk Sayfası**

“Fe<sub>2</sub>AlB<sub>2</sub> VE MoAlB MAB FAZLARININ SENTEZİ VE SÜPERKAPASİTÖR UYGULAMALARI İÇİN Fe<sub>2</sub>Al<sub>1-x</sub>B<sub>2</sub> VE MoAl<sub>1-x</sub>B MBene YAPILARININ ARAŞTIRILMASI” isimli “Doktora” tezim tarafımca intihal tespit programı ile incelenmiştir. Buna göre tezimde bilimsel etik ihlali ve intihal olarak nitelendirilebilecek herhangi bir durum olmadığını taahhüt ederim.

Bu çalışmadaki tüm bilgilerin, akademik ve etik kurallara uygun bir biçimde elde edildiğini; aynı zamanda bu kural ve davranışların gerektirdiği gibi, bu çalışmanın özünde olmayan tüm materyal ve sonuçları tam olarak aktardığımı ve referans gösterdiğimi beyan ederim. 11/06/2026

**Ahmed Jalal Salih SALIH**

## ÖZET

### Fe<sub>2</sub>AlB<sub>2</sub> VE MoAlB MAB FAZLARININ SENTEZİ VE SÜPERKAPASİTÖR UYGULAMALARI İÇİN Fe<sub>2</sub>Al<sub>1-x</sub>B<sub>2</sub> VE MoAl<sub>1-x</sub>B MBene YAPILARININ ARAŞTIRILMASI

Ahmed Jalal Salih SALIH

Doktora Tezi, Erzincan Binali Yıldırım Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü,

Fizik Anabilim Dalı

Danışman: Dr. Öğr. Üyesi Yaşar Özkan YEŞİLBAĞ

2026, 85 Sayfa

Bu doktora tezi, Fe<sub>2</sub>AlB<sub>2</sub> ve MoAlB MAB fazlarının sentezi ile bu fazlardan türetilen Fe<sub>2</sub>Al<sub>1-x</sub>B<sub>2</sub> ve MoAl<sub>1-x</sub>B MBene yapıların kapsamlı karakterizasyonuna odaklanmakta ve söz konusu malzemelerin enerji depolama uygulamalarındaki potansiyelini ayrıntılı olarak ortaya koymaktadır. Fe<sub>2</sub>AlB<sub>2</sub> MAB fazı, FeB ve Al tozlarının 1200 °C’de 2 saat sinterlenmesiyle başarıyla sentezlenmiş, ardından alüminyum tabakalarının 2 M HCl çözeltisi ile seçici olarak aşındırılması sonucunda tabakalı ve akordeon benzeri morfolojiye sahip Fe<sub>2</sub>Al<sub>1-x</sub>B<sub>2</sub> MBene elde edilmiştir. Elektrokimyasal ölçümler, Fe<sub>2</sub>Al<sub>1-x</sub>B<sub>2</sub> MBene’in belirgin psödokapasitif davranış sergilediğini ve üç elektrotlu sistemde 0,5 A g<sup>-1</sup> akım yoğunluğunda 276 F g<sup>-1</sup> spesifik kapasitans değerine ulaştığını göstermiştir. Bu yüksek performans, geniş özgül yüzey alanı, tabakalar arası genişlemiş yapı ve Fe tabanlı redoks aktif bölgelerin varlığı ile ilişkilendirilmektedir. Asimetrik süperkapasitör (ASC) konfigürasyonunda, 306,4 W kg<sup>-1</sup> güç yoğunluğunda 20,6 Wh kg<sup>-1</sup> enerji yoğunluğu elde edilmiş ve cihaz, 10,000 çevrim sonunda başlangıç kapasitansının %96’sını koruyarak üstün çevrim kararlılığı sergilemiştir. Bu bulgular, Fe<sub>2</sub>Al<sub>1-x</sub>B<sub>2</sub> MBene’in yüksek performanslı elektrot malzemeleri arasında yer alabileceğini göstermektedir. MoAlB fazı ise MoB ve Al tozlarının 1400 °C’de 4 saat sinterlenmesiyle sentezlenmiş ve ardından 9 M HCl ve %0,3 H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> içeren çözelti ile gerçekleştirilen seçici aşındırma işlemi sonucunda MoAl<sub>1-x</sub>B MBene elde edilmiştir. Elektrokimyasal testler, MoAl<sub>1-x</sub>B MBene’in üç elektrotlu sistemde 0.5 A g<sup>-1</sup> akım yoğunluğunda 200 F g<sup>-1</sup> spesifik kapasitans sergilediğini ortaya koymuştur. İlgili ASC cihazı, 17,8 Wh kg<sup>-1</sup> enerji yoğunluğu ve 21,6 kW kg<sup>-1</sup> güç yoğunluğu değerlerine ulaşmıştır.

**Anahtar Kelimeler:** MAB Fazları, Fe<sub>2</sub>Al<sub>1-x</sub>B<sub>2</sub> MBene, MoAl<sub>1-x</sub>B MBene, Asimetrik Süperkapasitör

## ABSTRACT

### SYNTHESIS OF $\text{Fe}_2\text{AlB}_2$ AND $\text{MoAlB}$ MAB PHASES AND INVESTIGATION OF $\text{Fe}_2\text{Al}_{1-x}\text{B}_2$ AND $\text{MoAl}_{1-x}\text{B}$ MBene STRUCTURES FOR SUPERCAPACITOR APPLICATIONS

Ahmed Jalal Salih SALIH

PhD Thesis, Erzincan Binali Yıldırım University, Graduate School of Natural and Applied Sciences, Department of Physics

Advisor: Assistant Professor Yaşar Özkan YEŞİLBAĞ

2026, 85 Pages

This doctoral thesis focuses on the synthesis of  $\text{Fe}_2\text{AlB}_2$  and  $\text{MoAlB}$  MAB phases and the comprehensive characterization of their derived  $\text{Fe}_2\text{Al}_{1-x}\text{B}_2$  and  $\text{MoAl}_{1-x}\text{B}$  MBene structures, aiming to elucidate their potential for energy storage applications. The  $\text{Fe}_2\text{AlB}_2$  MAB phase was successfully synthesized by sintering FeB and Al powders at 1200 °C for 2 h, followed by selective etching of the aluminum layers using a 2 M HCl solution, resulting in the formation of  $\text{Fe}_2\text{Al}_{1-x}\text{B}_2$  MBene with a layered, accordion-like morphology. Electrochemical measurements revealed that  $\text{Fe}_2\text{Al}_{1-x}\text{B}_2$  MBene exhibits pronounced pseudocapacitive behavior, delivering a high specific capacitance of 276  $\text{F g}^{-1}$  at a current density of 0.5  $\text{A g}^{-1}$  in a three-electrode system. This enhanced performance is attributed to its large specific surface area, expanded interlayer structure, and the presence of Fe-based redox-active sites. In an asymmetric supercapacitor (ASC) configuration, the device achieved an energy density of 20.6  $\text{Wh kg}^{-1}$  at a power density of 306.4  $\text{W kg}^{-1}$ , while retaining 96% of its initial capacitance after 10,000 charge–discharge cycles, demonstrating excellent cycling stability. These findings indicate that  $\text{Fe}_2\text{Al}_{1-x}\text{B}_2$  MBene is a promising candidate for high-performance electrode materials. The  $\text{MoAlB}$  phase was synthesized by sintering MoB and Al powders at 1400 °C for 4 h, followed by selective etching using a solution containing 9 M HCl and 0.3%  $\text{H}_2\text{O}_2$  to obtain  $\text{MoAl}_{1-x}\text{B}$  MBene. Electrochemical evaluation showed that  $\text{MoAl}_{1-x}\text{B}$  MBene delivers a specific capacitance of 200  $\text{F g}^{-1}$  at a current density of 0.5  $\text{A g}^{-1}$  in a three-electrode system. The corresponding ASC device exhibited an energy density of 17.8  $\text{Wh kg}^{-1}$  and a power density of 21.6  $\text{kW kg}^{-1}$ .

**Keywords:** MAB phases,  $\text{Fe}_2\text{Al}_{1-x}\text{B}_2$  MBene,  $\text{MoAl}_{1-x}\text{B}$  MBene, Asymmetric Supercapacitor

## TEŐEKKÜR

Doktora alıőmam sũresince bilgi ve tecrũbesiyle her aőamada yœnlendirmelerini esirgemeyen, deęerli katkıları ve desteęiyle alıőmalarımın őekillenmesine yardımcı olan saygıdeęer danıőmanım Dr. œęr. Őyesi Yaőar œzkan YEŐILBAę'a en iten teőekkũrlerimi sunarım.

Bu tez alıőması, TũBİTAK 1001 programı kapsamında desteklenen 120F312 numaralı proje erevesinde gerekleőtirilmiş olup, saęlanan maddi destek iin TũBİTAK'a teőekkũr ederim. Ayrıca doktora sũrecim boyunca TũBİTAK Bilim İnsanı Destek Programları Baőkanlıęı (BİDEB) 2211-Yurt İi Lisansũstũ Burs Programı kapsamında verilen destek iin de teőekkũrlerimi sunarım.

alıőmalarım sırasında desteklerini ve yardımlarını esirgemeyen Ahmad HũSEYİN'e ve deęerli katkılarıyla her zaman yanımda olan Do. Dr. Fatma Nur TUZLUCA YEŐILBAę hocama teőekkũrlerimi sunarım.

Analiz sũrelerinde saęladıkları teknik destek ve yardımları iin EBYũ/EUTAM alıőanları Aziz GũNEŐ ve Harun ASLANER'e őũkranlarımı sunarım.

Hayatımın her aőamasında yanımda olan, sabırları, destekleri ve sevgileriyle beni motive eden aileme en iten teőekkũrlerimi sunarım.

Ahmed Jalal Salıh SALIH  
Haziran, 2026

# İÇİNDEKİLER

ÖZET .....	i
ABSTRACT .....	ii
TEŞEKKÜR .....	iii
İÇİNDEKİLER.....	iv
ŞEKİLLER LİSTESİ.....	vi
TABLolar LİSTESİ .....	x
SİMGELER ve KISALTMALAR.....	xi
1. GİRİŞ.....	1
1.1. Araştırmanın Amacı .....	3
1.2. Araştırmanın Önemi .....	4
2. KAVRAMSAL ÇERÇEVE.....	6
2.1. MAB Fazlarının Yapısal ve Kimyasal Özellikleri .....	8
2.1.1. Kristal yapı özellikleri.....	10
2.1.2. Elektronik özellikleri.....	15
2.1.3. Mekanik özellikleri .....	16
2.2. MBene'lerin Sentez Yöntemleri.....	17
2.2.1. Asidik çözeltilerde seçici kimyasal aşındırma .....	17
2.2.2. Alkali çözeltilerde seçici kimyasal aşındırma.....	20
2.2.3. Mekanik eksfoliasyon .....	23
2.2.4. Kimyasal indirgeme .....	24
2.2.5. Bilyalı öğütme.....	24
2.3. MBene'lerin Uygulamaları.....	25
2.4. Süperkapasitörler.....	28
2.4.1. Süperkapasitörlerin temel çalışma prensibi .....	28
2.4.2. Elektrokimyasal çift tabakalı kapasitörler.....	32
2.4.3. Psödokapasitörler .....	33
2.4.4. Hibrit kapasitörler .....	35
2.5. MBene Tabanlı Elektrot Malzemeleri.....	37
3. MATERYAL ve YÖNTEM .....	40
3.1. Fe <sub>2</sub> AIB <sub>2</sub> ve MoAIB MAB Fazlarının Sentezlenmesi .....	40
3.2. Fe <sub>2</sub> Al <sub>1-x</sub> B <sub>2</sub> ve MoAl <sub>1-x</sub> B MBene Fazlarının Sentezlenmesi.....	42
3.3. Yapısal ve Morfolojik Analizler.....	42

3.4. Elektrokimyasal Ölçümler.....	43
3.5. Yük Depolama Mekanizması .....	45
4. ARAŞTIRMA BULGULARI.....	47
4.1. Fe <sub>2</sub> AlB <sub>2</sub> MAB Fazının ve Fe <sub>2</sub> Al <sub>1-x</sub> B <sub>2</sub> MBene'nin Yapısal ve Morfolojik Analizleri 47	
4.2. MoAlB MAB Fazının ve MoAl <sub>1-x</sub> B MBene'nin Yapısal ve Morfolojik Analizleri	55
4.3. Fe <sub>2</sub> Al <sub>1-x</sub> B <sub>2</sub> MBene'nin Üç Elektrotlu Hücredeki Ölçüm Sonuçları .....	58
4.4. Fe <sub>2</sub> Al <sub>1-x</sub> B <sub>2</sub> MBene'nin Asimetrik Süperkapasitör (ASC) Ölçüm Sonuçları .....	61
4.5. MoAl <sub>1-x</sub> B MBene'nin Üç Elektrotlu Hücredeki Ölçüm Sonuçları.....	68
4.6. MoAl <sub>1-x</sub> B MBene'nin Asimetrik Süperkapasitör (ASC) Ölçüm Sonuçları .....	69
5. SONUÇLAR .....	72
6. ÖNERİLER.....	74
7. KAYNAKLAR .....	76
8. EKLER.....	84

## ŞEKİLLER LİSTESİ

<b>Şekil 1.1.</b> Süperkapasitör ve batarya uygulamalarında MBene malzemelerini konu alan yayımlanmış araştırmaların sayısı. ....	4
<b>Şekil 2.1.</b> Süperkapasitör elektrotlarında kullanılan farklı 2B nanomalzeme sınıflarının şematik gösterimi (Liu vd., 2018).....	6
<b>Şekil 2.2.</b> MAB fazlarını oluşturan M, A ve B elementlerinin periyodik tabloda konumları ile literatürde yer alan MAB fazlarının şematik gösterimi (Ade ve Hillebrecht, 2015).....	8
<b>Şekil 2.3.</b> $Ti_3AlC_2$ MAX fazı ile MA1B (MoAlB) ve $M_2AlB_2$ ( $Fe_2AlB_2$ ) MAB fazlarının kristal yapılarının şematik gösterimi (Alameda vd., 2018). ....	9
<b>Şekil 2.4.</b> $M_2AlB_2$ MAB fazları ile $M_2AlC$ MAX fazlarında bulunan M–B, M–Al ve M–C bağlarının bağ enerjilerinin karşılaştırmalı gösterimi (Guo vd., 2017). ....	10
<b>Şekil 2.5.</b> MAB fazlarının ( $M_2AB_2$ , $M_4AB_4$ , $M_3AB_4$ ve $M_4AB_6$ ) kristal yapıları ile bu fazlardan türeyen ilgili MBene (MB, $M_2B_3$ ve $M_3B_4$ ) yapıların atomik düzenine dayalı sınıflandırılması (Jakubczak vd., 2021). ....	11
<b>Şekil 2.6.</b> Literatürde rapor edilen ortorombik (orth-MBene) ve hekzagonal (hex-MBene) MBene fazlarının ( $M_2B_2$ , $M_3B_4$ ve $M_4B_6$ ) atomik yapıları ve geçiş metali (TM) türlerine göre dağılımı (Khan vd., 2024).....	12
<b>Şekil 2.7.</b> MAB fazından Al tabakasının seçici olarak aşındırılması yoluyla MBene yapısının elde edilmesini gösteren şematik sentez diyagramı (Zheng vd., 2025). ....	14
<b>Şekil 2.8.</b> Elektron Yerelleştirme Fonksiyonu (ELF) spektroskopisi, FeB tabakasının (001) düzleminde incelenmesi (Liu vd., 2023). ....	15
<b>Şekil 2.9.</b> (a) FeB tek tabakasına ait yoğunluk durumları (DOS) diyagramı, (b) ve (c) ilgili bant yapısı hesaplamaları (Liu vd., 2023). ....	16
<b>Şekil 2.10.</b> $Cr_2AlB_2$ MAB fazının (a) başlangıç FESEM görüntüsü, (b) HCl ile aşındırma sonrası elde edilen CrB MBene'nin FESEM görüntüsü; (c) ve (d) HCl'de 8 saatlik aşındırma sonrasında CrB MBene'ye ait sırasıyla XRD ve FESEM sonuçları (Zhang vd., 2018).....	19
<b>Şekil 2.11.</b> (a) MoAlB MAB fazının FESEM görüntüsü, (b,c) MoB MBene'nin farklı büyütmelerde FESEM görüntüleri; (d,e) sırasıyla MoAlB ve MoB MBene'ye ait XRD desenleri ve (f) MoB MBene'nin HR-TEM görüntüsü (Xiong vd., 2022). ....	21
<b>Şekil 2.12.</b> 0,25 M NaOH çözeltisinde 6 saat boyunca bazik aşındırmaya tabi tutulan MoAlB örneklerine ait FESEM görüntüleri; (a) oda sıcaklığı, (b) 110 °C, (c) 170 °C ve (d) 190 °C (Wei vd., 2024).....	22

<b>Şekil 2.13.</b> MBene'ler üzerine yayımlanan bilimsel çalışmaların uygulama alanlarına göre dağılımın (Ramezanzadeh vd., 2025).	26
<b>Şekil 2.14.</b> Elektrik Çift Tabaka Kapasitörün iç yapısı (Pottathara, 2017).	32
<b>Şekil 2.15.</b> Psödokapasitörlerde yük depolama mekanizmasının şematik gösterimi (Waqas Hakim vd., 2022).	34
<b>Şekil 3.1.</b> Fe <sub>2</sub> AlB <sub>2</sub> ve MoAlB MAB fazlarının sentezinde izlenen deneysel akış şeması.	40
<b>Şekil 3.2.</b> Toz karışımlarının homojenleştirilmesi amacıyla kullanılan bilyalı öğütme sistemi.	41
<b>Şekil 3.3.</b> Sinterlenmiş MAB peletlerinin öğütülmesi ve eleme işlemlerine ait görseller: (a) havanda parçalama, (b) eleme işlemi, (c) elde edilen ince toz.	42
<b>Şekil 3.4.</b> Potansiyostat / galvanostat cihazı ile iki ve üç elektrotlu test hücrelerinin gösterimi.	43
<b>Şekil 3.5.</b> Esnek ve serbest duran kâğıt formundaki aktif karbon elektrot.	44
<b>Şekil 4.1.</b> Fe <sub>2</sub> AlB <sub>2</sub> MAB fazı ve Fe <sub>2</sub> Al <sub>1-x</sub> B <sub>2</sub> MBene sentez sürecinin şematik gösterimi: (a) FeB ve Al tozlarının YSZ bilyeleri ile karıştırılması, (b) 15 MPa'da soğuk presleme, (c,d) vakumda sinterleme ile Fe <sub>2</sub> AlB <sub>2</sub> oluşumu, (e) öğütme ve eleme, (f) 2 M HCl ile Al tabakalarının aşındırılması (4 h), (g) santrifüjleme ve yıkama (pH ~6), (h) vakum filtrasyonu.	47
<b>Şekil 4.2.</b> (a) Fe <sub>2</sub> AlB <sub>2</sub> MAB fazının düşük büyütme FESEM görüntüsü, (b) Fe <sub>2</sub> Al <sub>1-x</sub> B <sub>2</sub> MBene'nin FESEM görüntüsü.	48
<b>Şekil 4.3.</b> (a) Fe <sub>2</sub> AlB <sub>2</sub> MAB fazına ait FESEM görüntüsü, (b) EDS analizi (c) Fe <sub>2</sub> Al <sub>1-x</sub> B <sub>2</sub> MBene'e ait FESEM görüntüsü, (d) EDS sonuçları, (e-g) Farklı büyütmelerde alınan TEM görüntüleri, (h) HR-TEM görüntüsü, (i) SAED deseni, (j) düzlemler arası mesafe.	49
<b>Şekil 4.4.</b> Farklı molaritelerde ve aşındırma sürelerinde LiF:HCl asidi kullanılarak gerçekleştirilen deneylerin FESEM görüntüleri, (a) 1 g LiF ve 6M HCl ve 15 saatlik aşındırmadan sonrası; (b) 1,8 g LiF ve 9M HCl, 48 saatlik aşındırmadan sonrası, (c) %40'lık HF asidi kullanılarak gerçekleştirilen deneylerin FESEM görüntüleri.	51
<b>Şekil 4.5.</b> Farklı molaritelerde ve aşındırma sürelerinde HCl asidi kullanılarak gerçekleştirilen deneylerin FESEM görüntüleri. (a) 8 saat 2M HCl; (b) 4 saat 4M HCl; (c) 12 saat 4M HCl.	52
<b>Şekil 4.6.</b> (a) Fe <sub>2</sub> AlB <sub>2</sub> MAB fazı ve Fe <sub>2</sub> Al <sub>1-x</sub> B <sub>2</sub> MBene'e ait XRD kırınım desenleri, (b) Fe <sub>2</sub> Al <sub>1-x</sub> B <sub>2</sub> MBene'de (020) kristal düzlemine ait pik kayması.	53
<b>Şekil 4.7.</b> (a) Fe <sub>2</sub> Al <sub>1-x</sub> B <sub>2</sub> MBene'e ait XPS tam spektrum, (b) B 1s spektrumu, (c) Al 2p spektrumu, (d) Fe 2p spektrumu.	54
<b>Şekil 4.8.</b> Fe <sub>2</sub> Al <sub>1-x</sub> B <sub>2</sub> MBene'nin azot adsorpsiyon-desorpsiyon izotermi ve BJH gözenek boyutu dağılımı.	55

<b>Şekil 4.9.</b> (a, b) MoAlB MAB fazı ve (c, d) MoAl <sub>1-x</sub> B MBene yapılarının FESEM görüntüleri. .....	55
<b>Şekil 4.10.</b> (a) MoAlB MAB ve MoAl <sub>1-x</sub> B MBene yapılarının XRD kırınım desenleri, (b) (020) kristal düzleminin tepe kayması. ....	57
<b>Şekil 4.11.</b> (a) MoAl <sub>1-x</sub> B MBene yapısının XPS spektrumu, sırasıyla (b) B 1s, (c) Al 2p ve (d) Mo 3d'in dekonvüle edilmiş yüksek çözünürlüklü spektrumları. ....	57
<b>Şekil 4.12.</b> Fe <sub>2</sub> Al <sub>1-x</sub> B <sub>2</sub> MBene elektrodunun elektrokimyasal performansı, (a) Elektrot hazırlama sürecinin şematik gösterimi, (b) 3–100 mV s <sup>-1</sup> tarama hızlarında elde edilen CV eğrileri, (c) 0,5–10 A g <sup>-1</sup> akım yoğunluklarında kaydedilen GCD eğrileri, (d) Spesifik kapasitans değerleri, (e) Nyquist diyagramı (içteki grafik yüksek frekans bölgesi gösterilmektedir).....	59
<b>Şekil 4.13.</b> (a, b) CV analizine dayalı olarak, Fe <sub>2</sub> Al <sub>1-x</sub> B <sub>2</sub> MBene elektrotu için 3 mV s <sup>-1</sup> ve 20 mV s <sup>-1</sup> tarama hızlarında kapasitif ve difüzyon kontrollü katkıların karşılaştırılması, (c) Saf CC ve CC@Fe <sub>2</sub> Al <sub>1-x</sub> B <sub>2</sub> elektrotlarının 20 mV s <sup>-1</sup> tarama hızında ölçülen CV eğrileri. ....	61
<b>Şekil 4.14.</b> (a) ASC'de kullanılan esnek aşırı kapasiteli aktif karbon elektrot, (b) Swagelok test hücresi.....	62
<b>Şekil 4.15.</b> Fe <sub>2</sub> Al <sub>1-x</sub> B <sub>2</sub> MBene tabanlı ASC'nin elektrokimyasal performansı: (a) Pozitif elektrot olarak Fe <sub>2</sub> Al <sub>1-x</sub> B <sub>2</sub> MBene, negatif elektrot olarak AC ve elektrolit olarak 3 M H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> kullanılan ASC'nin şematik gösterimi, (b) 0–1.2 V potansiyel aralığında, farklı tarama hızlarında elde edilen CV eğrileri, (c) farklı akım yoğunluklarında kaydedilen GCD eğrileri, (d) spesifik kapasitans değerleri. ....	63
<b>Şekil 4.16.</b> ASC'nin kapasitansına katkıda bulunan kapasitif ve difüzyon kontrollü bileşenler: (a, b) 3 ve 20 mV s <sup>-1</sup> 'de kapasitif (mavi) ve difüzyon kontrollü (kırmızı) katkılar; yüksek tarama hızlarında kapasitif katkı, (c) log(i <sub>p</sub> )–log(v) grafiğinden elde edilen <i>b</i> değerleri, (d) tarama hızına bağlı katkının yüzdesel dağılımı. ....	65
<b>Şekil 4.17.</b> (a) 10 A g <sup>-1</sup> akım yoğunluğunda ASC'nin uzun süreli döngü performansı, (b) EIS ölçümlerinden elde edilen Nyquist diyagramı ve eşdeğer devre modeli, (c) ASC'nin enerji ve güç yoğunluklarını literatürde rapor edilen elektrot malzemeleriyle karşılaştıran Ragone diyagramı.....	66
<b>Şekil 4.18.</b> MoAl <sub>1-x</sub> B MBene elektrotunun a) CV eğrileri, b) farklı akım yoğunluklarındaki GCD eğrileri, c) spesifik kapasitans değerleri.....	68
<b>Şekil 4.19.</b> (a) Asimetrik yapıdaki süperkapasitörün gösterimi, (b) CV eğrileri, (c) farklı akım yoğunluklarındaki GCD eğrileri, (d) spesifik kapasitans değerleri,.....	69

**Şekil 4.20.** Asimetrik yapıdaki süperkapasitörün (a) uzun döngü, (b) EIS ölçümü (c) Ragon eğrisi. .... 70

## TABLÖLAR LİSTESİ

<b>Tablo 4.1.</b> Süperkapasitörlerin elektrokimyasal performans karşılaştırması.....	67
<b>Tablo 4.2.</b> MBene tabanlı elektrotların elektrokimyasal performans karşılaştırması.....	73

## SİMGELER ve KISALTMALAR

### Simgeler

$A$	Alan
$A$	Amper
$\text{\AA}$	Angstrom
$C$	Coulomb
$C$	Kapasitans
$^{\circ}C$	Santigrat derece
$E$	Enerji
$eV$	Elektron Volt
$F$	Farad
$g$	Gram
$I$	Sabit deşarj akımı
$kg$	Kilogram
$kHz$	Kilohertz
$mAh$	Mili amper hour
$mg$	Miligram
$mHz$	Milihertz
$ml$	Mililitre
$\mu L$	Mikrolitre
$\mu m$	Mikrometre
$mV$	Milivolt
$nm$	Nanometre
$P$	(Power) Güç
$Pa$	Pascal
$q$	Yük
$Q$	Yük
$s$	Saniye
$t$	Zaman
$t$	Deşarj süresi
$V$	Volt
$\Delta V$	Voltajdaki deęişimi
$v$	Tarama hızı
$W$	Watt
$Wh$	Watt hour
$Z$	Empedans
$Z'$	Gerçek (Reel) empedans
$Z''$	Sanal (Imaginary) empedans
$Z_{CPE}$	Sabit faz elemanı
$-Z_{sanal}$	Sanal (Imaginary) empedans
$\Omega$	Ohm

$\sigma$  Yüzey yük yoğunluğu

### Kısaltmalar

GCD	Galvanostatik Şarj–Deşarj
CV	Döngüsel Voltametri
EIS	Elektrokimyasal Empedans Spektroskopisi
MXene	Geçiş Metali Karbürleri, Nitrürleri ve/veya Karbonitrürleri
GO	Grafen Oksit
MBene	Geçiş Metali Borürleri
2B	İki boyutlu
DOS	Yoğunluk Durumları
h-BN	Hekzagonal Bor Nitrür
LDH	Tabakalı Çift Hidroksitler
TMD	Geçiş Metali Dikalkojenitler
FESEM	Taramalı Elektron Mikroskobu
EDS	Enerji Dağılımlı X-Işınları Spektroskopisi
XPS	X-Işını Fotoelektron Spektroskopisi
XRD	X-Işını Kırınımı

## 1. GİRİŞ

Fosil yakıt rezervlerinin giderek azalması ve bu kaynakların yol açtığı yaygın çevresel etkiler, elektrikli araçlar, taşınabilir elektronik cihazlar ve akıllı şebeke sistemleri gibi yeni teknolojik gelişmelerle birleştiğinde, verimli, güvenilir ve sürdürülebilir enerji depolama sistemlerine olan ihtiyacı önemli ölçüde artırmıştır (Khaligh ve Li, 2010). Piller, enerji yoğunluğu açısından hâlen avantajlı olmalarına rağmen; sınırlı güç kapasiteleri, yavaş şarj–deşarj hızları ve sınırlı çevrim ömürleri nedeniyle hızlı güç aktarımı gerektiren birçok uygulamada yetersiz kalmaktadır. Bu bağlamda, süperkapasitörler; rejeneratif frenleme sistemleri, kesintisiz güç kaynakları, hibrit elektrikli araçlar, taşınabilir elektronik cihazlar ve ani güç gereksinimi bulunan birçok teknolojiye önemli avantajlar sağlamaktadır. Yüksek güç yoğunlukları sayesinde kısa süre içerisinde büyük miktarda enerjiyi sağlayabilmeleri, onları özellikle hızlı enerji aktarımı gerektiren uygulamalar için son derece uygun hâle getirmektedir. Ayrıca yüksek enerji dönüşüm verimleri, düşük bakım gereksinimleri, güvenli çalışma özellikleri ve geniş çalışma sıcaklığı aralıkları sayesinde modern enerji depolama teknolojilerinin önemli bir bileşeni olarak kabul edilmektedir (Luo vd., 2015).

Geleneksel bataryalarda enerji depolama süreci büyük ölçüde kimyasal reaksiyonlara dayanırken, süperkapasitörlerde enerji depolama mekanizması elektrot yüzeyinde gerçekleştiğinden çok daha hızlı şarj–deşarj davranışı elde edilmektedir. Bu özellik, süperkapasitörlerin saniyeler içerisinde şarj edilebilmesine ve milyonlarca çevrim boyunca performanslarını büyük ölçüde koruyabilmesine olanak sağlamaktadır (Winter ve Brodd, 2004). Süperkapasitörler genel olarak elektrik çift tabakalı kapasitörler (EDLC), psödokapasitörler ve hibrit süperkapasitörler olmak üzere üç ana gruba ayrılmaktadır. EDLC sistemlerinde enerji depolama, elektrot–elektrolit arayüzünde gerçekleşen elektrostatik yük ayrışması yoluyla sağlanırken, psödokapasitörlerde hızlı ve tersinir yüzey redoks reaksiyonları baskın rol oynamaktadır. Hibrit süperkapasitörler ise bu iki enerji depolama mekanizmasının avantajlarını bir araya getirerek hem yüksek güç yoğunluğu hem de yüksek enerji yoğunluğu elde etmeyi amaçlamaktadır. Bu nedenle, son yıllarda hibrit süperkapasitör sistemlerinin geliştirilmesine yönelik çalışmalar önemli ölçüde artış göstermiştir.

Bir enerji depolama cihazının performansı genellikle enerji yoğunluğu ve güç yoğunluğu parametreleri ile değerlendirilmektedir. Süperkapasitörler, bataryalara kıyasla daha düşük enerji yoğunluğuna sahip olmalarına rağmen çok daha yüksek güç yoğunlukları sunmaktadır. Ragone diyagramında değerlendirildiğinde, süperkapasitörlerin geleneksel dielektrik

kapasitörler ile bataryalar arasında konumlandığı görülmektedir. Bu benzersiz özellik, onların hem hızlı enerji aktarımı hem de uzun çevrim ömrü gerektiren uygulamalarda stratejik bir enerji depolama teknolojisi olarak öne çıkmasını sağlamaktadır. Bununla birlikte, enerji yoğunluklarının hâlen lityum iyon piller gibi gelişmiş batarya sistemlerinden daha düşük olması, süperkapasitör teknolojisinin yaygın kullanımının önündeki temel sınırlamalardan biri olarak kabul edilmektedir (Winter ve Brodd, 2004).

Süperkapasitör performansını belirleyen en önemli faktörlerden biri elektrot malzemelerinin fiziksel ve elektrokimyasal özellikleridir. Elektrotların yüksek özgül yüzey alanına sahip olması, elektrolit iyonlarının aktif bölgelere erişimini kolaylaştırarak kapasitans değerlerinin artmasına katkı sağlamaktadır. Benzer şekilde, yüksek elektriksel iletkenlik elektron taşınımını hızlandırarak güç performansını iyileştirmektedir. Ayrıca uygun gözenek yapısı, kısa iyon difüzyon mesafeleri ve yüksek yoğunlukta elektrokimyasal aktif bölge varlığı, yüksek enerji depolama kapasitesinin elde edilmesinde kritik rol oynamaktadır. Bu nedenle son yıllarda karbon bazlı malzemeler, geçiş metali oksitleri, iletken polimerler ve özellikle 2B nanomalzemeler, yeni nesil süperkapasitör elektrotları olarak yoğun ilgi görmekte ve kapsamlı şekilde araştırılmaktadır (Chen vd., 2009).

İki boyutlu (2B) malzemeler, geniş özgül yüzey alanları, ayarlanabilir yüzey kimyaları ve kısa iyon difüzyon yolları sayesinde enerji depolama uygulamalarında önemli bir potansiyel sunmaktadır (Wang vd., 2021). Grafen, geçiş metali oksitleri, tabakalı metal kalkojenitler ve MXene'ler, süperkapasitör uygulamaları için yaygın olarak önerilen 2B malzemeler arasında yer almaktadır (Sharma vd., 2023). Özellikle MXene'ler; metalik iletkenlikleri, hidrofilik yüzey özellikleri ve çeşitli fonksiyonel gruplar içermeleri nedeniyle üstün elektrokimyasal performans sergilemekte ve bu nedenle yoğun ilgi görmektedir (Panda vd., 2022). Bu doğrultuda, MXene'lerle yapısal ve kimyasal açıdan yüksek uyumluluk gösteren yeni bir 2B metal borür ailesi olan MBene'ler teorik olarak öngörülmüş ve detaylı biçimde incelenmiştir (Majed vd., 2023). MBene bileşikleri, iki tabakalı MAB fazlarından türetilmektedir. Burada  $M$  bir geçiş metalini,  $A$  13. veya 14. grup elementlerini ve  $B$  ise bor elementini temsil etmektedir. Ana MAB fazından  $A$  elementinin seçici olarak uzaklaştırılmasıyla MBene yapıları elde edilmektedir (Seetharaman vd., 2024).

MBene'lerin ayırt edici özellikleri, bor atomlarının elektronca eksik karakterinden kaynaklanmaktadır. Borun kısmen dolmamış 2p orbitalleri, geçiş metallerinin d orbitalleriyle güçlü örtüşme sergileyerek Fermi seviyesine yakın yüksek yoğunluklu elektronik durumlar

oluşturmakta ve bu durum, malzeme içerisinde bol miktarda elektrokimyasal olarak aktif bölgenin ortaya çıkmasına neden olmaktadır (Chai vd., 2015). Bu özgün elektronik yapı, homojen olmayan bir yük dağılımı oluşturarak ilave adsorpsiyon ve redoks aktif bölgeler sağlamakta ve yüksek elektronik iletkenlik sunmaktadır (Li vd., 2020). Bunun yanı sıra, MBene'lerin atomik ölçekte ince tabakalı yapıları, yüksek özgül yüzey alanlarının temel kaynağını oluşturmaktadır. Ayrıca, bu malzemeler yüksek ısı iletkenlikleri ve oksidasyona karşı gösterdikleri direnç ile de dikkat çekmektedir (Miao vd., 2023).

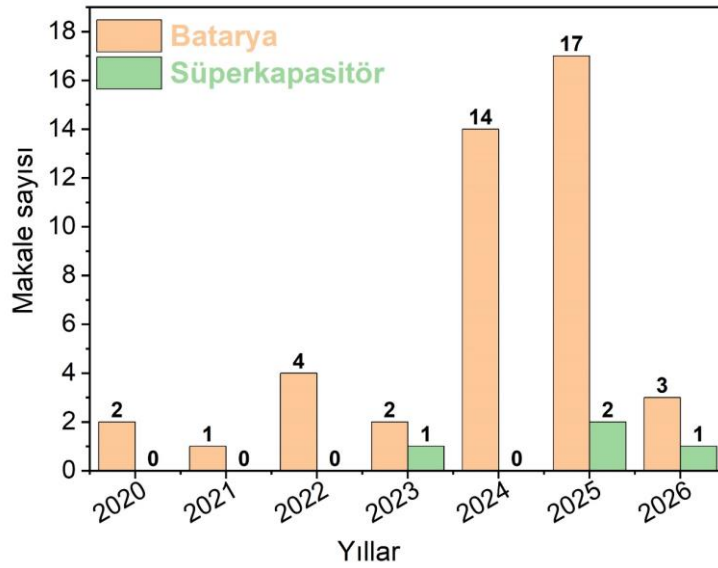
## 1.1. Araştırmanın Amacı

Küresel enerji talebi artmaya devam ederken, günümüzde hâlen en yaygın kullanılan enerji kaynağı olan fosil yakıtların (özellikle petrolün) tükenme sürecine girmesi, yenilenebilir enerji kaynaklarına olan ilgiyi önemli ölçüde artırmıştır. Ancak rüzgâr ve güneş enerjisi gibi yenilenebilir kaynaklar, doğaları gereği süreksiz üretim karakteri sergilediklerinden, bu enerjinin etkin ve güvenilir biçimde depolanması kritik bir gereklilik hâline gelmiştir. Enerjinin üretildiği anda depolanarak ihtiyaç duyulan zamanlarda kullanılabilmesi, sürdürülebilir enerji sistemlerinin temel unsurlarından biridir. Bu bağlamda, süperkapasitörler, yüksek güç yoğunlukları, hızlı şarj–deşarj özellikleri ve uzun çevrim ömürleri sayesinde önemli enerji depolama cihazları arasında yer almaktadır. Bununla birlikte, mevcut süperkapasitörlerin enerji yoğunlukları bazı uygulamaların gereksinimlerini karşılamakta yetersiz kalabilmekte ve bu durum, performanslarının daha da geliştirilmesini zorunlu kılmaktadır. Süperkapasitör performansının artırılmasında en belirleyici faktörlerden biri, kullanılan elektrot malzemelerinin yapısal, elektronik ve elektrokimyasal özellikleridir.

Son yıllarda, 2B metal borürler sınıfında yer alan MBene ailesi, yüksek elektriksel iletkenlikleri, zengin aktif yüzeyleri ve yapısal kararlılıkları sayesinde süperkapasitör elektrotları için umut vadeden malzemeler arasında öne çıkmaktadır. Bu çalışmanın temel amacı; öncelikle  $Fe_2AlB_2$  ve  $MoAlB$  fazlarının bu çalışma kapsamında başarıyla sentezlenmesi, ardından bu öncül fazlardan  $A$  elementinin seçici olarak aşındırılmasıyla  $Fe_2Al_{1-x}B_2$  ve  $MoAl_{1-x}B$  MBene elektrotlarının elde edilmesidir. Elde edilen MBene elektrotların spesifik kapasitans, enerji yoğunluğu, güç yoğunluğu ve uzun süreli döngü kararlılığı gibi temel elektrokimyasal performans parametrelerinin gibi temel elektrokimyasal performans parametrelerinin sistematik olarak incelenmesidir.

## 1.2. Araştırmanın Önemi

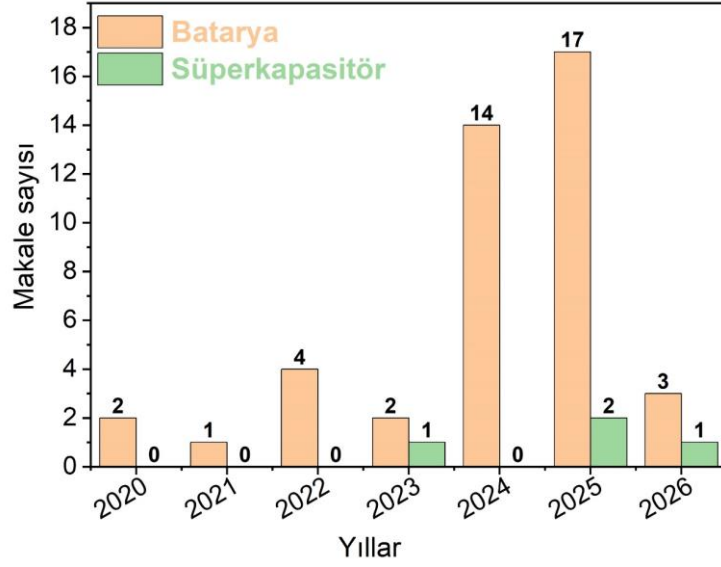
Süperkapasitörler, yüksek güç yoğunluğu, hızlı şarj–deşarj özellikleri ve uzun çevrim ömürleri sayesinde enerji depolama teknolojileri arasında önemli bir konuma sahiptir. Ancak görece düşük enerji yoğunlukları, bu cihazların bazı uygulamalardaki kullanımını sınırlamaktadır. Bu nedenle, enerji yoğunluğunu artırmaya yönelik en etkili yaklaşımlardan biri, elektrot malzemelerinin kapasitansını iyileştirmektir (Yu vd., 2013). Kapasitans ise doğrudan elektrotların özgül yüzey alanı, iletkenliği ve elektrokimyasal olarak aktif bölgeleriyle ilişkilidir. Bu bağlamda, yüksek elektriksel iletkenlikleri ve elverişli elektronik yapılarıyla MBene ailesi, süperkapasitör elektrotları için umut vadeden yeni bir malzeme sınıfı olarak öne çıkmaktadır (Sharma vd., 2022). Bu çalışmada,  $Fe_2AlB_2$  ve  $MoAlB$  MAB fazlarının bu çalışma kapsamında sentezlenmesini takiben, bu öncül fazlardan türetilen  $Fe_2Al_{1-x}B_2$  ve  $MoAl_{1-x}B$  MBene yapıların elde edilmesi ve süperkapasitörlerde elektrot malzemesi olarak elektrokimyasal performanslarının sistematik biçimde incelenmesi amaçlanmaktadır.



**Şekil 1.1.** Süperkapasitör ve batarya uygulamalarında MBene malzemelerini konu alan yayımlanmış araştırmaların sayısı.

*Çalışmanın bilimsel önemi;  $Fe_2Al_{1-x}B_2$  MBene yapısının deneysel olarak ilk kez sentezlenmesi ve  $MoAl_{1-x}B$  MBene yapısının literatürde son derece sınırlı sayıda çalışmada raporlanmış olmasıdır. Ayrıca, MBene malzemelerinin süperkapasitör elektrotu olarak deneysel düzeyde ele alındığı çalışmaların oldukça kısıtlı olması, bu çalışmayı alandaki boşluğu doldurmaya yönelik öncü ve özgün bir araştırma hâline getirmektedir. Nitekim teorik çalışmalar, MBene yapıların metalik iletkenlik sergilediğini ve enerji depolama uygulamaları açısından elverişli dinamik*

kararlılığa sahip olduğunu göstermektedir (Arias-Camacho ve Szwacki, 2023). Bu durum,

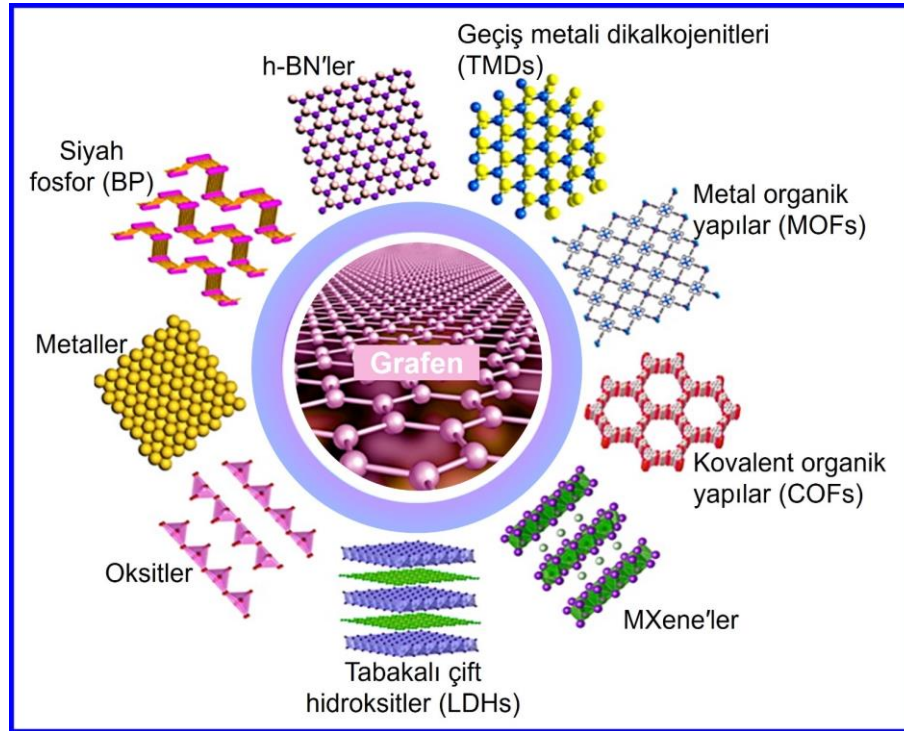


Şekil 1.1’de sunulan ve MBene malzemelerinin süperkapasitör ve batarya uygulamalarına yönelik yayımlanmış çalışmaların sayısını gösteren analizle de desteklenmekte; özellikle deneysel çalışmaların son derece sınırlı olduğu açıkça ortaya konulmaktadır.

## 2. KAVRAMSAL ÇERÇEVE

Günümüzde süperkapasitör elektrotlarında, sahip oldukları farklı avantajlar nedeniyle karbon esaslı malzemeler, metal oksitler ve iletken polimerler yaygın olarak kullanılmaktadır. Bununla birlikte, daha yüksek performans elde edebilmek amacıyla alternatif elektrot malzemelerine yönelik arařtırmalar hız kesmeden devam etmektedir. Bu dođrultuda, son yıllarda kimyasal, fiziksel, mekanik ve elektriksel özellikleri ile öne çıkan 2B malzemelere olan ilgi önemli ölçüde artmıştır (Wyatt vd., 2021).

Grafenin keşfi, çok tabakalı öncül malzemelerin eksfoliasyonu yoluyla yeni 2B malzemelerin elde edilmesinin önünü açmış ve bu alanda önemli bir dönüm noktası oluşturmuştur. Bu gelişmenin ardından, geçiş metali dikalkojenitler (TMD'ler), tabakalı çift hidroksitler (LDH'ler) ve hegzagonal bor nitür (h-BN) gibi birçok 2B malzeme başarıyla sentezlenmiş ve farklı uygulama alanlarında değerlendirilmiştir (Şekil 2.1) (Liu vd., 2018).



**Şekil 2.1.** Süperkapasitör elektrotlarında kullanılan farklı 2B nanomalzeme sınıflarının şematik gösterimi (Liu vd., 2018).

2011 yılında, MAX fazlarından A atomik tabaklarının seçici olarak aşındırılması yoluyla elde edilen geniş bir 2B malzeme ailesi olan MXene'ler keşfedilmiştir. Bu yapılarda M erken geçiş metallerini, A periyodik tablonun IIIA veya IVA gruplarına ait elementleri (genellikle Al, Si veya Ge) ve X ise karbon veya azotu temsil etmektedir. MAX fazlarında genel olarak M-A

bağlarının,  $M-X$  bağlarına kıyasla daha zayıf olduğu bilinmektedir. Bu bağ enerjisi farkı sayesinde,  $A$  tabakasının farklı kimyasal yöntemlerle seçici olarak uzaklaştırılması mümkün olmakta ve  $M_{n+1}AX_n$  formülündeki yapı, yüzey fonksiyonel grupları içeren  $M_{n+1}X_nT_x$  MXene fazına dönüşmektedir. Burada  $T_x$ , aşındırma işlemi sonrasında yüzeyde bulunan  $-O$ ,  $-OH$  ve  $-F$  gibi fonksiyonel grupları ifade etmektedir (Hart vd., 2019).  $n$  değeri 1 ile 3 arasında değişmekte olup, buna bağlı olarak  $M_2XT_x$ ,  $M_3X_2T_x$  ve  $M_4X_3T_x$  gibi farklı MXene yapılar oluşabilmektedir.

MXene'lerin gösterdiği yüksek elektriksel iletkenlik ve kapasitans değerleri, benzer yapısal yaklaşımlarla yeni 2B malzemelerin geliştirilmesine yönelik çalışmaları hızlandırmıştır. Bu kapsamda, karbon veya azot atomlarının bor ile yer değiştirmesiyle elde edilen ve geçiş metali borürlerinden oluşan MBene'ler, son yıllarda dikkat çeken yeni bir 2B malzeme sınıfı olarak ortaya çıkmıştır. Bor atomunun karbon ve azota kıyasla daha az değerlik elektronuna sahip olması, MBene yapılarına özgün elektronik özellikler kazandırmaktadır.

Teorik çalışmalar, 2B bor nano-tabakaların, grafene kıyasla yaklaşık dört kat daha yüksek spesifik kapasitansa sahip olabileceğini göstermiştir. Ayrıca, MAB fazları üzerine yapılan hesaplamalı çalışmalar;  $M$ 'nin bir geçiş metali,  $B$ 'nin bor ve çoğunlukla  $A$ 'nın alüminyum olduğu yapılarda,  $A$  tabakasının seçici olarak aşındırılmasıyla MBene fazlarının elde edilebileceğini ortaya koymuştur. Bu bağlamda,  $M-Al$  bağlarının  $B-B$  ve  $M-B$  bağlarına kıyasla daha zayıf olduğu belirlenmiş ve bu durum MBene sentezinin teorik olarak mümkün olduğunu doğrulamıştır (Guo vd., 2017).

Günümüze kadar sınırlı sayıda MBene bileşiği laboratuvar ortamında başarıyla sentezlenmiş olsa da bu alandaki çalışmalar hâlen oldukça kısıtlıdır ve MBene malzemelerinin potansiyelinden tam anlamıyla yararlanılabilmesi için daha kapsamlı deneysel araştırmalara ihtiyaç duyulmaktadır. Özellikle literatürde raporlanan MBene bileşiklerinin büyük bir kısmı erken geçiş metallerine dayalı olup, Fe gibi geç geçiş metallerinden oluşan MBene yapıların sentezi ve karakterizasyonu henüz yeterince gerçekleştirilmemiştir. Buna ek olarak, MBene malzemelerinin süperkapasitörlerde elektrot olarak kullanıldığı deneysel çalışmaların sayısı son derece sınırlıdır. Bu nedenle, bu çalışmada  $MoAl_{1-x}B$  ve  $Fe_2Al_{1-x}B_2$  tabanlı MBene yapıların süperkapasitör elektrotu olarak incelenmesi hedeflenmektedir. Özellikle Fe esaslı MBene'ler, teorik çalışmaların demirin metalik davranış sergilediğini ve iyi kararlılığa sahip olduğunu göstermesi nedeniyle, enerji depolama uygulamaları açısından umut vadeden adaylar olarak öne çıkmaktadır (Arias-Camacho ve Szwacki, 2023).

## 2.1. MAB Fazlarının Yapısal ve Kimyasal Özellikleri

MAX fazlarının, yenilikçi 2B yapıların üretiminde öncül malzemeler olarak kullanılabileceğinin ortaya konulmasının ardından, bu yapılara benzer kristal kimyasına sahip alternatif fazlara yönelik araştırmalar hız kazanmıştır. Bu kapsamda, karbon ve/veya azot içeren MAX fazlarında X elementinin bor ile değiştirilmesiyle elde edilen MAB fazları, yakın geçmişte gerçekleştirilen teorik ve deneysel çalışmalarla başarıyla doğrulanmıştır (Ade ve Hillebrecht, 2015; Lu vd., 2017; Siriwardane vd., 2020). MAB fazları, MAX fazlarına yapısal olarak benzerlik göstermekle birlikte, daha yüksek yapısal kararlılığa sahip tabakalı ortorombik geçiş metali borürleri olarak tanımlanmaktadır. Bu yapılarda *M* bir geçiş metalini, *A* periyodik tablonun IIIA veya IVA grubu elementlerini ve *B* bor elementini temsil etmektedir. MAB fazlarında yer alan *M* elementleri genellikle Cr, Mo, W, Fe ve Mn gibi geçiş metallere veya bu metallere katı çözeltili hâlindeki borürlerinden (örneğin FeB, CrB ve MnB) oluşmaktadır (Şekil 2.2Hata! Başvuru kaynağı bulunamadı.).

H																					He	
Li	Be																					
Na	Mg																					
K	Ca	Sc	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Ga	Ge	As	Se	Br	Kr					
Rb	Sr	Y	Zr	Nb	Mo	Tc	Ru	Rh	Pd	Ag	Cd	In	Sn	Sb	Te	I	Xe					
Cs	Ba	La	Hf	Ta	W	Re	Os	Ir	Pt	Au	Hg	Tl	Pb	Bi	Po	At	Rn					
Fr	Ra	Ac																				

M • A • B • Tx •

III-B

Cr<sub>2</sub>AIB<sub>2</sub>

Cr<sub>3</sub>AIB<sub>4</sub>

Cr<sub>4</sub>AIB<sub>6</sub>

Al\*

WAIB

MoAIB

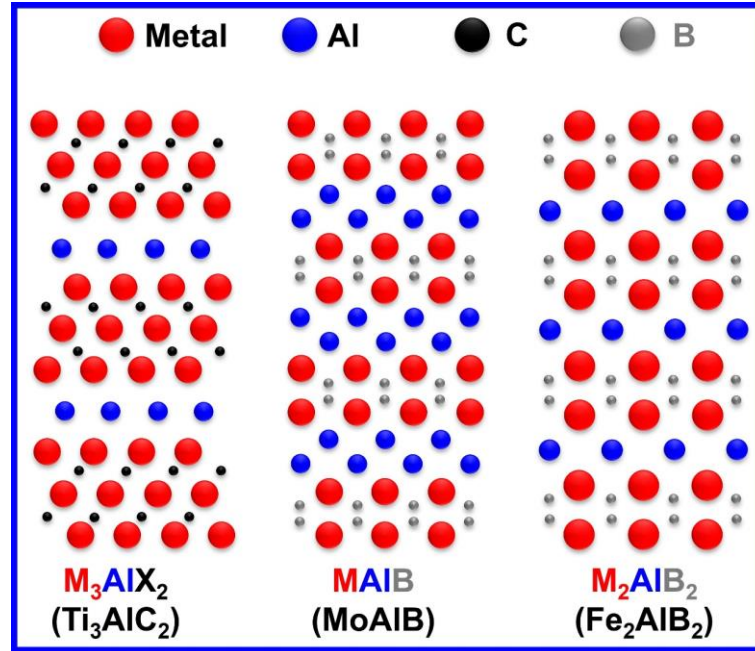
Mn<sub>2</sub>AIB<sub>2</sub>

Fe<sub>2</sub>AIB<sub>2</sub>

Şekil 2.2. MAB fazlarını oluşturan *M*, *A* ve *B* elementlerinin periyodik tabloda konumları ile literatürde yer alan MAB fazlarının şematik gösterimi (Ade ve Hillebrecht, 2015).

MAB fazlarına ilişkin gerçekleştirilen son çalışmalar, ağırlıklı olarak tek kristal büyütme ve kristal yapı tayini (Ade ve Hillebrecht, 2015; Kota vd., 2016; Lu vd., 2017), elektronik özellikler (Chai vd., 2015), mekanik özellikler (Bai vd., 2017) ve oksidasyon direnci (Kota vd., 2017) üzerine yoğunlaşmıştır. Bu çalışmalar, MAB fazlarının yapısal ve fiziksel özelliklerinin anlaşılmasına önemli katkılar sağlamıştır. MAB fazları, yapısal farklılıklarına bağlı olarak iki ana gruba ayrılmaktadır (Şekil 2.3). Birinci grupta,  $n = 1$  olması durumunda  $M_nAB_n$  (örneğin MoAIB ve WAIB) formülüne sahip yapılar bulunmakta olup, bu fazlarda MB tabakaları arasında iki atom kalınlığında Al tabakası yer almaktadır. İkinci grupta ise  $n = 2$  veya 3 olduğunda  $M_{n+1}AB_{2n}$  (örneğin Cr<sub>2</sub>AIB<sub>2</sub>, Cr<sub>3</sub>AIB<sub>4</sub>, Cr<sub>4</sub>AIB<sub>6</sub>, Mn<sub>2</sub>AIB<sub>2</sub> ve Fe<sub>2</sub>AIB<sub>2</sub>) formülüne

sahip yapılar görülmekte ve bu yapılarda MB tabakaları arasında tek atom kalınlığında Al tabakası bulunmaktadır.

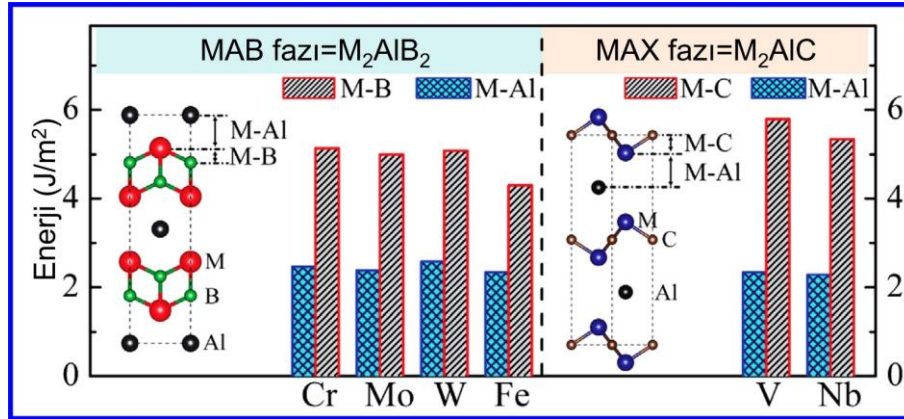


Şekil 2.3.  $Ti_3AlC_2$  MAX fazı ile  $MA1B$  ( $MoAlB$ ) ve  $M_2AlB_2$  ( $Fe_2AlB_2$ ) MAB fazlarının kristal yapılarının şematik gösterimi (Alameda vd., 2018).

MAB fazları, MAX fazlarına benzer sentez yöntemleri kullanılarak üretilebilmektedir. Son yıllarda gerçekleştirilen çalışmalarda, Alameda vd. tarafından  $MoAlB$  (Alameda vd., 2017; Alameda vd., 2018), Zhang vd. tarafından  $Cr_2AlB_2$  (Zhang vd., 2018), Liu vd. tarafından  $Fe_2AlB_2$  (Liu vd., 2018) ve Kota vd. tarafından  $Cr_2AlB_2$  ile  $Cr_3AlB_4$  (Kota vd., 2018) MAB fazlarının başarıyla sentezlendiği rapor edilmiştir. Ayrıca Ade ve Hillebrecht,  $Cr_2AlB_2$ ,  $Cr_3AlB_4$ ,  $Cr_4AlB_6$ ,  $WAlB$ ,  $MoAlB$ ,  $Mn_2AlB_2$  ve  $Fe_2AlB_2$  gibi çeşitli MAB fazlarının sentezini ilk kez kapsamlı biçimde ortaya koymuştur (Ade ve Hillebrecht, 2015). Bu çalışmalarda genellikle elementel (Al, B, Cr, W, Mo, Mn ve Fe) veya alaşım hâlindeki (örneğin FeB, CrB ve MnB) öncül malzemeler belirli stokiyometrik oranlarda karıştırılarak preslenmiş ve ardından argon atmosferinde yaklaşık 1000–1500 °C sıcaklık aralığında yüksek sıcaklık sinterleme işlemine tabi tutulmuştur.

MAB ve MAX fazlarının atomik bağ enerjilerine ilişkin karşılaştırma Şekil 2.4’de sunulmaktadır. Şekilden de görüleceği üzere, MAB fazlarında M–B bağ enerjisinin, M–Al bağ enerjisinden yaklaşık iki kat daha yüksek olduğu anlaşılmaktadır. Bu belirgin bağ enerjisi farkı, geçiş metali borürlerinin (MBene) tıpkı geçiş metali karbürleri, karbonitrürleri ve nitrürleri (MXene) gibi seçici aşındırma yöntemleriyle elde edilebileceğini göstermektedir. Dolayısıyla,

MBene yapılarının da MXene'lere benzer sentez yaklaşımları kullanılarak üretilmesi teorik ve yapısal açıdan mümkün görünmektedir.



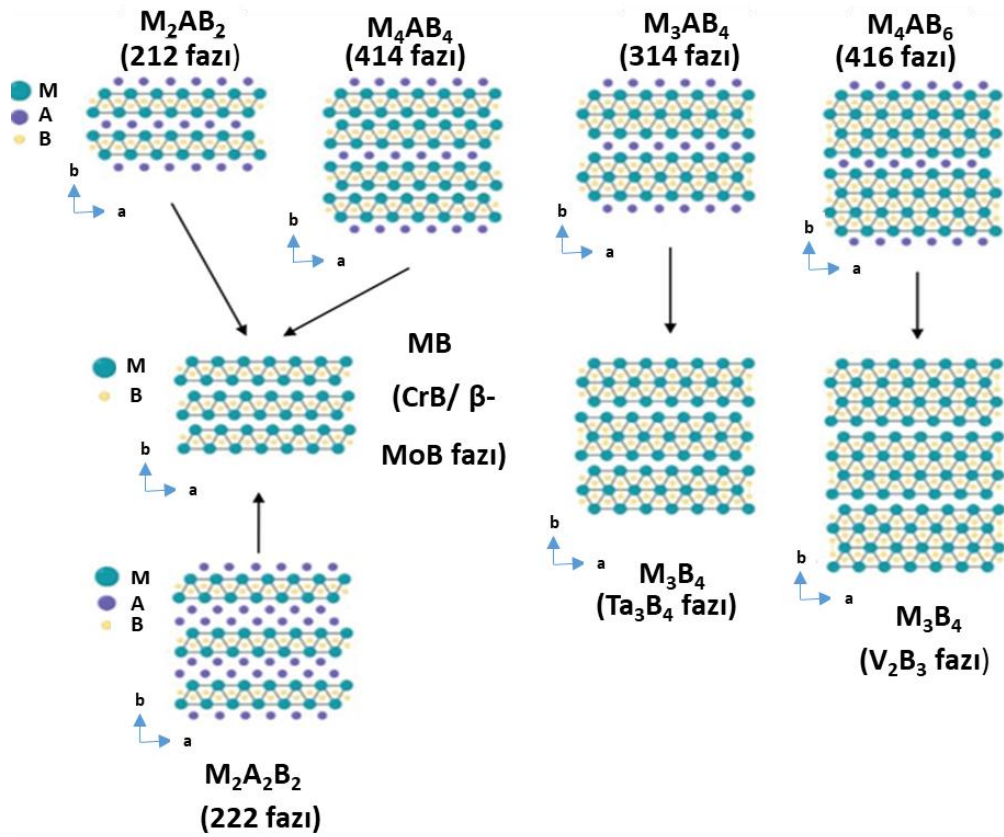
**Şekil 2.4.** M<sub>2</sub>AIB<sub>2</sub> MAB fazları ile M<sub>2</sub>AIC MAX fazlarında bulunan M–B, M–Al ve M–C bağlarının bağ enerjilerinin karşılaştırmalı gösterimi (Guo vd., 2017).

### 2.1.1. Kristal yapı özellikleri

MBene'lerin yapısal özelliklerinin anlaşılması, bu malzemelerin potansiyel uygulamalarının değerlendirilmesi açısından büyük önem taşımaktadır. Bu kapsamda 2015 yılında Ade ve araştırma ekibi, MBene'ler olarak adlandırılan yeni bir 2B malzeme sınıfı ortaya konulmuş olup, bu malzemeler çok yönlü potansiyel uygulamaları nedeniyle bilim camiasında giderek artan bir ilgi görmüştür (Ade ve Hillebrecht., 2015). MBene'ler, tabakalı yapıları bakımından MXene'lere benzemekle birlikte, karbon veya azot atomlarının bor atomlarıyla yer değiştirmesi nedeniyle onlardan belirgin biçimde ayrılmaktadır (Qin vd., 2021). Bununla birlikte, MAB–MBene sistemleri, kimyasal kriterler, tabaka dizilimleri ve genel kristal yapı farklılıkları nedeniyle MAX–MXene fazlarıyla doğrudan bir eşleşme göstermemektedir (Natu vd., 2020). İyi düzenlenmiş üçlü borür bağlanma dizilimlerine sahip MAB fazları, yüksek kararlılık sergilemekte ve MBene sentezinin temel prekürsörleri olarak kabul edilmektedir (Ade ve Hillebrecht, 2015). Bu tür borür tabakalı yapıların öneminin, 1990'lı yılların başından itibaren literatürde vurgulandığı bildirilmektedir (Barsoum., 2000; Hayat vd., 2022).

MAB fazları; M<sub>2</sub>AB<sub>2</sub>, M<sub>4</sub>AB<sub>4</sub>, M<sub>3</sub>AB<sub>4</sub> ve M<sub>4</sub>AB<sub>6</sub> dâhil olmak üzere çeşitli kristal yapı türlerine sahiptir (Şekil 2.5). Bu bileşimlerde M harfi geçiş metalleri, A harfi periyodik tablonun IIIA veya IVA gruplarındaki elementleri temsil etmektedir. MAIB bileşikleri ortorombik kristal sisteminde kristallenmekte olup, MAIB için C<sub>mcm</sub>; M<sub>2</sub>AIB<sub>2</sub> ve M<sub>4</sub>AIB<sub>6</sub> için ise C<sub>mmm</sub> uzay grupları rapor edilmiştir (Ade ve Hillebrecht 2015). İç bağlanma yapıları dikkate alındığında, M–A bağlarının baskın metalik karakter taşıdığı; buna karşılık M–B bağlarının kovalent,

metalik ve iyonik karakterlerin bileşenlerin karmaşık bir birleşimini sergilediği görülmektedir. Bu hibrit bağlanma davranışı, MAX fazlarındaki M–X bağlarına benzerlik göstermektedir (Music ve Schneider 2017). Nanoabakalar, genellikle alüminyumdan oluşan A tabakaları ile geçiş metali–bor (TM–B) tabakalarının ardışık diziliminden meydana gelmekte, böylece değişen kalınlıklara sahip tabakalı yapılar oluşturmaktadır. Bor atomlarının kısa, zikzak benzeri zincirler halinde güçlü kovalent bağlarla birbirine bağlandığı rapor edilirken, MXene’ler bileşiklerinin geçiş metali karbürleri veya nitrürleri şeklinde daha sade bir tabakalı yapı sergilediği bilinmektedir (Ibragimova vd., 2022).

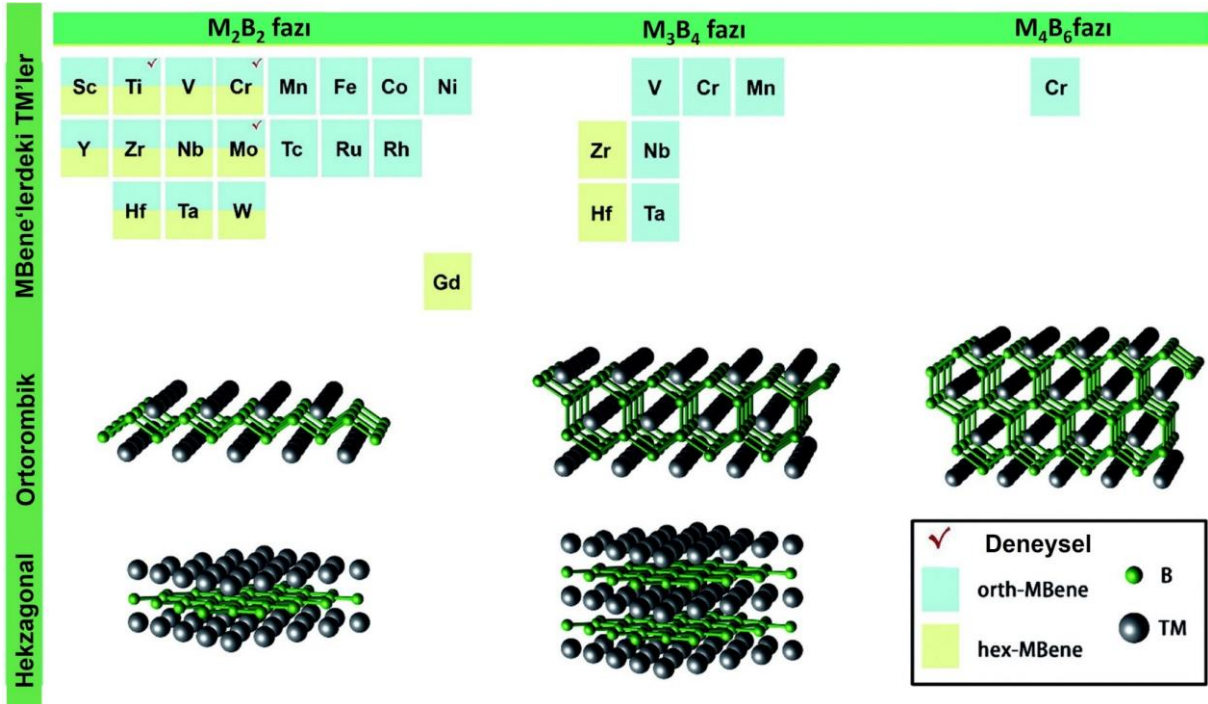


**Şekil 2.5.** MAB fazlarının ( $M_2AB_2$ ,  $M_4AB_4$ ,  $M_3AB_4$  ve  $M_4AB_6$ ) kristal yapıları ile bu fazlardan türeyen ilgili MBene (MB,  $M_2B_3$  ve  $M_3B_4$ ) yapıların atomik düzenine dayalı sınıflandırılması (Jakubczak vd., 2021).

Teorik hesaplamalar hem MXene’ler hem de MBene’ler bileşiklerinin geniş bir kimyasal uzayda yapısal ve elektronik özelliklerinin tanımlanmasında etkili bir yöntem olarak kullanılmaktadır. Bugüne kadar otuzdan fazla benzersiz MXene bileşimi sentezlenmiş ve literatürde ayrıntılı şekilde rapor edilmiştir (Zhang vd., 2024). MXene araştırmalarındaki bu hızlı ilerlemenin, benzer şekilde farklı kimyasal bileşimlere ve gelişmiş özelliklere sahip yeni MBene bileşiklerinin ortaya çıkmasına zemin hazırlaması beklenmektedir (Dahlqvist vd.,

2024). MBene'lerin karakteristik özelliklerinden biri, M–B tabakalarının alüminyumun tekli veya çiftli tabakalarıyla birlikte bulunabilmesidir. Örneğin  $Cr_2AlB_2$ ,  $Mn_2AlB_2$  ve  $Fe_2AlB_2$  tek tabakalı Al içerirken;  $MoAlB$  ve  $WAlB$  bileşiklerinde çift tabakalı Al tabakaları rapor edilmiştir (Zhang vd., 2019). Ayrıca,  $Cr_2AlB_2$  bileşiklerinde  $(Cr_2)_nCr_2Al$  tabakalı yapısının mevcut olduğu; burada M–B tabakalarının iki, üç veya dört geçiş metali atomu içerdiği belirtilmiştir.

Ayrıca,  $(Fe_{1-x}M_x)_2AlB_2$  ( $M = Mn, Co$ ) (Chai vd., 2015) ve  $(Mo_{1-x}M_x)AlB$  ( $M = Cr, W$ ) (Yu ve Lundström, 1995) gibi katkılı sistemler üzerine yapılan deneysel çalışmalar, M konumlarında kararlı kimyasal bağların oluşabildiğini göstermiştir. Bu bulgu, özelliklerin seçici katkılama yoluyla ayarlanması açısından önemli bir avantaj sunmaktadır. Sonuç olarak, MBene'ler ortorombik veya hekzagonal simetriye sahip çeşitli 2B yapılar sergilemekte olup bu yapısal çeşitlilik, MBene'lerin MXene'lerden bağımsız bir malzeme kimliği kazanmalarını sağlamaktadır (Şekil 2.6). Bu tabakalı bileşikler MAB fazlarından yukarıdan aşağıya (top-down) eksfoliasyon stratejileriyle üretilebilmektedir; ancak MBene sentezi hâlen erken aşamalarında ve şu ana kadar yalnızca sınırlı sayıda MAB fazı başarıyla eksfoliye edilebilmiştir.



Şekil 2.6. Literatürde rapor edilen ortorombik (orth-MBene) ve hekzagonal (hex-MBene) MBene fazlarının ( $M_2B_2$ ,  $M_3B_4$  ve  $M_4B_6$ ) atomik yapıları ve geçiş metali (TM) türlerine göre dağılımı (Khan vd., 2024).

Bu bağlamda, son yıllarda gerçekleştirilen çalışmalar MBene sentezine yönelik umut verici gelişmeler ortaya koymaktadır. Özellikle Mo–B, Cr–B ve Fe–B sistemlerinin eksfoliasyona dayalı sentez için uygun adaylar olduğu gösterilmiştir. Ayrıca, MAB bileşiklerine ait oluşum entalpisi analizleri kritik bir eşik değerin ( $H = 0,036$  eV/atom) varlığını ortaya koymuş ve sentezlenmiş fazların büyük çoğunluğunun bu değerin altında olduğu belirlenmiştir (Kitchamsetti vd., 2025).

Khazaei ve çalışma arkadaşları, Sc, Ti, V, Cr, Mo, W, Mn, Tc ve Fe içeren çeşitli MAB fazlarının uygun deneysel koşullar altında sentezlenebileceğini bildirmiştir. Bu çalışmada, MAB bileşiklerinin oluşum enerjilerini incelemiş ve B–B ile M–B bağlarının M–Al ve Al–B bağlarından belirgin şekilde daha güçlü olduğunu ortaya konulmuştur (Khazaei vd., 2019). Bu bağ kuvveti farkı, Al atomlarının seçici olarak uzaklaştırılmasını mümkün kılmakta ve böylece MB,  $M_2B_3$  ve  $M_3B_4$  gibi 2B MBene yapılarının elde edilmesini sağlamaktadır. Bu şekilde elde edilen 2B MBene’ler, MAB fazlarının eksfoliasyonuna bağlı olarak özgün mekanik ve elektronik özellikler sergilemekte ve geniş bir uygulama alanı için umut vadeden adaylar olarak değerlendirilmektedir (Zhou vd., 2020). Nitekim çift Al tabakası içeren MoAlB fazının eksfoliasyonuyla 2B MoB elde edildiği, (Alameda vd.,2018) ayrıca  $Cr_2AlB_2$ ’nin kimyasal eksfoliasyonu yoluyla 2B CrB sentezlendiği rapor edilmiştir (Zhang vd., 2019).

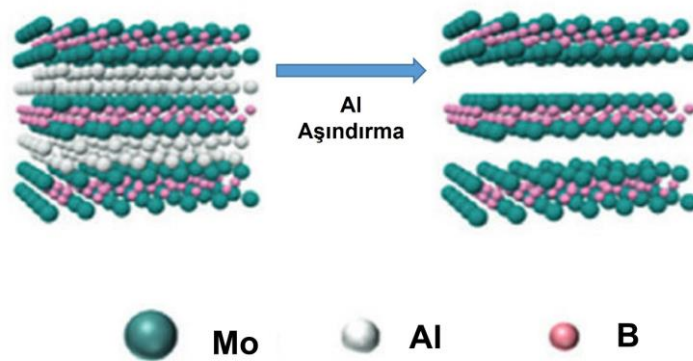
MBene’ler, son yıllarda malzeme bilimi ve enerji teknolojileri alanlarında artan ilgi gören, 2B borürlerin yeni ortaya çıkan bir sınıfını oluşturmaktadır (Wang vd., 2019; Zhang vd., 2022). Bu ilginin temel nedeni, MBene’lerin iyi bilinen MXene ailesiyle sergilediği yapısal ve kimyasal benzerliktir. İlk raporlanan MBene örnekleri arasında  $Mo_2B_2$ ,  $Cr_2B_2$ ,  $Fe_2B_2$  ve  $W_2B_2$  yer almakta olup, bu bileşiklerin tamamı genel  $M_2B_2$  formülüne sahip, sandviç benzeri tabakalı dizilim gösteren ve rombohedral kristal yapıyı paylaşan yapılardır (Alameda vd., 2018; Guo vd., 2017). Söz konusu bileşikler, MAB fazlarının öncü olarak kullanılmasıyla elde edilen ilk MBene örneklerini temsil etmekte ve bu yönüyle MAB fazları, MBene ailesinin gelişiminde temel yapı taşları olarak kabul edilmektedir.

Araştırmaların ilerlemesiyle birlikte  $M_3B_4$  ve  $M_4B_6$  gibi farklı stokiyometrilere sahip ek MBene türevlerinin de rapor edildiği görülmektedir. Bununla birlikte, bu yapıların kristal özellikleri ve fiziksel davranışlarına ilişkin kapsamlı ve sistematik çalışmalar hâlen sınırlıdır. Bu durum, MBene’lerin temel özelliklerinin anlaşılması ve sınıflandırma kriterlerinin netleştirilmesi için daha fazla deneysel ve yapısal çalışmaya ihtiyaç duyulduğunu göstermektedir (Zhang vd., 2018).

Bu bağlamda, MXene örneğinde olduğu gibi, MBene elde edilebilmesi için MAB olarak adlandırılan üç bileşenli öncül fazlarda belirgin bir tabakalı düzenin bulunmasının kritik olduğunu ortaya koymuştur. Bu bağlamda, 2015 yılında Ade ve Hillebrecht tarafından  $Cr_2AlB_2$ ,  $Cr_3AlB_4$ ,  $Cr_4AlB_6$ ,  $MoAlB$ ,  $Fe_2AlB_2$ ,  $Mn_2AlB_2$  ve  $WAlB$  gibi geniş bir tabakalı üç bileşenli borür ailesini kapsamlı biçimde incelemiş, bu bileşiklerin yapı ve kimyasal bileşim açısından MAX fazlarına büyük ölçüde benzediğini gösterilmiştir. Bu benzerlik nedeniyle söz konusu malzemeler literatürde MAB fazları olarak sınıflandırılmıştır.

MAB fazları, özellikle yapısal çeşitlilikleriyle dikkat çekmekte olup, rombohedral olmayan ortorombik MAB fazları (Orth-MAB);  $M_2AB_2$ ,  $M_2A_2B_2$ ,  $M_3A_2B_2$ ,  $M_4AB_4$ ,  $M_3AB_4$  ve  $M_4AB_6$  olmak üzere altı farklı yapısal kategoriye ayrılmaktadır. Bu sınıflandırma, metal borür tabakaları ( $MB_n$ ) ile bunları ayıran A veya  $A_2M$  ara tabakaları arasındaki istifleme düzenindeki farklılıklara dayanmaktadır (Ade ve Hillebrecht, 2015).

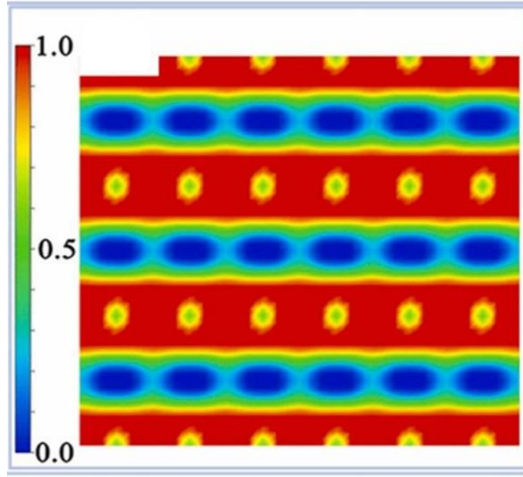
Çoğu MXene bileşiğinin sentezi, MAX fazları içerisindeki bağ kuvvetleri arasındaki belirgin farklılıklara dayanan seçici aşındırma yöntemiyle gerçekleştirilmektedir. MAX fazlarında M–X bağları (genellikle kovalent–iyonik hibrit karakterde) oldukça güçlü ve kararlı iken, M–A bağları nispeten daha zayıf ve metalik karakterdedir. Bu bağ enerjisi farkı sayesinde A tabakaları seçici olarak uzaklaştırılabilmekte, güçlü M–X iskeleti korunarak 2B tabakalar elde edilebilmektedir. Benzer bir bağ hiyerarşisi MAB fazlarında da gözlenmektedir. Bu yapılarda M–B bağları yüksek bağ enerjisine sahip hibrit karakter sergilerken, M–A bağları daha zayıf ve metalik yapıdadır. Bu durum, borür tabakalarının A veya  $A_2M$  ara tabakalarından seçici olarak aşındırılmasını mümkün kılmakta olup (Şekil 2.7), MAB fazlarını MXene benzeri yeni 2B borürlerin (MBene’lerin) elde edilmesi için ideal öncül fazlar hâline getirmektedir (Guo vd., 2017).



**Şekil 2.7.** MAB fazından Al tabakasının seçici olarak aşındırılması yoluyla MBene yapısının elde edilmesini gösteren şematik sentez diyagramı (Zheng vd., 2025).

### 2.1.2. Elektronik özellikleri

MBene'ler, enerji depolama ve kataliz gibi ileri teknolojik uygulamalar için son derece çekici kılan bir dizi özgül özelliğe sahiptir. Yapısal açıdan MBene'ler, geçiş metali atomlarının bor tabakaları arasında konumlandığı, çok tabakalı ve 2B bir mimariye sahiptir. Bu yapı, malzemelere yüksek mekanik dayanım ve belirgin bir yapısal kararlılık kazandırmaktadır. Geçiş metali atomlarının varlığı, MBene'lerin elektronik özelliklerini zenginleştirerek ayarlanabilir bant yapılarının elde edilmesine olanak tanımakta ve böylece hedefe yönelik elektronik işlevlere sahip malzemelerin tasarlanmasını mümkün kılmaktadır. Ayrıca, MBene'lerin tabaka kalınlığı ve yatay boyut gibi geometrik parametrelerinin hassas biçimde kontrol edilebilmesi, yüksek spesifik yüzey alanına (SSA) sahip atomik incelikte yapıların üretilmesine imkân sağlamaktadır. Bu özellik, özellikle yüzey/hacim oranının kritik önem taşıdığı kataliz ve elektrokimyasal enerji depolama uygulamalarında önemli avantajlar sunmaktadır (Kitchamsetti vd., 2025).

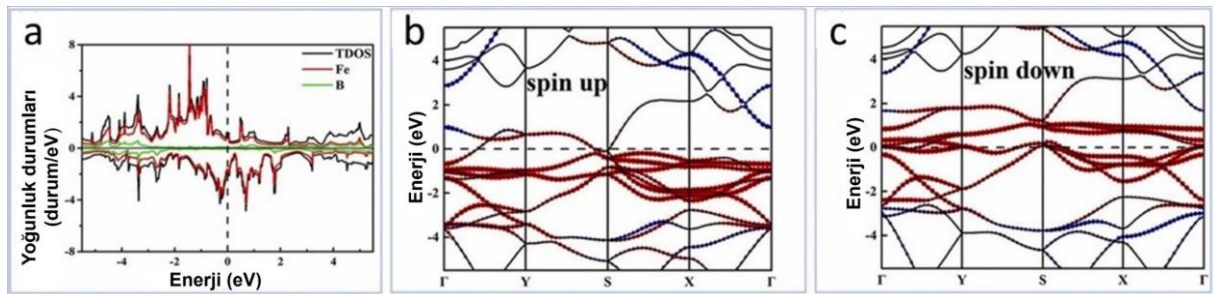


**Şekil 2.8.** Elektron Yerelleştirme Fonksiyonu (ELF) spektroskopisi, FeB tabakasının (001) düzleminde incelenmesi (Liu vd., 2023).

Bu bağlamda, Hu ve çalışma arkadaşları FeB tek tabakasının elektronik yapısını ve bağlanma karakterini incelemiş; söz konusu yapının diğer MBene bileşiklerine benzer bir kristal morfoloji sergilediğini rapor etmiştir. Bağlanma davranışının aydınlatılmasında Elektron Lokalizasyon Fonksiyonu (ELF) hesaplamaları kullanılmış olup, elde edilen sonuçlar **Şekil 2.8**'de sunulmaktadır. ELF değerleri 0 ile 1 arasında değişmekte ve uzaysal dağılımına ilişkin önemli bilgiler sağlamaktadır. Buna göre, 1'e yakın ELF değerleri elektronların güçlü biçimde yerleştiğini (örneğin kovalent bağlar veya yalnız çiftler), yaklaşık 0.5 civarındaki değerler

elektronların delokalize olduğunu ve metalik bağ karakterini, 0'a yakın değerler ise düşük yük yoğunluğuna sahip bölgeleri temsil etmektedir (Liu vd., 2023).

Gerçekleştirilen Bader yük analizi, Fe atomlarından B atomlarına ortalama yaklaşık 0,34 eV düzeyinde bir yük transferi gerçekleştiğini ortaya koymuş; bu durum Fe–B bağlarında belirgin bir iyonik bileşenin bulunduğunu göstermiştir. Yoğunluk Durumları (DOS) ve bant yapısı hesaplamaları (Şekil 2.9), FeB tek tabakasının metalik bir davranış sergilediğini doğrulamaktadır. Özellikle Fermi seviyesi civarında gözlenen yüksek durum yoğunluğu, yüksek hareketliliğe sahip yük taşıyıcıların varlığına işaret etmekte olup, bu özellik FeB tabakasını elektronik uygulamalar ve elektrokimyasal enerji depolama sistemleri açısından avantajlı bir aday hâline getirmektedir (Liu vd., 2023).



Şekil 2.9. (a) FeB tek tabakasına ait yoğunluk durumları (DOS) diyagramı, (b) ve (c) ilgili bant yapısı hesaplamaları (Liu vd., 2023).

Benzer şekilde,  $\text{Mo}_2\text{B}_2$  bileşiğinin de metalik iletkenlik sergilediği literatürde rapor edilmiştir. Fermi seviyesinin sürekli bir enerji bandı içerisinde yer alması ve kısmi yoğunluk durumu (PDOS) analizlerinde Mo 4d orbitallerinin Fermi seviyesi yakınında baskın katkı sağlaması, bu malzemenin yüksek elektriksel iletkenliğe sahip olduğunu göstermektedir. Bu elektronik özellikler,  $\text{Mo}_2\text{B}_2$  tabanlı MBene yapılarını özellikle elektrokatalitik uygulamalar açısından cazip kılmaktadır (Zhang vd., 2021).

### 2.1.3. Mekanik özellikleri

MBene'lerin mekanik özelliklerine ilişkin yapılan çok sayıda çalışma, bu malzemelerin yüksek Young modülü ve belirgin mekanik dayanım sergilediğini ortaya koymaktadır. Gao ve çalışma arkadaşları, borür yapıların kafes dinamik kararlılığını incelemek amacıyla Yoğunluk Fonksiyoneli Pertürbasyon Teorisi (DFPT) kullanmış ve elde edilen fonon spektrumlarının yüksek yapısal kararlılığa işaret ettiğini göstermiştir. Ayrıca, termal kararlılığın değerlendirilmesine yönelik gerçekleştirilen *ab initio* moleküler dinamik (AIMD)

simülasyonları, 350 K sıcaklıkta dahi bağ kopmaları veya atomik yeniden düzenlenmelerin meydana gelmediğini ortaya koymuş; böylece MBene'lerin yüksek termal dayanımı doğrulanmıştır. Bu bulgular, MBene türevi borürleri olağanüstü mekanik özelliklere sahip seramik malzemeler olarak çeşitli bilimsel ve mühendislik uygulamaları için güçlü adaylar hâline getirmektedir. Doğal olarak, metal borür bileşiklerinden türeyen iki boyutlu (2B) nanoyapıların yüksek sertlik ve mukavemet sergilemesi beklenmektedir. Bu 2B borür-türevi nanoyapılar, özellikle polimer kompozitlerin mekanik dayanımını ve yapısal kararlılığını artırmak amacıyla etkili nano-dolgu malzemeleri ve koruyucu nano-kaplamalar olarak kullanılabilir (Guo vd., 2017).

## **2.2. MBene'lerin Sentez Yöntemleri**

2B borürler olarak bilinen MBene'lerin sentezi için literatürde geniş bir yöntem yelpazesi rapor edilmiştir. MBene'ler, benzersiz fiziksel ve kimyasal özellikleri ile enerji depolama ve kataliz gibi ileri teknolojik uygulamalardaki yüksek potansiyelleri nedeniyle son yıllarda yoğun bir araştırma konusu hâline gelmiştir. Bu artan ilgi, farklı sentez stratejilerinin geliştirilmesini ve mevcut yöntemlerin optimize edilmesini teşvik etmiştir. Bu kapsamdan literatürde bildirilen başlıca sentez yaklaşımları arasında mekanik eksfoliasyon (Jiang ve Lu, 2020), kimyasal indirgeme yöntemleri (Cao vd., 2019), bilyalı öğütme (Ma vd., 2017), asidik çözeltiler kullanılarak gerçekleştirilen kimyasal aşındırma (Ramezanzadeh vd., 2025) ve alkali çözeltilerle kimyasal aşındırma yer almaktadır. Bunlara ek olarak, MBene sentezine yönelik farklı modifikasyonlar ve hibrit yaklaşımlar da önceki çalışmalarda rapor edilmiştir (Sharma vd., 2022). Bu çeşitlilik, MBene üretim süreçlerinin hâlen gelişim aşamasında olduğunu ve optimize edilmiş, kontrollü sentez yöntemlerine duyulan ihtiyacın devam ettiğini göstermektedir.

### **2.2.1. Asidik çözeltilerde seçici kimyasal aşındırma**

Asidik çözeltilerle aşındırma yöntemi, 3B MAB fazlarından türetilen ve 2B borürler olarak tanımlanan MBene'lerin sentezinde kullanılan en önemli kimyasal aşındırma yaklaşımlarından biridir. Bu yöntem, MAB yapısında yer alan A tabakasının (çoğunlukla Al) seçici olarak uzaklaştırılmasına dayanmakta ve güçlü M–B bağlarıyla bir arada tutulan borür tabakalarının serbest bırakılmasını sağlamaktadır. M–B bağlarının belirgin kovalent karakteri, aşındırma işlemi sonrasında elde edilen 2B yapının yapısal bütünlüğünü korumasına olanak tanımaktadır (Jakubczak vd., 2023). Bu yaklaşım, MAX fazlarından MXene sentezinde kullanılan kimyasal

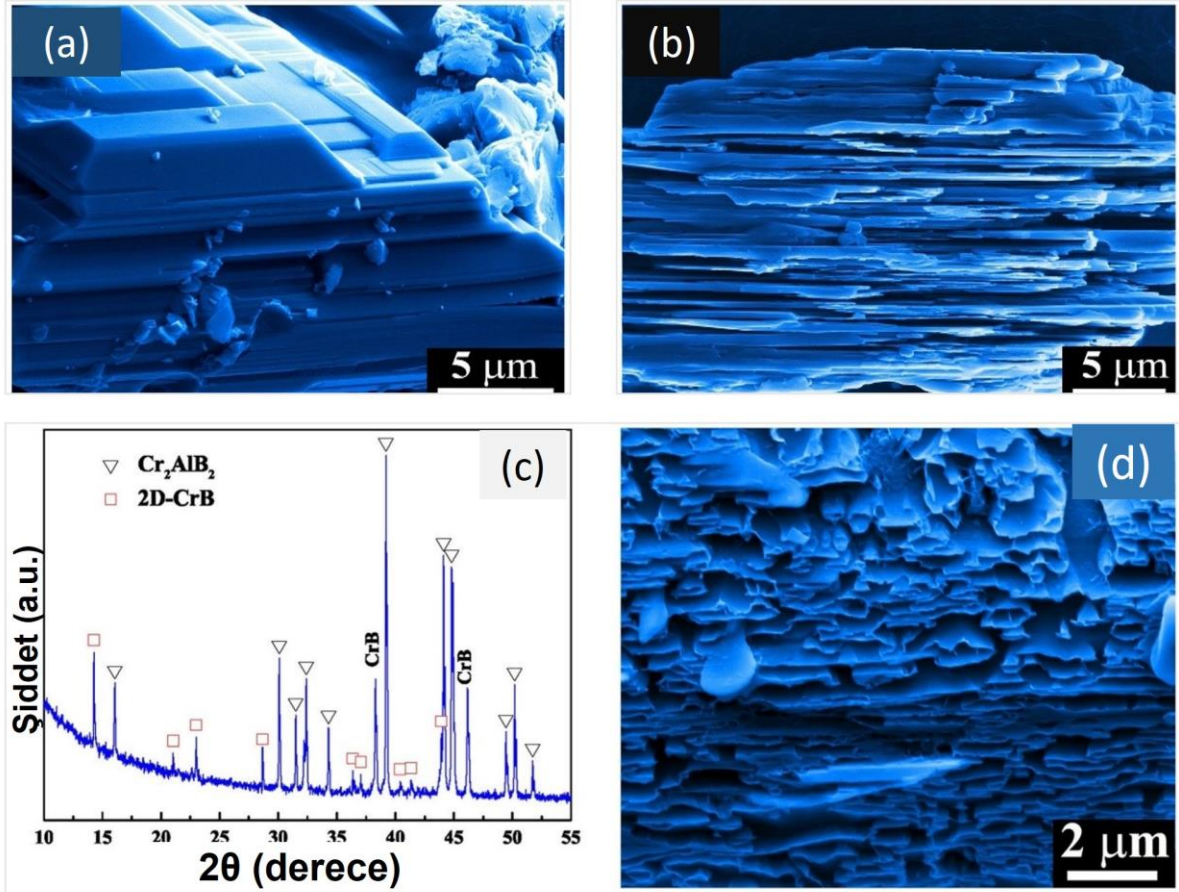
prensiplerle kavramsal açıdan benzerlik göstermektedir. Bununla birlikte, borür sistemlerinde bağ karakterinin karbür ve nitrürlere kıyasla daha karmaşık ve farklı olması nedeniyle, aşındırma koşullarının ve kullanılan kimyasal ortamın özel olarak uyarlanması gerekmektedir (Lim vd., 2022).

Kimyasal aşındırma mekanizması temelde, geçiş metali (M) ile A elementi arasındaki nispeten zayıf bağların seçici olarak kırılmasına, buna karşılık güçlü metal–bor (M–B) bağlarının korunmasına dayanmaktadır. Belirgin kovalent karaktere sahip M–B bağları, aşındırma koşulları altında bozunmaya karşı yüksek direnç göstermekte ve böylece 2B borür tabakalarının yapısal bütünlüğünün korunmasını mümkün kılmaktadır. Bu süreçte çeşitli kimyasal çözeltiler kullanılmakta olup, en yaygın örnekler arasında hidroflorik asit (HF) ve ortamda florür iyonu sağlayan LiF/HCl karışımı yer almaktadır. Flor içeren bu çözeltiler, MAB yapısında bulunan Al tabakasının çözünerek seçici biçimde uzaklaştırılmasını sağlamaktadır. Zhou ve çalışma arkadaşları, %40 derişimde HF kullanarak bir MAB fazını kimyasal aşındırmaya tabi tutmuş ve MBene yapısının elde edildiğini rapor etmiştir. Oda sıcaklığında yaklaşık 210 dakika süren reaksiyon sonrasında gerçekleştirilen XRD analizleri, MAB fazına ait karakteristik piklerin belirgin şekilde azalmasıyla aşındırma işleminin başarılı olduğunu göstermiştir. Ayrıca, TBAOH ile uygulanan son işlem basamağının, süreç sırasında oluşan AlF, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ve Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> gibi safsızlıkların önemli ölçüde giderilmesine katkı sağladığı belirlenmiştir. Bununla birlikte, literatürde flor içeren çözeltilerin MBene sentezi için her zaman uygun olmadığı da vurgulanmaktadır. Florür iyonlarının, bazı koşullarda bor çözünmesini hızlandırarak tabakalı yapının bozulmasına ve yapısal çöküşe yol açabildiği bildirilmiştir (Zhou vd., 2021). Bu durum, alternatif ve daha kontrollü aşındırma yaklaşımlarına yönelik araştırmaları teşvik etmiştir.

Bu doğrultuda, yakın dönem çalışmalarda, alüminyum içeren MAB fazlarının florür içermeyen çözeltiler kullanılarak da seçici biçimde oyulabileceği gösterilmiş; özellikle hidroklorik asit (HCl) ile gerçekleştirilen aşındırma işlemi dikkat çekmiştir. HCl kullanımı, HF'ye kıyasla daha güvenli ve uygulaması daha basit olması nedeniyle önemli avantajlar sunmaktadır. Ayrıca, flor içeren çözeltilerle karşılaştırıldığında, HCl ile gerçekleştirilen aşındırma işlemi farklı yüzey kimyalarına sahip 2B yapılar elde edilmesine olanak tanımaktadır. Bu yöntemle sentezlenen MBene'lerin yüzeyleri genellikle –F gruplarından yoksun olup, bunun yerine daha yüksek oranda –Cl ve –OH fonksiyonel grupları içermektedir. Söz konusu yüzey farklılıkları, malzemenin yüzey özelliklerini ve özellikle elektrokimyasal performansını doğrudan etkilemektedir. Bunun yanı sıra, florür iyonlarının bulunmaması, M–B bağlarının aşırı

aşınmasını engelleyerek bazı sistemlerde daha seçici bir oyma süreci sağlamakta ve kristal yapının düzenliliğinin korunmasına katkıda bulunmaktadır.

Nitekim Zhang ve çalışma arkadaşları,  $\text{Cr}_2\text{AlB}_2$  yapısını yalnızca HCl kullanarak kimyasal aşındırma yoluyla oyup ilk MBene bileşimini başarıyla sentezlemiştir. Reaksiyon, oda sıcaklığında yaklaşık 6 saat gerçekleştirilmiş ve elde edilen ürünün tabakalı bir MBene yapısına sahip olduğu XRD sonuçlarıyla doğrulanmıştır (Şekil 2.10(c)).



**Şekil 2.10.**  $\text{Cr}_2\text{AlB}_2$  MAB fazının (a) başlangıç FESEM görüntüsü, (b) HCl ile aşındırma sonrası elde edilen CrB MBene'nin FESEM görüntüsü; (c) ve (d) HCl'de 8 saatlik aşındırma sonrasında CrB MBene'ye ait sırasıyla XRD ve FESEM sonuçları (Zhang vd., 2018)

Uygulamada, MAB fazı tozu genellikle asidik çözeltiliye oda sıcaklığında ilave edilmekte ve homojen yüzey temasının sağlanması amacıyla sürekli olarak karıştırılmaktadır. Reaksiyon süreci boyunca A tabakasının aşamalı biçimde çözünmesiyle birlikte gaz oluşumu gözlenmekte; kullanılan çözeltili türüne bağlı olarak çeşitli yan ürünler meydana gelmektedir. Aşındırma işleminin tamamlanmasının ardından elde edilen ürün de-iyonize su ile defalarca yıkanarak çözeltili pH'nın nötr seviyeye getirilmesi sağlanmaktadır. Bu adım, yeni oluşan 2B

yapının çözünmesini veya yapısal bozulmaya uğramasını önlemek açısından kritik bir öneme sahiptir.

Elde edilen ürünün yapısal bütünlüğü ve yüzey özellikleri, uygulanan aşındırma koşullarına doğrudan bağlıdır. Nitekim yapısal ve spektroskopik analizler, kimyasal aşındırma yöntemiyle elde edilen MBene'lerin 2B tabakalı yapıyı, yüksek elektriksel iletkenliği ve belirgin yüzey reaktivitesini büyük ölçüde koruduğunu ortaya koymaktadır. Bu noktada kullanılan asit türü, yüzeyde oluşan fonksiyonel grupların doğasını belirleyerek malzemenin elektrokimyasal uygulamalardaki performansını doğrudan etkilemektedir. Florür içeren çözeltiler, -F grupları bakımından zengin yüzeyler oluştururken; HCl ile gerçekleştirilen aşındırma işlemi, -Cl ve -O içeren yüzey fonksiyonelliklerinin baskın olmasına yol açmaktadır. Bu farklılıklar, iyon taşınımı, adsorpsiyon kapasitesi ve yapısal kararlılık üzerinde belirleyici bir rol oynamaktadır.

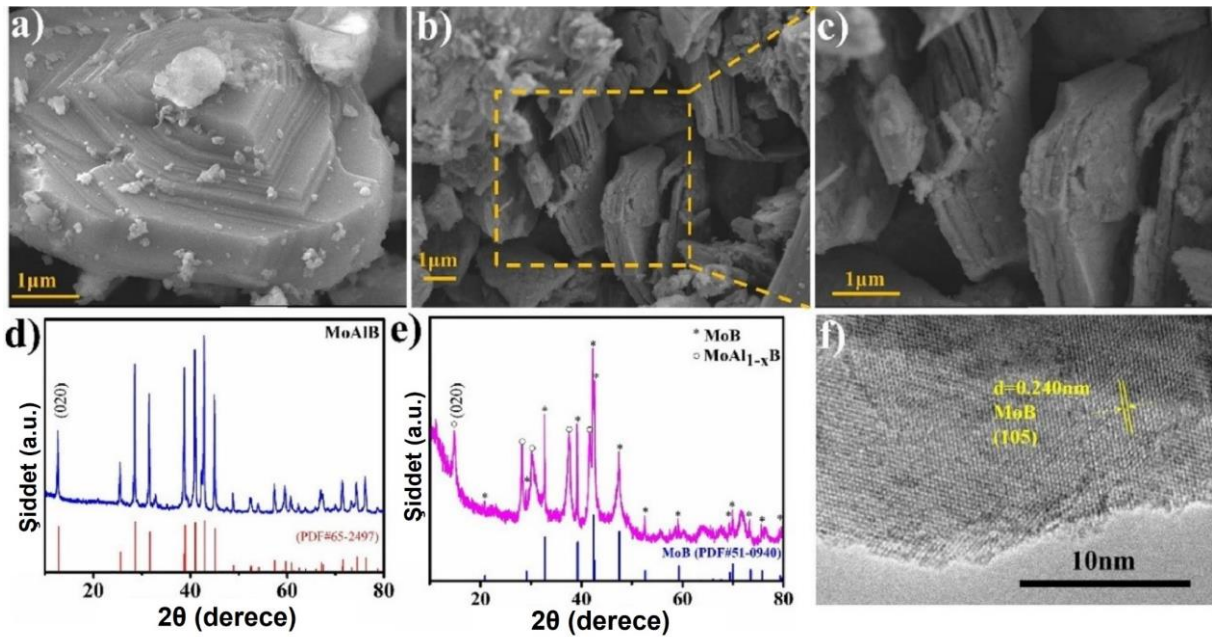
Bu bağlamda, kimyasal aşındırma yöntemi yalnızca yapısal dönüşümü sağlamakla kalmayıp aynı zamanda yüzey kimyasının ayarlanmasına da imkân tanımaktadır. Her ne kadar MBene sentezinde kimyasal aşındırma yaklaşımı hâlen gelişme aşamasında olsa da  $\text{MoAlB}$  ve  $\text{Cr}_2\text{AlB}_2$  gibi farklı borür fazlarının başarıyla aşındırılarak 2B yapılara dönüştürülmesi, bu yöntemin etkinliğini açıkça göstermektedir. Bu ilerleme, daha önce 2B forma dönüştürülmesi mümkün olmayan borür yapıların üretilmesine olanak tanıyarak MBene ailesinin genişletilmesi açısından önemli bir adım sunmaktadır. Böylece, elektrokimyasal cihazlar, kataliz, enerji depolama ve elektronik uygulamalar için ayarlanabilir işlevselliğe sahip yeni malzemelerin geliştirilmesinin önü açılmaktadır (Ramezanzadeh vd., 2025).

### **2.2.2. Alkali çözeltilerde seçici kimyasal aşındırma**

Hidrotermal ve solvotermal aşındırma teknikleri, farklı uygulama gereksinimlerine yönelik olarak tasarlanmış MBene bileşiklerinin sentezinde umut vadeden yöntemler arasında yer almaktadır. Bu yaklaşımlar, bor içeren metalik öncüllerin yüksek sıcaklık ve basınç altında gerçekleşen kimyasal reaksiyonlarına dayanmaktadır. Hidrotermal süreçler sulu ortamlarda yürütülürken, solvotermal süreçler organik çözücüler veya erimiş tuz ortamları kullanılarak gerçekleştirilmektedir. Bu yöntemler, parçacık morfolojisi ve boyutunun hassas biçimde kontrol edilmesine olanak tanıyarak, kristal yapısı kararlı ve iyileştirilmiş özelliklere sahip MBene malzemelerinin elde edilmesini mümkün kılmaktadır. Geçiş metali borürleri ve bor karbürlerinin bu yöntemlerle sentezine ilişkin gerçekleştirilen çalışmalar, enerji depolama ve kataliz gibi alanlarda umut verici sonuçlar ortaya koymuştur. Ayrıca, söz konusu teknikler

nispeten düşük maliyetli olmaları, endüstriyel ölçeklenebilirliğe uygunluk göstermeleri ve MBene bileşiklerinin yapısal ile yüzey özelliklerinin hedeflenen performans kriterlerine göre ayarlanabilmesine imkân tanmaları bakımından da önem taşımaktadır (Kitchamsetti vd., 2025).

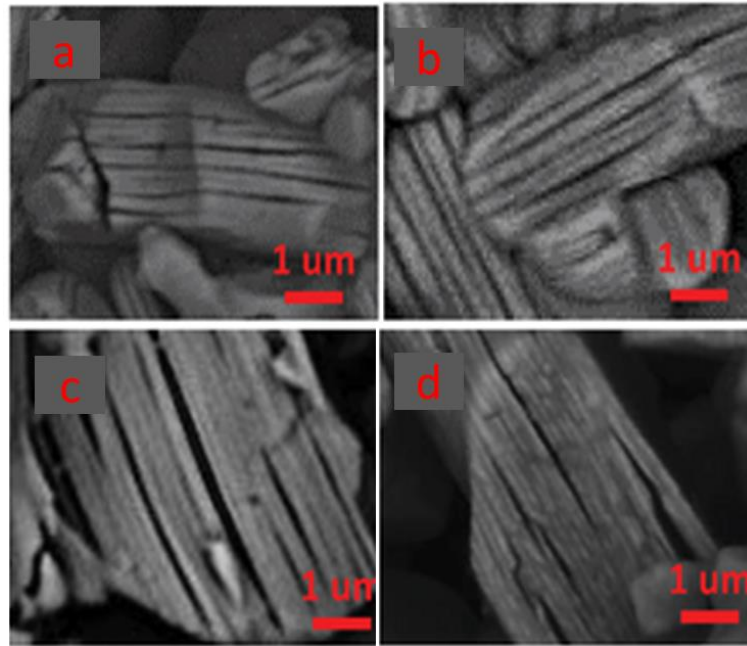
Bu genel çerçeve içerisinde, hidrotermal aşındırma yaklaşımının MAB fazlarından MBene elde edilmesinde etkin biçimde kullanılabildiği çeşitli çalışmalarla gösterilmiştir. Xiong ve çalışma arkadaşları, MoAlB bileşiğinin yoğun bazik bir ortamda reaksiyona tutularak alüminyumun etkin biçimde uzaklaştırılması ve ilgili MBene türevinin oluşumu için kritik bir adım olduğunu rapor etmiştir. Çalışmalarında, 1 g MoAlB tozu %25 (ağırlıkça) NaOH içeren sulu çözeltiye eklenmiş ve 100 mL hacimli bir basınç kabına aktarılmıştır. Reaksiyon, 150 °C’de 24 saat hidrotermal koşullar altında gerçekleştirilmiş olup, bu şartların Al tabakasının ayrışma sürecini başlatmak için yeterli olduğu belirtilmiştir. İşlem sonrasında elde edilen katı ürün PVDF membranlar kullanılarak süzölmüş; ardından üç kez 1 M NaOH çözeltisi ve beş kez de deiyonize su ile yıkanmıştır. Son aşamada, örnek 80 °C’de vakum altında 10 saat boyunca kurutularak, başlangıç malzemesine kıyasla belirgin yapısal gelişmeler sergileyen ve kararlı bir MBene formu elde edilmiştir (Xiong vd., 2022).



**Şekil 2.11.** (a) MoAlB MAB fazının FESEM görüntüsü, (b,c) MoB MBene’nin farklı büyütme ölçeklerinde FESEM görüntüleri; (d,e) sırasıyla MoAlB ve MoB MBene’ye ait XRD desenleri ve (f) MoB MBene’nin HR-TEM görüntüsü (Xiong vd., 2022).

Bazik aşındırma işleminin ardından elde edilen MoB yapısı, MXene benzeri 2B malzemelerde sıklıkla gözlenen “akordiyon” benzeri tipik bir tabakalı morfoloji sergilemiştir (Şekil 2.11(a–

c)). XRD analizleri, aşındırılmış örnekte (020) düzlemine karşılık gelen yansıma tepesinin belirgin biçimde daha yüksek açılara kayarak  $14,9^\circ$ 'de ortaya çıktığını göstermiştir (**Şekil 2.11(e)**). Bu değer, MoAlB başlangıç malzemesinde  $12,6^\circ$ 'de gözlenen tepeyle (**Şekil 2.11(d)**) karşılaştırıldığında anlamlı bir faz dönüşümüne işaret etmekte olup, MAB fazından 2B MBene yapısına geçişin önemli bir göstergesi olarak değerlendirilmektedir. Buna ek olarak, yüksek çözünürlüklü geçirimli elektron mikroskobu (HR-TEM) görüntüleri, MoB yapısında 0.24 nm örgü aralığına sahip ve (105) düzlemine karşılık gelen yüksek derecede kristalizasyonun mevcut olduğunu ortaya koyarak, söz konusu dönüşümün başarıyla gerçekleştiğini doğrulamaktadır (**Şekil 2.11 (f)**) (Xiong vd., 2022). Bu bulgular, bazik aşındırma yönteminin yalnızca Al tabakasının uzaklaştırılmasını sağlamakla kalmayıp aynı zamanda iyi tanımlanmış kristal yapıya sahip 2B borür tabakalarının elde edilmesine olanak tanıdığını göstermektedir. Bu doğrultuda, aşındırma koşullarının özellikle sıcaklık gibi parametreler aracılığıyla kontrol edilmesi, elde edilen ürünün yapısal özellikleri üzerinde belirleyici bir rol oynamaktadır.



**Şekil 2.12.** 0,25 M NaOH çözeltisinde 6 saat boyunca bazik aşındırmaya tabi tutulan MoAlB örneklerine ait FESEM görüntüleri; (a) oda sıcaklığı, (b)  $110^\circ\text{C}$ , (c)  $170^\circ\text{C}$  ve (d)  $190^\circ\text{C}$  (Wei vd., 2024).

Nitekim Wei ve çalışma arkadaşları, farklı sıcaklıklarda gerçekleştirilen bazik aşındırma işlemiyle MBene–MoB sentezinde başarılı sonuçlar elde etmişlerdir. Çalışmada, 500 mesh boyutunda 200 mg MoAlB tozu, %1 (ağırlıkça) NaOH içeren (0,25 M) 50 mL sulu çözeltiye ilave edilmiş ve karışım 200 mL hacimli, hermetik olarak kapatılmış bir basınç kabına aktarılmıştır. Numuneler, kontrollü sıcaklık koşulları altında 6 saat işleme tabi tutulmuş ve

uygulanan sıcaklığa bağılı olarak alüminyumun farklı derecelerde uzaklaştırılması sağlanmıştır. Bu süreç sonucunda, sırasıyla  $\text{MoAl}_{0,8}\text{B}$  (oda sıcaklığı),  $\text{MoAl}_{0,67}\text{B}$  (110 °C),  $\text{MoAl}_{0,5}\text{B}$  (170 °C) ve  $\text{MoAl}_{0,2}\text{B}$  (190 °C) olarak adlandırılan çok tabakalı ürünler elde edilmiştir. Tüm numunelere ait alan emisyonlu taramalı elektron mikroskobu (FESEM) görüntüleri, belirgin tabakalı bir morfolojinin oluştuğunu ortaya koymakta olup, bu sonuçlar **Şekil 2.12**'de sunulmaktadır (Wei vd., 2024).

### 2.2.3. Mekanik eksfoliasyon

Mekanik eksfoliasyon, 2B MBene tabakalarının bulk öncül malzemelerden ayrılmasında yaygın olarak kullanılan yöntemlerden biridir. Bu teknikte uygulanan mekanik kuvvetler, tabakalar arasındaki zayıf etkileşimlerin aşılmasını sağlayarak tek tabakalı veya az tabakalı yapıların elde edilmesine olanak tanımaktadır (Huang vd., 2020). Literatürde sıklıkla “bant yöntemi” olarak adlandırılan bu yaklaşım, büyük boyutlu tabakaların yapışkan bant yardımıyla manuel olarak soyulmasına dayanmaktadır. İşlem sırasında uygulanan basınç, sıcaklık ve kullanılan yapışkan türü gibi parametrelerin optimize edilmesi, eksfoliasyon verimliliğini ve elde edilen tabakaların bütünlüğünü önemli ölçüde artırabilmektedir. Bununla birlikte, mekanik eksfoliasyon yöntemi genellikle yüksek kristal kalitesine sahip, kusur oranı düşük 2B tabakaların elde edilmesine imkân tanınmasına rağmen, üretim verimi ve ölçeklenebilirlik açısından sınırlamalar içermektedir. Bu nedenle, bu yöntem çoğunlukla temel yapısal incelemeler ve model sistemlerin elde edilmesi amacıyla tercih edilmektedir.

Bu bağlamda, Gao ve çalışma arkadaşları kontrollü mekanik eksfoliasyon yöntemi kullanarak  $\text{Mn}_2\text{B}_2$  tabakalarını  $\text{Mn}_2\text{AlB}_2$  kütleli yapısından başarılı bir şekilde ayırmış ve 2B MBene yapıların elde edilebileceğini göstermiştir (Gao vd., 2019). Eksfoliasyon süreci, atomik düzeyde tabaka ayrılma mekanizmasını açıklamaya yönelik gerilme simülasyonlarıyla desteklenmiştir. Gerilme–gerinim eğrileri ve Elektron Lokalizasyon Fonksiyonu (ELF) kontur haritaları, %1–30 aralığında uygulanan çekme gerilmeleri altında Al atomları çevresindeki B–Mn bağlarının büyük ölçüde kararlılığını koruduğunu; buna karşılık M–Al etkileşimlerinin zayıflamasıyla tabaka ayrılmasının belirgin biçimde kolaylaştığını ortaya koymaktadır. Bu sonuçlar, mekanik eksfoliasyon sürecinde tabaka ayrılmasının temel olarak zayıf M–A etkileşimlerinin kırılmasıyla gerçekleştiğini ve güçlü M–B bağlarının yapısal bütünlüğü koruduğunu açıkça göstermektedir.

#### 2.2.4. Kimyasal indirgeme

Kimyasal indirgeme yöntemi, ayarlanabilir yapısal ve fonksiyonel özelliklere sahip borür bileşiklerinin sentezinde en basit ve en esnek yaklaşımlardan biri olarak kabul edilmektedir (Sharma vd., 2022). Bu teknikte metal tuzları, borohidrit esaslı güçlü indirgeme ajanları kullanılarak indirgenmekte; uygun metal öncüllerinin, bor kaynaklarının ve reaksiyon koşullarının seçilmesiyle elde edilen ürünlerin kristal yapısı ve fonksiyonel özellikleri hassas biçimde kontrol edilebilmektedir. Zaman içerisinde bu yaklaşım, 2B borürlerin üretiminde çok yönlü ve etkili bir yöntem olarak öne çıkmıştır. Tipik bir kimyasal indirgeme yönteminde metal öncüller, bor kaynakları ile  $\text{LiBH}_4$  veya  $\text{NaBH}_4$  gibi indirgeme ajanları kullanılarak kontrollü kimyasal ve/veya termal koşullar altında reaksiyona sokulmaktadır. Bu süreç, metal–bor (M–B) bağlarının oluşumunu kolaylaştırmakta ve elde edilen malzemenin yapısal özellikleri ile kimyasal bileşiminin ince ayarlanmasına olanak tanımaktadır. Bu yönüyle kimyasal indirgeme yöntemi, özellikle bileşim ve morfoloji kontrolünün kritik olduğu uygulamalar için önemli avantajlar sunmaktadır.

Bu bağlamda, literatürde yer alan çok sayıda çalışma, kimyasal indirgeme yönteminin MBene sentezinde yüksek verimlilik sunduğunu ortaya koymaktadır. Örneğin Chu ve çalışma arkadaşları, elektrolitik sistemlerde kullanılmak üzere geçiş metali tabanlı 2B borür yapıların sentezi amacıyla sıvı faz indirgeme yöntemini başarıyla uygulamıştır. Metal öncüller ile borohidrit tuzları arasında gerçekleşen kendiliğinden ve ekzotermik reaksiyon sonucunda koyu renkli katı çökeltiler oluşmuş; bu ürünler yıkanıp kurutulduktan sonra yüksek sıcaklıklarda ısıtılma işlemine tabi tutulmuştur. Isıl işlem sonrasında, başlangıçta amorf yapıda olan nanoyapıların belirgin kristal yapıya sahip MBene fazlarına dönüştüğü rapor edilmiştir (Liu vd., 2019). Bu sonuçlar, kimyasal indirgeme yönteminin yalnızca borür oluşumunu sağlamakla kalmayıp aynı zamanda kristal faz gelişimini de kontrol edebilen etkili bir sentez stratejisi olduğunu göstermektedir.

#### 2.2.5. Bilyalı öğütme

Bilyalı öğütme yöntemi hem MBene'lerin sentezinde hem de eksfoliasyonunda yaygın olarak kullanılan etkili bir tekniktir. Bu yöntem, başlangıç malzemeleri arasında katı hâl reaksiyonlarını tetiklemek amacıyla yüksek mekanik enerji uygulanmasına dayanmaktadır. Öğütme süresi, bilye-toz oranı ve dönüş hızı gibi işlem parametrelerinin dikkatli biçimde kontrol edilmesi, elde edilen ürünlerin parçacık morfolojisini, boyut dağılımını ve kristal

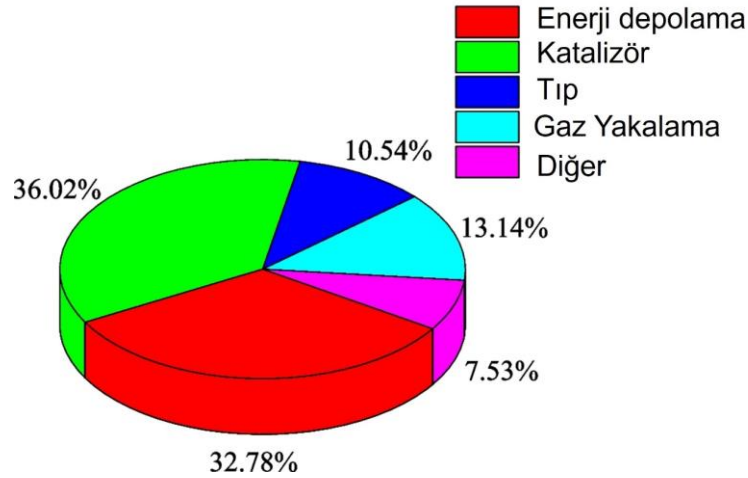
yapısını önemli ölçüde etkilemektedir (Ma vd., 2017). Son dönem çalışmaları, bilyalı öğütmenin 2B borürlerin üretiminde etkili bir yöntem olduğunu doğrulamıştır. Yöntemin basitliği, ölçeklenebilirliği ve görece düşük maliyeti, onu sürdürülebilir ve büyük ölçekli MBene üretimi açısından avantajlı bir yaklaşım hâline getirmektedir. Tipik bir uygulamada, metal ve bor tozları stokiyometrik oranlarda karıştırılmakta ve yüksek enerjili mekanik öğütmeye tabi tutulmaktadır. Öğütme sırasında bilyeler ile toz karışımı arasındaki tekrarlanan çarpışmalar, lokal basınç ve sıcaklık artışlarına yol açarak katı hâl reaksiyonlarını teşvik etmekte ve böylece metal borür nanoparçacıklarının oluşumunu sağlamaktadır. Öğütme süresi, uygulanan basınç ve ortam koşulları gibi parametreler, reaksiyon verimliliği üzerinde doğrudan belirleyici rol oynamaktadır (Kitchamsetti vd., 2025). Son dönem çalışmaları, bilyalı öğütmenin 2B borürlerin üretiminde etkili bir yöntem olduğunu doğrulamıştır. Yöntemin basitliği, ölçeklenebilirliği ve görece düşük maliyeti, onu sürdürülebilir ve büyük ölçekli MBene üretimi açısından avantajlı bir yaklaşım hâline getirmektedir. Bununla birlikte, yüksek enerji girdisi nedeniyle kusur oluşumu ve yapı kontrolünün sınırlı olması gibi bazı dezavantajlar da söz konusu olabilmektedir.

Bu bağlamda, Ma ve çalışma arkadaşları, MBene'lerin sentezi ve performans özelliklerinin sistematik olarak incelenmesi amacıyla bilyalı öğütme yöntemini kullanmıştır. Deneyler, kontrollü koşullarda çalışan bir planetar bilyalı değirmen yardımıyla gerçekleştirilmiştir. İşlem sırasında 20:1 bilye-toz oranı, belirli bir dönüş hızı, kontrollü reaksiyon süresi ve değirmen haznesinde vakum ortamı kullanılmıştır. Elde edilen öğütülmüş ürünlerin tane boyutlarının yaklaşık 0.8 µm ile birkaç mikrometre arasında değiştiği belirlenmiş olup, bu boyut aralığının kimyasal indirgeme veya elektrodpozisyon gibi diğer sentez yöntemleriyle elde edilen ürünlerden belirgin şekilde farklı olduğu rapor edilmiştir (Ma vd., 2017). Bu sonuçlar, bilyalı öğütme yönteminin özellikle mikro-ölçekli parçacık üretiminde etkili olduğunu ve farklı sentez tekniklerine kıyasla kendine özgü morfolojik özellikler sunduğunu göstermektedir.

### **2.3. MBene'lerin Uygulamaları**

MBene bileşikleri, kendilerine özgü metalik yapıları sayesinde yüksek elektriksel iletkenliğe sahiptir. Buna ek olarak, açık ve kolay erişilebilir yüzeyleri; karbondioksit, hidrojen ve amonyak gibi gaz moleküllerinin adsorpsiyonu için üstün bir kapasite sunmaktadır. Yüksek spesifik yüzey alanları moleküller ise moleküller adsorpsiyon verimliliğini önemli ölçüde iyileştirmektedir. Bu bağlamda “gaz tutma” terimi, belirli gaz türlerinin MBene yüzeylerinde fiziksel veya kimyasal adsorpsiyon yoluyla tutulmasını ifade etmektedir. Bu özelliklerin

birleşimi, MBene'leri gaz adsorpsiyonu ve depolanması, elektrokataliz ve elektrot malzemeleri gibi çeşitli uygulamalar için ideal adaylar hâline getirmektedir (Şekil 2.13).



Şekil 2.13. MBene'ler üzerine yayımlanan bilimsel çalışmaların uygulama alanlarına göre dağılımını (Ramezanzadeh vd., 2025).

Çalışmalar, MBene'lerin çevresel kirliliğin giderilmesine katkı sağlayan ve toksik bileşiklerin zararsız türlere dönüştürülmesini mümkün kılan elektrokimyasal katalizörler olarak önemini ortaya koymuştur. MBene varlığında gerçekleştirilen başlıca elektrokimyasal reaksiyonlar arasında nitrat indirgeme reaksiyonu ( $\text{NO}_3\text{RR}$ ) (Zhang vd., 2023a), azot indirgeme reaksiyonu (NRR), karbondioksit indirgeme reaksiyonu ( $\text{CO}_2\text{RR}$ ) (Liu vd., 2021), hidrojen oluşum reaksiyonu (HER), oksijen indirgeme reaksiyonu (ORR) ve oksijen oluşum reaksiyonu (OER) (Zhang vd., 2023b) yer almaktadır. MBene yapılarında bulunan aktif durumların bolluğu, yüksek spesifik yüzey alanı ve üstün elektriksel iletkenlik, katalitik süreçler için gerekli olan etkin yük taşınımını sağlamaktadır.

Benzersiz tabakalı yapıları ile üstün elektrokimyasal ve fizikokimyasal özellikleri, MBene'leri elektroliz uygulamaları için uygun adaylar hâline getirmektedir. Nitekim bu malzemelerin, nitrat indirgenmesi yoluyla %96,8 oranında amonyak ( $\text{NH}_3$ ) üretimini mümkün kıldığı gösterilmiştir. Ayrıca, değerli platin gibi ticari hidrojen üretim katalizörlerinin, metalik iletkenlikten yüksek yük transfer kabiliyetine ve aktif merkezlerin bolluğuna kadar uzanan seçkin elektronik yapıları sayesinde 2B MBene katalizörleri ile ikame edilebileceği rapor edilmiştir. Bu özellikler, MBene ağ yapısına tek atomların dâhil edilmesiyle daha da geliştirilebilmektedir (Park vd., 2022).

Yoğunluk fonksiyonel teorisi (DFT) hesaplamaları, yüksek spesifik yüzey alanına ve belirgin yüzey fonksiyonelliğine sahip 2B MBene yapılarının, azotun ( $\text{N}_2$ ) amonyaka ( $\text{NH}_3$ )

indirgenmesinde üstün elektrokatalitik aktivite sergilediğini ortaya koymuştur. Ayrıca, MBene yüzeylerin oksidasyona karşı dayanıklı olması, MXene'lerle karşılaştırıldığında azot indirgeme reaksiyonunda (NRR) uygulamalarında önemli bir avantaj sağlamaktadır.

Karbondioksit gazı, küresel ısınmanın başlıca nedenlerinden biri olup ciddi çevresel ve sağlık sorunlarına yol açmaktadır. Bu bağlamda, MBene'lerin karbondioksiti C<sub>1</sub> hidrokarbon yakıtlarına indirgeme yeteneğine sahip etkili elektrokatalizörler olduğu bildirilmiştir. Reaksiyon ortamında karbon monoksit, metanol, metan, formik asit ve hidroksit türlerinin oluşumu gözlenmiştir. Ayrıca, MBene katalizörleri varlığında gerçekleşen oksijen indirgeme reaksiyonunda (ORR), oksijenin (O<sub>2</sub>) dört elektronlu aktarım yoluyla suya (H<sub>2</sub>O) indirgenmesi mümkün olurken, iki elektronlu aktarım sonucunda hidrojen peroksit (H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>) oluşabilmektedir.

Atmosfer ve atık sular için önemli bir kirletici olan ve fosil yakıtların eksik yanması sonucu oluşan nitrik oksit (NO) açısından ise, termal ve mekanik olarak kararlı ağ yapıları ile yüksek elektriksel iletkenliğe sahip MBene'ler, nitrik oksidin elektrokimyasal indirgenmesi için son derece uygun katalizör adayları olarak değerlendirilmektedir. Teorik çalışmalar, Mn<sub>2</sub>B<sub>2</sub>, Fe<sub>2</sub>B<sub>2</sub> ve Rh<sub>2</sub>B<sub>2</sub> gibi bileşiklerin nitrik oksidin amonyağa indirgenmesinde yüksek performans sergilediğini göstermektedir (Ruan vd., 2023).

MAX fazında karbür veya nitrür tabakaları yerine borun yerleştirilmesi ve bunun sonucunda elektrokimyasal özelliklerin iyileştirilmesi, borun yüksek elektriksel iletkenliği ve 2B yapıda bulunan intrinsik bağ eksiklikleri nedeniyle beklenmektedir. Bu nedenle MBene'ler, anot malzemelerine entegrasyon yoluyla redoks elektrokimyasal reaksiyonların geliştirilmesi ve enerji depolama aygıtlarının performansının artırılması bağlamında yeni nesil malzemeler olarak değerlendirilmektedir.

Birinci prensip hesaplamaları ve yoğunluk fonksiyonel teorisi (DFT) kullanılarak farklı MBene yapılarına ait öngörülen özelliklere göre, bu bileşiklerin yüksek termal ve elektriksel iletkenliğin yanı sıra mekanik kararlılık sergilediği ve enerji depolama alanındaki elektrokimyasal süreçler için uygun adaylar olduğu değerlendirilmektedir (Sharma vd., 2022). Bataryalar ve kapasitörler, üstün yük depolama kapasiteleri nedeniyle MBene'lerin elektrot yapılarına dâhil edilmesini incelemek amacıyla kullanılan başlıca uygulama alanlarıdır.

Örneğin, teorik hesaplamalar Mo<sub>2</sub>B'nin lityum-iyon bataryalarda kullanım açısından Mo<sub>2</sub>C'ye kıyasla daha üstün özelliklere sahip olduğunu göstermiştir. Elektrolit iyonlarının göçüne karşı

düşük enerji bariyeri ve daha yüksek hacimsel kapasite,  $\text{Mo}_2\text{B}$ 'yi elektrot bileşimi için uygun bir aday hâline getirmektedir. Ayrıca,  $\text{V}_2\text{B}_2$ ,  $\text{Cr}_2\text{B}_2$ ,  $\text{Mn}_2\text{B}_2$ ,  $\text{Ti}_2\text{B}_2$ ,  $\text{Zr}_2\text{B}_2$  ve  $\text{Nb}_2\text{B}_2$  gibi  $\text{M}_2\text{B}_2$  tipindeki bazı yeni MBene yapıları incelenmiş ve bunlar tek katmanlı bataryalarda anot yapısına entegre edilmiştir. Bu çalışmalarda, MBene malzemesindeki gözeneklilik ve adsorpsiyon bölgeleri boyunca sodyum ve lityum iyonlarının geçiş yolları hesaplanmıştır (Ramezanzadeh vd., 2025).

Başka bir çalışmada ise  $\text{Mo}_2\text{B}_2$ 'nin, bataryalardaki lityum polisülfid (Li-PS) elektrotlarının dezavantajlarının üstesinden gelme potansiyeline sahip olduğu sonucuna varılmıştır. Bu 2B geçiş metali borürleri, MBene yapılarında sülfür ile bazı geçiş metalleri arasındaki güçlü etkileşim sayesinde; düşük elektriksel iletkenlik ve anot bileşenlerinin kademeli bozunması gibi birincil bataryaların temel sorunlarının giderilmesine katkıda bulunmaktadır (Pu vd., 2025).

Birinci prensipler hesaplamalarına göre, tek katmanlı bir MBene ( $\text{WB}_4$ ) ile bir MXene ( $\text{Ti}_2\text{C}$ ) arasında yapılan depolama kapasitesi karşılaştırması, farklı alkali iyon elektrolit çözeltilerinde  $\text{WB}_4$ 'ün daha yüksek depolama kapasitesi sağladığını göstermektedir (LIB'ler için 708:439 mAh  $\text{g}^{-1}$ , SIB'ler için 472:348 mAh  $\text{g}^{-1}$  ve KIB'ler için 177:141 mAh  $\text{g}^{-1}$ ; sırasıyla MBene ve MXene) (Xiao vd., 2021). İlave araştırmalar, 2B MBene'lerin elverişli elektronik ve mekanik özelliklerini daha da öne çıkarmış, onları yeni nesil elektrotlar için son derece uygun hâle getirmiştir. Genel olarak değerlendirildiğinde, MBene'lerin elverişli elektronik, mekanik ve yüzey özellikleri, onları yüksek performanslı süperkapasitörler ve diğer enerji depolama sistemleri için son derece umut verici malzemeler hâline getirmektedir (Javed vd., 2024).

## 2.4. Süperkapasitörler

### 2.4.1. Süperkapasitörlerin temel çalışma prensibi

Süperkapasitör, bir elektrolit çözeltisi ile elektronik bir iletken arasındaki arayüzeyde oluşan elektriksel çift tabaka içerisinde elektrik enerjisini depolayan bir aygıttır (Miller vd., 2008). Süperkapasitörler; yüksek güç yoğunluğu, uzun çevrimsel kararlılık ve hızlı şarj-deşarj kabiliyeti gibi üstün özellikleriyle enerji depolama cihazları arasında önemli bir yer tutmaktadır. Geleneksel kapasitörlere kıyasla birkaç mertebe daha fazla enerji depolayabilme kapasitesine sahiptirler. Çevre dostu olmaları, yüksek güvenlik düzeyi sunmaları ve yüksek sıcaklıklarda çalışmaya dayanıklı olmaları süperkapasitörlerin öne çıkan avantajlarıdır.

Süperkapasitörler, çalışma prensibi açısından geleneksel kapasitörlerle benzerlik göstermektedir. Ancak süperkapasitörlerde, elektrotların çok daha yüksek özgül yüzey alanına (A) sahip olması ve elektrotlar arasındaki mesafeyi (d) azaltan son derece ince dielektrik tabakaların kullanılması gerekmektedir. Bir süperkapasitör; iki elektrot, bir elektrolit ve elektrotlar arasında elektriksel yalıtım sağlayan bir ayırıcıdan (separatör) oluşur. Bu bileşenler, süperkapasitörün geliştirilmiş performansını belirleyen temel unsurlar olup cihaz tasarımı sırasında dikkatle değerlendirilmelidir.

Süperkapasitörlerin sahip olduğu yüksek güç yoğunluğu ve hızlı enerji aktarım kabiliyeti, onları günümüzün birçok ileri teknoloji uygulaması için vazgeçilmez enerji depolama sistemleri hâline getirmiştir. Özellikle elektrikli ve hibrit elektrikli araçlarda, ani güç gereksinimlerinin karşılanmasında ve enerji geri kazanım sistemlerinde önemli rol oynamaktadırlar. Geleneksel bataryalar yüksek enerji depolama kapasitesi sunmalarına rağmen ani güç taleplerine hızlı şekilde cevap vermekte sınırlı kalabilmektedir. Buna karşılık süperkapasitörler, yüksek akımları kısa sürelerde sağlayabilmeleri sayesinde araçların hızlanma süreçlerinde ve rejeneratif frenleme sistemlerinde etkin biçimde kullanılmaktadır. Rejeneratif frenleme sırasında ortaya çıkan kinetik enerji, süperkapasitörler tarafından çok hızlı bir şekilde depolanabilmekte ve daha sonra ihtiyaç duyulduğunda yeniden kullanılabilir. Bu sayede enerji verimliliği artırılırken bataryaların maruz kaldığı yük azaltılarak kullanım ömürleri de uzatılabilmektedir (Partridge ve Abouelamaimen., 2019).

Son yıllarda birçok otomotiv üreticisi, batarya ve süperkapasitör teknolojilerini bir arada kullanan hibrit enerji depolama sistemlerine yönelmiştir. Bu sistemlerde bataryalar yüksek enerji depolama görevini üstlenirken, süperkapasitörler ani güç taleplerini karşılamakta ve yüksek akım darbelerini absorbe etmektedir. Böylece sistemin genel verimliliği, güvenilirliği ve çevrim ömrü önemli ölçüde iyileştirilmektedir. Benzer şekilde elektrikli otobüsler, tramvaylar ve raylı ulaşım sistemlerinde de süperkapasitörler yaygın olarak kullanılmaktadır. Bazı modern toplu taşıma sistemlerinde araçlar, duraklarda yalnızca birkaç saniye içerisinde şarj edilebilen süperkapasitör modülleri ile çalışabilmekte ve bu sayede sürekli enerji beslemesi sağlanabilmektedir (Kandavelu vd., 2025).

Taşınabilir elektronik cihazların hızla gelişmesi de yüksek performanslı enerji depolama sistemlerine olan ihtiyacı artırmıştır. Akıllı telefonlar, tabletler, dizüstü bilgisayarlar, kablosuz sensörler ve nesnelerin interneti (IoT) cihazları gibi sistemlerde hızlı şarj olabilen enerji depolama elemanları büyük önem taşımaktadır. Süperkapasitörler, çok kısa sürelerde şarj

edilebilmeleri ve uzun çevrim ömürleri sayesinde bu tür uygulamalar için önemli avantajlar sunmaktadır. Özellikle sık şarj–deşarj döngülerine maruz kalan elektronik cihazlarda bataryalara destek elemanı olarak kullanılmaları, sistem performansının ve kullanım ömrünün artırılmasına katkı sağlamaktadır (Zhang vd., 2023).

Süperkapasitörlerin önemli kullanım alanlarından biri de kesintisiz güç kaynakları ve yedek enerji sistemleridir. Veri merkezleri, telekomünikasyon altyapıları, tıbbi cihazlar ve kritik endüstriyel ekipmanlar gibi sistemlerde elektrik kesintileri ciddi sorunlara yol açabilmektedir. Bu tür durumlarda süperkapasitörler, enerji kesintisi meydana geldiği anda devreye girerek gerekli gücü sağlayabilmekte ve sistemlerin güvenli biçimde çalışmaya devam etmesine yardımcı olmaktadır. Yüksek güç yoğunlukları sayesinde milisaniyeler seviyesinde tepki verebilmeleri, onları geleneksel yedek enerji sistemlerine kıyasla önemli bir alternatif hâline getirmektedir (Alipoori vd., 2026).

Yenilenebilir enerji teknolojilerinin yaygınlaşmasıyla birlikte süperkapasitörlerin önemi daha da artmıştır. Güneş ve rüzgâr enerjisi gibi kaynaklar doğaları gereği değişken enerji üretimine sahiptir. Bu nedenle üretim ve tüketim arasındaki ani dengesizliklerin giderilmesi için hızlı tepki verebilen enerji depolama sistemlerine ihtiyaç duyulmaktadır. Süperkapasitörler, kısa süreli enerji dalgalanmalarının dengelenmesinde, gerilim kararlılığının korunmasında ve güç kalitesinin iyileştirilmesinde etkili bir çözüm sunmaktadır. Özellikle akıllı şebekelerde ve dağıtılmış enerji sistemlerinde, bataryalarla birlikte kullanılarak enerji yönetiminin optimize edilmesine katkıda bulunmaktadır (Kyeremateng vd., 2017).

Giyilebilir elektronikler ve esnek enerji depolama sistemleri de süperkapasitör araştırmalarının hızla büyüyen alanlarından biridir. Akıllı saatler, biyosensörler, elektronik tekstiller ve sağlık izleme cihazları gibi yeni nesil teknolojiler, hafif, ince, güvenli ve mekanik olarak esnek enerji depolama sistemlerine ihtiyaç duymaktadır. Süperkapasitörler, yüksek güç performanslarının yanı sıra esnek elektrot tasarımlarına uyarlanabilmeleri sayesinde bu uygulamalar için umut verici bir seçenek olarak görülmektedir. Özellikle 2B malzemeler kullanılarak geliştirilen esnek süperkapasitörler, bükülme ve deformasyon altında dahi kararlı performans gösterebilmektedir (Alipoori vd., 2026).

Havacılık, uzay ve savunma teknolojileri de süperkapasitörlerin kullanım potansiyelinin yüksek olduğu alanlar arasında yer almaktadır. Uydu sistemleri, radarlar, lazer sistemleri ve yüksek güçlü elektronik ekipmanlar kısa sürelerde yüksek enerji çıkışına ihtiyaç duymaktadır.

Süperkapasitörlerin hızlı güç sağlayabilme özellikleri, bu tür uygulamalarda önemli avantajlar sunmaktadır. Ayrıca yüksek çevrim ömürleri ve güvenilirlikleri, bakımın zor olduğu uzay ve savunma uygulamalarında tercih edilmelerini sağlamaktadır (Gonzalez vd., 2020).

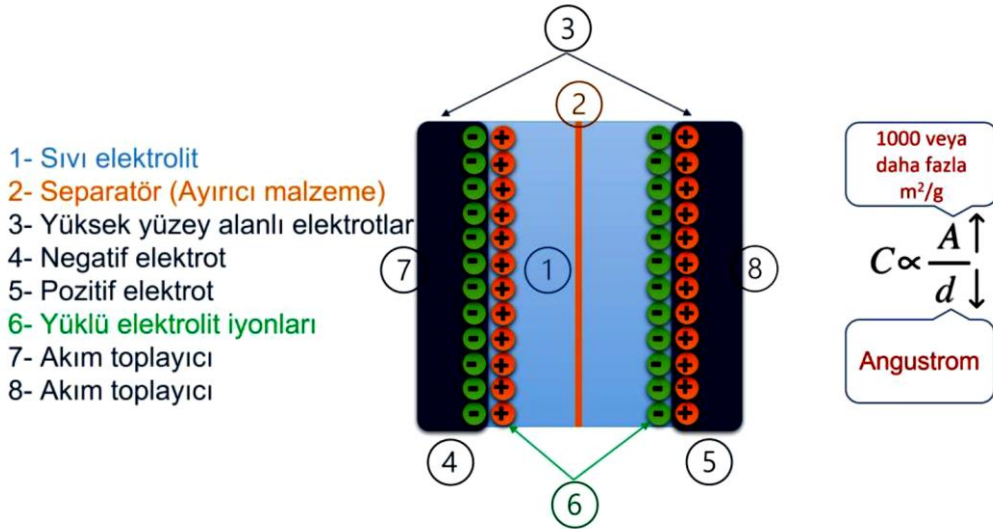
Tüm bu uygulamalar göz önüne alındığında, süperkapasitörlerin yalnızca geleneksel enerji depolama cihazları olarak değil, aynı zamanda geleceğin sürdürülebilir enerji teknolojilerinin temel bileşenlerinden biri olarak değerlendirildiği görülmektedir. Bununla birlikte, enerji yoğunluklarının bataryalara kıyasla daha düşük olması, kullanım alanlarının daha da genişlemesinin önündeki temel engellerden biridir. Bu nedenle günümüzde yürütülen araştırmaların büyük bölümü, yüksek yüzey alanına sahip, hızlı iyon taşınımı sağlayan ve üstün elektriksel iletkenlik gösteren yeni elektrot malzemelerinin geliştirilmesine odaklanmaktadır. Özellikle MXene ve MBene gibi 2B malzemeler, bu hedeflere ulaşılmasında önemli adaylar olarak öne çıkmaktadır. Bu bağlamda, yüksek elektriksel iletkenlikleri, katmanlı yapıları ve elektrokimyasal olarak aktif yüzeyleri sayesinde MBene malzemeleri, yeni nesil süperkapasitör elektrotları için umut vadeden adaylar arasında yer almaktadır. MBene tabanlı elektrotların enerji depolama mekanizmalarının anlaşılabilmesi için öncelikle süperkapasitörlerin temel çalışma prensiplerinin incelenmesi gerekmektedir.

Süperkapasitörlerde en kritik bileşen elektrot malzemesidir. Genel olarak süperkapasitör elektrotları, yüksek yüzey alanına ve yüksek gözenekliliğe sahip malzemelerden üretilmektedir. Elektrik yükleri, iletken katı parçacıklar (karbon veya metal oksit parçacıkları gibi) ile elektrolit arasındaki arayüzeyde depolanmakta ve ayrılmaktadır (Zhang ve Zhao, 2012).

Süperkapasitörler; anot, katot, ayırıcı ve elektrolitten oluşmaktadır. Anot, süperkapasitör hücresinin negatif terminalini temsil eder ve elektronların dış devreye salındığı oksidatif kimyasal reaksiyonlarla ilişkilidir. Katot ise hücrenin pozitif elektrodu olup, dış devreden elektronları kabul eden indirgenme reaksiyonlarıyla bağlantılıdır. Elektrolit, hücrenin pozitif ve negatif elektrotları arasında yalnızca iyonik iletkenlik sağlayan bir ortamdır. Ayırıcı, elektrokimyasal reaksiyonlar sırasında elektriksel kısa devreyi önlemek amacıyla pozitif ve negatif elektrotlar arasında fiziksel bir bariyer görevi görür. Ayırıcı; jel hâlindeki bir elektrolit, mikrogözenekli plastik film veya elektrolit ile doldurulmuş başka bir gözenekli inert malzeme olabilir. Ayırıcıların iyonlara geçirgen olması zorunludur.

## 2.4.2. Elektrokimyasal çift tabakalı kapasitörler

Elektrokimyasal Çift Tabakalı Kapasitörler (Electrochemical Double-Layer Capacitors, EDLC'ler) ya da elektriksel çift tabakalı kapasitörler, ticari olarak en yaygın kullanılan süperkapasitör türüdür. Teknolojik gelişmelerle birlikte EDLC'ler giderek artan bir önem kazanmış ve çeşitli uygulamalarda kullanılmaya başlanmıştır. EDLC'ler çoğunlukla bataryalarla birlikte kullanılmakta olup, bazı durumlarda bataryaların yerini etkin bir şekilde alabilmektedir. EDLC teknolojisi yeni değildir; 20. yüzyılın ortalarında geliştirilmiştir. Bu kapasitörlerde yükler, elektrot–elektrolit arayüzeyinde pozitif ve negatif yükler şeklinde ayrıştırılarak elektrostatik olarak depolanır (**Şekil 2.14**). Bu nedenle enerji depolama sırasında herhangi bir kimyasal reaksiyon gerçekleşmez ve şarj–deşarj süreci boyunca elektrot–elektrolit arayüzeyinde elektron transferi söz konusu değildir. Bu durum, EDLC'lerin bataryalara kıyasla çok daha hızlı (yaklaşık  $10^6$  kat) şarj edilip deşarj edilebilmesini sağlamaktadır. EDLC'lerde elektrot malzemesi olarak grafen (Gr), karbon nanotüpler (CNT) ve gözenekli yapıya sahip, yüksek özgül yüzey alanlı aktif karbon gibi malzemeler yaygın olarak kullanılmaktadır (Kiamahalleh, 2012).



**Şekil 2.14.** Elektrik Çift Tabaka Kapasitörün iç yapısı (Pottathara, 2017).

EDLC'lerde kullanılan enerji depolama prensibi, elektrolit iyonlarının elektrota çekilmesiyle elektrot–elektrolit arayüzeyinde elektrokimyasal bir çift tabakanın oluşumuna dayanmaktadır. Elektrota bir gerilim uygulandığında, yükler elektrot yüzeyinde ve gözenekleri içerisinde birikir. Bu yüzey ve gözeneklerde biriken yükler, zıt yüklü elektrolit iyonlarını çekerek iyonların tüm yüzeye ve gözeneklerin içine doğru difüze olmasına olanak tanır. Dolayısıyla EDLC'lerin yüksek kapasitansı, büyük ölçüde geniş ve kolay erişilebilir özgül yüzey alanından

kaynaklanmaktadır. Bu özellik, geniş yüzey alanı, yüksek gözeneklilik ve iyi elektriksel iletkenlikleri sayesinde karbon esaslı malzemelerde etkin bir şekilde sağlanmaktadır. Elektrota uygulanan potansiyel farkı nedeniyle yüzeyde yük birikimi meydana gelir ve büyük yüzey alanına sahip karbon elektrotlarda dağılan pozitif yükler, elektrolitteki negatif iyonları çekerek zıt yükler arasında elektrostatik bir etkileşim oluşturur. Bu durum, iyonların mümkün olan en yüksek düzeyde difüzyonuna imkân tanımaktadır.

Elektrotlar arasındaki kısa mesafe ve çift tabakaya ait gözenekli yapı sayesinde yüzeyde depolanan yük miktarı artmakta ve böylece daha yüksek enerji yoğunluğu elde edilmektedir. Bu yük depolama mekanizması sayesinde enerji çok hızlı bir şekilde aktarılabilir. Bununla birlikte, yüzeyde gerçekleşen elektrostatik yük depolama mekanizmasına bağlı olarak EDLC'lerin enerji yoğunluğu belirli bir düzeyle sınırlıdır. Güncel araştırmalar, gelişmiş nanomalzemeler ve kullanılan elektrolit türleri aracılığıyla bu sınırlamayı aşarak enerji performansını artırmayı hedeflemektedir. Bu sınırlamaların üstesinden gelmek amacıyla, son yıllarda 2B malzemelere dayalı hibrit elektrot tasarımları önemli bir araştırma alanı hâline gelmiştir. Özellikle MXene gibi yüksek iletkenliğe sahip katmanlı yapılar, hızlı iyon ve elektron taşınımı açısından büyük avantaj sunarken, yeniden istiflenme eğilimleri performansı sınırlayabilmektedir. Bu noktada, borofen gibi 2B nanoyapıların ara ayırıcı olarak kullanılması, tabakalar arası mesafeyi artırarak iyon difüzyonunu kolaylaştırmakta ve elektrokimyasal performansı önemli ölçüde iyileştirmektedir.

EDLC elektrot malzemelerinde yük depolama, spesifik yüzey alanına ve gözenek boyutu ile yapısına doğrudan bağlıdır. Yüksek yüzey alanı yük depolamayı desteklerken, kapasitansa katkıda bulunan aşırı ince gözenek yapısı iyon difüzyonunu sınırlayıcı olabilmektedir. Uygun bir gözenek boyutu dağılımı, karbon esaslı malzemelerin kapasitansını önemli ölçüde artırmaktadır. En yüksek kapasitansın, gözenek boyutunun elektrolitte çözünmüş iyonların etkin yarıçapı ile uyumlu olduğu durumlarda elde edilebildiği rapor edilmiştir (Wang vd., 2012).

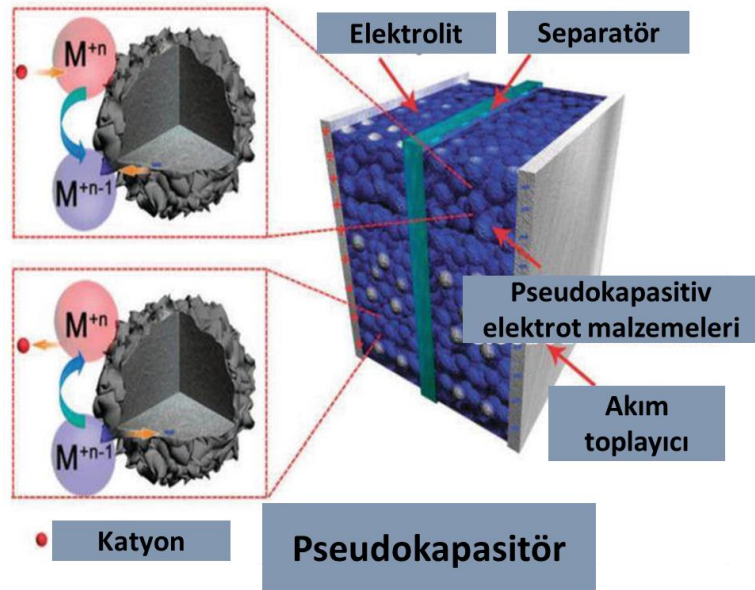
### **2.4.3. Psödokapasitörler**

Psödokapasitörler, elektrokimyasal çift tabakalı kapasitörler (EDLC'ler) ile elektrokimyasal bataryalar arasında bir köprü oluşturan gelişmiş bir süperkapasitör sınıfını temsil etmektedir. Bu sistemler, geleneksel kapasitörlerin hızlı kinetik özelliklerini bataryalarda gözlenen yüksek kapasitans değerleriyle birleştirir. Psödokapasitörlerin çalışma prensibi, elektrot–elektrolit

arayüzünde gerçekleşen tersinir yüzeysel veya yarı yüzeysel elektrokimyasal reaksiyonlar yoluyla elektrik yükünün depolanmasına dayanır. Bu süreçler sırasında aktif malzemede belirgin yapısal değişimler meydana gelmez.

EDLC'lerde enerji depolama yalnızca elektrot ile elektrolit arasındaki arayüzde iyonların fiziksel adsorpsiyonu ile sınırlıyken, psödokapasitans mekanizması hızlı faradayik reaksiyonlara dayanır ve bu reaksiyonlar eşzamanlı elektron ve iyon transferini içerir. Bu tür reaksiyonlar, yeni kristal fazların oluşumu veya malzeme içerisinde derin difüzyon süreçleri ile sınırlı olmadığından, psödokapasitörler yüksek özgül kapasitans değerlerini korurken aynı zamanda hızlı şarj–deşarj yeteneği sergiler (Şekil 2.15) (Prasankumar vd., 2021).

Psödokapasitans mekanizmaları genel olarak iki ana kategoriye ayrılmaktadır: yüzeysel oksidasyon–indirgenme reaksiyonları ve hızlı yüzeysel iyon enterkalasyonu. İlk mekanizmada, yük depolanması aktif malzeme yüzeyindeki redoks-aktif bölgelerde gerçekleşen tersinir oksidasyon–indirgenme reaksiyonları aracılığıyla sağlanır. Bu durum özellikle  $\text{RuO}_2$  ve  $\text{MnO}_2$  gibi geçiş metali oksitlerinde gözlenmekte olup, metal iyonlarının değerlik durumu uygulanan potansiyele bağlı olarak değişmektedir.



Şekil 2.15. Psödokapasitörlerde yük depolama mekanizmasının şematik gösterimi (Waqas Hakim vd., 2022).

Hızlı yüzeysel iyon enterkalasyonu mekanizması, psödokapasitans kavramının en gelişmiş formlarından biri olarak kabul edilmektedir. Bu süreçte  $\text{H}^+$ ,  $\text{Li}^+$  veya  $\text{Na}^+$  gibi iyonlar, malzemenin yüzeye yakın bölgelerine veya tabakalar arasına, önemli bir difüzyon kısıtı ya da

faz dönüşümü olmaksızın yerleşmektedir. Bu tür psödokapasitans; tabakalı yapıları, yüksek özgül yüzey alanları ve üstün elektriksel iletkenlikleri sayesinde elektrokimyasal reaksiyon kinetiğini önemli ölçüde hızlandıran 2B malzemelerde—özellikle geçiş metali karbür ve nitrürleri (MXene) gibi sistemlerde—büyük ilgi görmektedir (Augustyn vd., 2023).

Elektrokimyasal açıdan değerlendirildiğinde, psödokapasitörler şarj ve deşarj sırasında neredeyse doğrusal potansiyel–zaman eğrileri sergilemekte ve bu davranış ideal kapasitörlere benzerlik göstermektedir. Bununla birlikte, döngüsel voltametri ölçümlerinde gözlenen geniş ve keskin olmayan pikler, hızlı ve difüzyonla sınırlı olmayan faradayik süreçlerin varlığına işaret etmektedir. Ayrıca, bu sistemlerde oluşan akımın tarama hızına yaklaşık olarak doğrusal biçimde bağlı olması, psödokapasitans davranışını yavaş ve difüzyon kontrollü batarya tipi depolama mekanizmalarından ayıran önemli bir özelliktir.

Psödokapasitansın elektrokimyasal enerji depolama sistemlerine entegre edilmesi, süperkapasitörlerin enerji yoğunluğunu önemli ölçüde artırırken; yüksek güç yoğunluğu ve uzun çevrim ömrü gibi avantajların korunmasını da sağlamaktadır. Bununla birlikte, psödokapasitörlerin gerçek performansı aktif malzemenin türüne, mikroyapısına, özgül yüzey alanına, elektriksel iletkenliğine ve kullanılan elektrolit ile uyumuna güçlü biçimde bağlıdır. Bu nedenle modern tasarım yaklaşımları, aktif bölgelerin sayısını artırmak ve faradayik reaksiyonların kararlılığını iyileştirmek amacıyla; parçacık boyutunun kontrolü, yüzey modifikasyonu ve nanokompozit yapıların oluşturulması gibi nano ve atomik ölçekte mühendislik stratejilerine odaklanmaktadır.

#### **2.4.4. Hibrit kapasitörler**

Hibrit kapasitörler, elektrokimyasal çift tabakalı kapasitörlerin yüksek güç yoğunluğu ve uzun çevrim ömrü ile psödokapasitif veya batarya tipi elektrotların yüksek enerji depolama kapasitesini bir araya getirmeyi amaçlayan gelişmiş enerji depolama sistemleridir (Beguin vd., 2014). Bu sistemlerde enerji depolama yalnızca elektrot yüzeyinde gerçekleşen elektrostatik yük ayrışmasına dayanmaz; aynı zamanda hızlı faradayik reaksiyonlar ve iyon enterkalasyon süreçleri de yük depolamaya katkıda bulunur. Bu sayede hibrit kapasitörler, geleneksel süperkapasitörlerin sınırlı enerji yoğunluğunu artırırken yüksek güç performanslarını büyük ölçüde koruyabilmektedir. Günümüzde hibrit süperkapasitörler, kullanılan elektrotların yapısına ve enerji depolama mekanizmasına bağlı olarak asimetrik hibrit kapasitörler, simetrik

hibrit kapasitörler ve batarya tipi hibrit kapasitörler olmak üzere üç temel grupta incelenmektedir (Yan vd., 2014).

Asimetrik hibrit kapasitörlerde pozitif ve negatif elektrotlar farklı enerji depolama mekanizmalarına sahip malzemelerden oluşturulmaktadır. Genellikle elektrotlardan biri elektrik çift tabakalı kapasitans davranışı gösterirken diğer elektrot psödokapasitif veya batarya tipi özellik sergilemektedir. Karbon bazlı malzemeler yüksek özgül yüzey alanları ve üstün iletkenlikleri nedeniyle sıklıkla EDLC elektrodu olarak kullanılırken, metal oksitler, metal hidroksitler, iletken polimerler ve çeşitli 2B malzemeler faradayik katkı sağlayan elektrotlar olarak görev yapmaktadır. Elektrotların farklı çalışma potansiyellerine sahip olması, cihazın toplam çalışma geriliminin artırılmasına olanak sağlayarak enerji yoğunluğunu yükseltmektedir. Bu nedenle asimetrik hibrit kapasitörler, yüksek güç yoğunluğu ile yüksek enerji yoğunluğu arasında dengeli bir performans sunmaları nedeniyle günümüzde en yaygın araştırılan hibrit süperkapasitör sistemlerinden biri hâline gelmiştir (Zhi vd., 2013).

Simetrik hibrit kapasitörlerde ise her iki elektrot aynı malzemedan veya aynı kompozit yapıdan oluşmaktadır. Bununla birlikte, kullanılan elektrot malzemesinin birden fazla yük depolama mekanizmasını aynı anda sergilemesi nedeniyle bu sistemler hibrit olarak sınıflandırılmaktadır. Bu tür yapılarda genellikle karbon bazlı malzemeler ile metal oksitler, iletken polimerler, MXene, MBene veya diğer 2B nanomalzemeler bir araya getirilerek kompozit elektrotlar oluşturulmaktadır. Karbon bileşenleri elektrik çift tabakalı kapasitansa katkı sağlarken, diğer aktif bileşenler yüzeysel redoks reaksiyonları yoluyla ek psödokapasitif yük depolama kapasitesi sunmaktadır. Böylece aynı elektrot içerisinde hem elektrostatik hem de faradayik enerji depolama mekanizmaları birlikte çalışabilmektedir. Simetrik hibrit kapasitörler, elektrotların aynı yapıya sahip olması sayesinde üretim kolaylığı, düşük maliyet ve yüksek yapısal kararlılık gibi avantajlar sunmakta olup son yıllarda özellikle 2B malzemeler kullanılarak geliştirilen kompozit elektrot sistemlerinde yoğun ilgi görmektedir.

Batarya tipi hibrit kapasitörlerde ise enerji depolama mekanizmasının önemli bir bölümü iyon enterkalasyonu veya dönüşüm reaksiyonları gibi bataryalara özgü süreçlere dayanmaktadır. Bu sistemlerde kullanılan aktif malzemeler, iyonların kristal yapı içerisine girip çıkmasına olanak sağlayarak geleneksel EDLC elektrotlarına kıyasla çok daha yüksek yük depolama kapasitesi sunabilmektedir. Bununla birlikte, iyonların katı faz içerisinde hareket etmesi nedeniyle kinetik süreçler yüzey tabanlı kapasitif mekanizmalara göre daha yavaş gerçekleşmektedir. Hibrit tasarım yaklaşımı sayesinde bu tür elektrotlar yüksek iletkenliğe sahip kapasitif malzemelerle

birleştirilerek hem enerji yoğunluğu hem de güç yoğunluğu açısından daha dengeli sistemler elde edilebilmektedir. Özellikle katmanlı 2B malzemeler, geçiş metali bileşikleri ve nanokompozit yapılar kullanılarak geliştirilen batarya tipi hibrit kapasitörler, süperkapasitörler ile elektrokimyasal bataryalar arasındaki performans boşluğunu doldurabilecek umut verici enerji depolama teknolojileri arasında değerlendirilmektedir (Muzaffar vd., 2019).

## 2.5. MBene Tabanlı Elektrot Malzemeleri

Wang ve arkadaşları, MoAlB öncül maddesi ve ZnCl<sub>2</sub> kullanarak MoB MBene yapısını sentezlemişlerdir. Elde edilen ürünün hidroklorik asit ile işlenmesi sonucunda, alüminyumun uzaklaştırıldığı tabakalı bir yapı elde edilmiştir. Sentezlenen MoB MBene, CoO elektrot malzemesi ile kompozit hâle getirilmiş ve elektrokimyasal performansı incelenmiştir. %30 oranında MoB MBene ilavesi ile CoO'nun kapasitesinin önemli ölçüde arttığı ve 100 mA g<sup>-1</sup> akım yoğunluğunda 318,1 mAh g<sup>-1</sup> değerinden 819,8 mAh g<sup>-1</sup> seviyesine yükseldiği rapor edilmiştir. Bu performans artışı, MBene'in geniş yüzey alanı sağlaması, aktif büyüme merkezleri oluşturması ve hacim değişimlerini tamponlayabilmesi ile ilişkilendirilmiştir. Ayrıca, psödokapasitif katkılar sayesinde iyon taşınımı ve elektron transfer süreçlerinin iyileştiği belirtilmişti (Wang vd., 2025).

Benzer şekilde, Duan ve arkadaşları MoAlB MAB fazından hidrotermal aşındırma yöntemi ile MoB MBene sentezlemiş ve bu malzemeyi simetrik katı hâl süperkapasitörlerde elektrot olarak kullanmıştır. Elde edilen cihazın 0,5 mA cm<sup>-2</sup> akım yoğunluğunda 117 mF cm<sup>-2</sup> yüzey özgül kapasitans sergilediği ve 5000 çevrim sonunda %97 kapasitans korunumu ile yüksek çevrim kararlılığı gösterdiği belirlenmiştir. Ayrıca, bu sistemde yüzey kapasitansı ile difüzyon kontrollü kapasitansın birlikte katkı sağladığı ortaya konmuştur (Duan vd., 2025).

Wei ve arkadaşları, MoB MBene elde etmek amacıyla alkali aşındırma işlemi gerçekleştirmiştir. 500 mesh tane boyutuna sahip 200 mg MoAlB, 200 mL hacimli sızdırmaz bir otoklav içerisinde %1 (ağırlıkça, 0,25 M) NaOH çözeltisinden 50 mL'ye ilave edilmiştir. Otoklav, elektrikli bir kurutma fırınına yerleştirilmiş ve sıcaklık 6 saat boyunca hassas biçimde kontrol edilmiştir. Farklı sıcaklıklarda gerçekleştirilen aşındırma işlemleri sonucunda alüminyumun farklı giderim derecelerine sahip çok katmanlı ürünler elde edilmiş ve bunlar sırasıyla MoAl<sub>0,8</sub>B (oda sıcaklığı), MoAl<sub>0,67</sub>B (110 °C), MoAl<sub>0,5</sub>B (170 °C), MoAl<sub>0,2</sub>B (190 °C) ve MoB (200 °C) olarak adlandırılmıştır. Alüminyumun kademeli olarak uzaklaştırılmasıyla özgül kapasitansın sistematik biçimde arttığı ve alüminyumun tamamen giderilmesi sonrasında

maksimum değere ulaştığı açıkça gözlemlenmiştir. Bu iyileşme, özgül yüzey alanının artmasına ve aktif yüzeylerin tamamen açığa çıkmasına atfedilmektedir. Elde edilen  $4025,60 \text{ mF cm}^{-2} / 201,28 \text{ F g}^{-1}$  gibi yüksek kapasitans değerleri, MXene'ler dâhil olmak üzere birçok karbon bazlı veya diğer 2B elektrot malzemesinin kapasitesini aşmaktadır. Ayrıca malzeme,  $5 \text{ mA cm}^{-2}$  gibi düşük bir şarj–deşarj hızında %92,27 koulombik verimlilik sergilemiştir. Elektrot, 6000 çevrim sonrasında dahi %91,54 kapasitans korunumu ile mükemmel bir çevrim kararlılığı göstermiştir. Bu sonuçlar, MoB'nin pratik uygulamalar için umut vadeden potansiyelini teyit etmektedir (Wei vd., 2024).

Buna ek olarak, Wei ve ekibi tarafından gerçekleştirilen bir diğer çalışmada, florür içermeyen aşındırma stratejileri kullanılarak daha gözenekli  $\text{MoAl}_{1-x}\text{B}$  MBene yapıları elde edilmiştir. Bu yaklaşımın, elektrotun iletkenliğini ve iyon taşınımını artırarak kapasitans değerlerinde belirgin iyileşme sağladığı belirtilmiştir. Ayrıca bu yapıların yüksek çevrim kararlılığı ve mekanik dayanım göstermesi, esnek ve katı hâl enerji depolama sistemleri için önemli bir avantaj sunmaktadır (Wei vd., 2023).

Aghamohammadi ve arkadaşları tarafından gerçekleştirilen bir çalışmada ise  $\text{Cr}_2\text{AlB}_2$  MAB fazı kullanılarak 1,25 M derişimli hidroklorik asit çözeltisi ile yapılan seçici aşındırma işlemi sonucunda CrB MBene kompoziti sentezlenmiştir. Araştırmacılar, 12, 24, 36 ve 48 saatlik farklı aşındırma sürelerinin 2B CrB MBene bileşiklerinin yapısal ve elektrokimyasal özellikleri üzerindeki etkisini incelemiştir. Elde edilen sonuçlar, alüminyumun  $\text{Cr}_2\text{AlB}_2$  MAB fazının tabakaları arasında uzaklaştırılmasında sürenin kritik bir parametre olduğunu ve bunun CrB MBene nanoyapılarının oluşumuna yol açtığını ortaya koymuştur. Sentezlenen CrB MBene bileşikleri, 2B tabakalı bir morfoloji sergilemiş ve geliştirilmiş elektrokimyasal performans göstermiştir. Bu bağlamda CrB MBene elektrodu,  $0,1 \text{ A g}^{-1}$  akım yoğunluğunda  $92,3 \text{ F g}^{-1}$  değerinde en yüksek özgül kapasitansa ulaşmıştır (Aghamohammadi vd., 2025a).

Aynı araştırma grubu tarafından gerçekleştirilen başka bir çalışmada ise MoAlB MAB fazı, NaOH ve LiF–HCl çözeltileri kullanılarak aşındırılmış ve 2B MoB MBene yapıları başarıyla sentezlenmiştir. İlk aşamada MAB fazı, molibden, alüminyum ve bor tozlarının otoklav içerisinde 2:1,5:2 (Mo:Al:B) molar oranında karıştırılmasıyla hazırlanmıştır. Katı karışım bilyalı değirmende 2 saat öğütülmüş, ardından 400 MPa basınç altında 2 dakika süreyle preslenerek disk formuna getirilmiştir. Yaklaşık 2 g ağırlığındaki diskler bir potaya yerleştirilmiş ve  $10 \text{ }^\circ\text{C dk}^{-1}$  ısıtma hızıyla  $1500 \text{ }^\circ\text{C}$ 'de ısıtma tabi tutulmuştur. Elde edilen MoAlB fazı, iki farklı aşındırma çözeltisi kullanılarak kimyasal olarak aşındırılmıştır. İlk

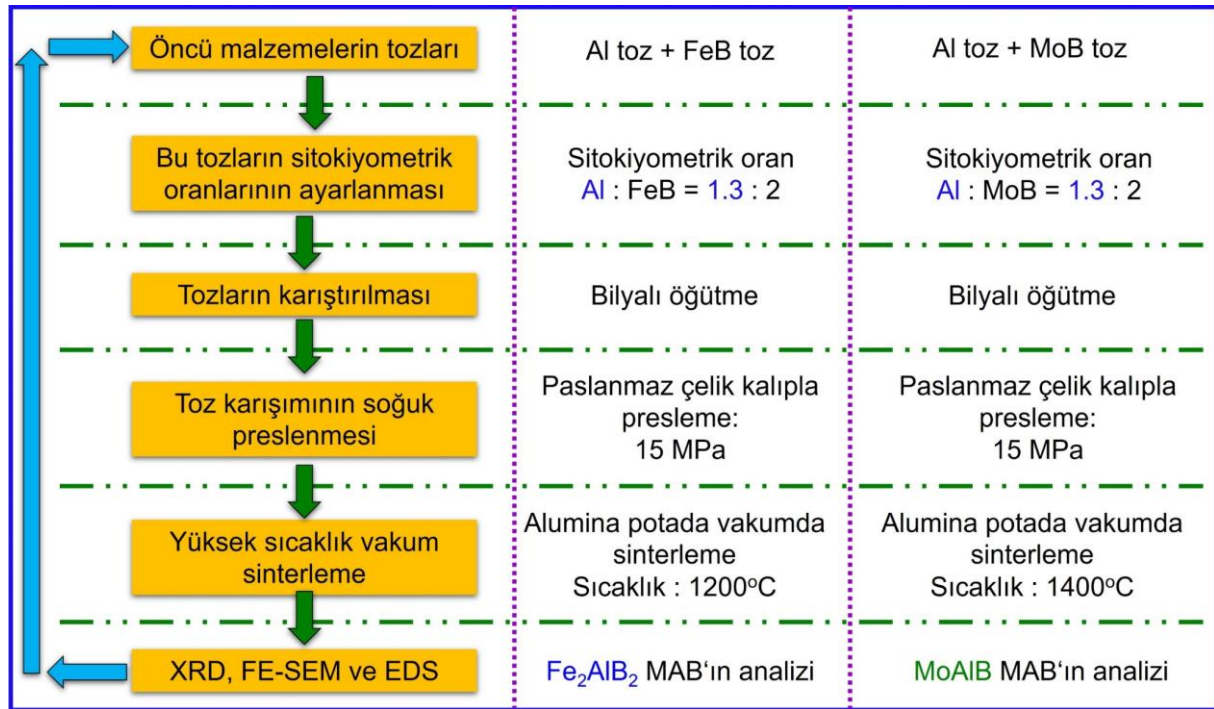
yöntemde 0,5 g MoAlB tozu, %25 (ağırlıkça) sodyum hidroksit çözeltisinden 40 mL ile karıştırılarak 100 mL hacimli bir otoklava aktarılmış ve 160 °C’de 24 saat boyunca ısıtılmıştır. İkinci yöntemde ise 0,5 g MoAlB tozu, 6 M hidroklorik asit içerisinde çözündürülmüş 1 g LiF içeren sulu çözelti ile 25 °C’de 24 saat muamele edilmiştir. Sentezlenen MoB MBene malzemesi kullanılarak iki elektrotlu bir hücre imal edilmiş ve bu hücre 20,3 mF cm<sup>-2</sup> yüzey özgül kapasitansı sergilemiştir. Ayrıca cihaz, 1300 çevrim sonrasında başlangıç kapasitansının %92’sini koruyarak iyi bir çevrim kararlılığı göstermiştir (Aghamohammadi vd., 2025b).

Tüm bu çalışmalar birlikte değerlendirildiğinde, MBene malzemelerinin yüksek özgül yüzey alanı, tabakalı yapısı ve psödokapasitif özellikleri sayesinde elektrokimyasal enerji depolama performansını önemli ölçüde iyileştirdiği görülmektedir. Bununla birlikte, kullanılan aşındırma yöntemleri ve sentez koşullarının malzemenin yapısal özellikleri ve elektrokimyasal davranışı üzerinde belirleyici bir rol oynadığı anlaşılmaktadır. Bu nedenle, MBene tabanlı elektrotların performansını artırmaya yönelik çalışmalar, uygun sentez stratejilerinin geliştirilmesi ve farklı nanoyapılarla hibrit sistemlerin oluşturulmasına odaklanmaktadır.

### 3. MATERYAL ve YÖNTEM

#### 3.1. Fe<sub>2</sub>AlB<sub>2</sub> ve MoAlB MAB Fazlarının Sentezlenmesi

Fe<sub>2</sub>AlB<sub>2</sub> ve MoAlB MAB yapılarının sentezi Şekil 3.1’de gösterildiği üzere, toz hazırlama, presleme ve yüksek sıcaklık sinterleme adımları bakımından MAX fazlarının sentez süreçlerine büyük ölçüde benzemektedir. Öncü malzemeler FeB, MoB ile Al elementel tozlarından oluşturulmuş; ilk aşamada tozların stokiometrik oranları ayarlanarak homojen bir karışım elde edilmiştir. Elde edilen toz karışımı, bilyalı öğütme yöntemiyle karıştırıldıktan sonra paslanmaz çelik kalıplar kullanılarak 15 MPa basınç altında tek eksenli soğuk presleme işlemine tabi tutulmuştur. Presleme sonrası elde edilen peletler, alümina potalar içerisinde vakum ortamında yüksek sıcaklıkta sinterlenmiştir. Sinterleme sıcaklığı, kullanılan öncü toz bileşimine bağlı olarak Fe<sub>2</sub>AlB<sub>2</sub> ve MoAlB yapıları için sırasıyla 1200 °C ve 1400 °C olarak belirlenmiştir. Sinterleme işleminin ardından elde edilen MAB fazlarının yapısal ve morfolojik karakterizasyonu X-ışını kırınımı (XRD), alan emisyonlu taramalı elektron mikroskobu (FE-SEM) ve enerji dağılımlı X-ışını spektroskopisi (EDS) teknikleri kullanılarak detaylı biçimde karakterize edilmiştir. Bu sentez yaklaşımı, yüksek kristallik ve homojen faz oluşumu sağlayarak MAB fazlarının ileri düzey elektrokimyasal uygulamalar için uygun bir yapı kazanmasına olanak tanımaktadır.



Şekil 3.1. Fe<sub>2</sub>AlB<sub>2</sub> ve MoAlB MAB fazlarının sentezinde izlenen deneysel akış şeması.

$Fe_2AlB_2$  MAB fazı, öncü malzemeler olarak FeB (> %99 saflık, 325 mesh) ve Al (%99,995 saflık) tozları kullanılarak 2:1.3 molar oranında sentezlenmiştir. Hazırlanan toz karışımı, homojenliğin sağlanması amacıyla itriya ile stabilize edilmiş zirkonya (YSZ) bilyeler kullanılarak bilyalı öğütme sisteminde 18 saat boyunca karıştırılmıştır. Bilyalı öğütme işlemi yüksek enerjili çarpma ve kesme kuvvetleri aracılığıyla parçacık boyutunun küçültülmesini ve tozların homojen şekilde karışmasını sağlayan etkili bir yöntemdir. Bu çalışmada kullanılan planetary bilyalı değirmen (PM100), kap içerisindeki bilyelerin dönme ve karşıt yönlü hareketleri sayesinde etkin bir öğütme ortamı oluşturmaktadır (**Şekil 3.2**). Sistem, kap içerisindeki bilyelerin dönme ve karşıt yöndeki hareketleri sayesinde etkin çarpma ve kesme kuvvetleri oluşturarak parçacık boyutunun küçültülmesini ve tozların homojen karışımını sağlar. Öğütme süresi ve hız parametreleri ayarlanarak istenilen partikül boyutu ve dağılımı elde edilebilmektedir.



**Şekil 3.2.** Toz karışımlarının homojenleştirilmesi amacıyla kullanılan bilyalı öğütme sistemi.

Elde edilen toz karışımı, 15 MPa tek eksenli basınç altında katı peletler hâline getirilmiştir. Hazırlanan peletler alümina pota içerisine yerleştirilerek vakum ortamında çalışan yüksek sıcaklık fırınında, argon gazı akışı (200 sccm) altında ve 5 °C/dk kontrollü ısıtma hızıyla 1200 °C'de 2 saat sinterlenmiştir. Sinterleme işleminin ardından fırın oda sıcaklığına kadar doğal olarak soğumaya bırakılmıştır. Elde edilen sinterlenmiş peletler öğütülmüş ve 325 mesh elek kullanılarak elenmiş; böylece  $Fe_2AlB_2$  MAB fazına ait ince toz elde edilmiştir (**Şekil 3.3**).

MoAlB MAB yapısının sentezinde,  $Fe_2AlB_2$  fazı için izlenen toz hazırlama, presleme ve sinterleme adımlarına benzer bir yöntem uygulanmıştır. Ancak, bu yapının sentezinde öncü malzemeler olarak MoB ve Al tozları kullanılmış ve Mo-B bağlarının daha yüksek

termodinamik kararlılığı nedeniyle sinterleme işlemi daha yüksek bir sıcaklıkta (1400 °C) gerçekleştirilmiştir (Bury vd., 2023). Bunun dışında, presleme koşulları ve diğer deneysel parametreler  $Fe_2AlB_2$  sentezi ile aynı tutulmuştur.



**Şekil 3.3.** Sinterlenmiş MAB peletlerinin öğütülmesi ve eleme işlemlerine ait görseller: (a) havanda parçalama, (b) eleme işlemi, (c) elde edilen ince toz.

### 3.2. $Fe_2Al_{1-x}B_2$ ve $MoAl_{1-x}B$ MBene Fazlarının Sentezlenmesi

$Fe_2Al_{1-x}B_2$  MBene yapısı,  $Fe_2AlB_2$  MAB fazından Al tabakalarının seçici olarak uzaklaştırılmasıyla elde edilmiştir. Bu amaçla, 1 g  $Fe_2AlB_2$  tozu oda sıcaklığında hazırlanmış 2 M HCl çözeltisine yavaşça ilave edilmiştir. Aşındırma işlemi, manyetik karıştırıcı üzerinde 500 rpm hızda 4 saat boyunca gerçekleştirilmiştir. Reaksiyon sonrasında elde edilen süspansiyon, saf su ile birkaç kez yıkanmış ve çözeltinin pH değeri yaklaşık 6 seviyesine ulaşınca kadar 3500 rpm’de santrifüj işlemi uygulanmıştır. Son aşamada, elde edilen  $Fe_2Al_{1-x}B_2$  MBene tozları vakum filtrasyon yöntemi ile ayrılmış ve 60 °C’de 12 saat etüvde kurutulmuştur.

$MoAl_{1-x}B$  MBene yapısının sentezinde ise  $MoAlB$  fazındaki Al tabakalarının seçici olarak uzaklaştırılması hedeflenmiştir. Bu işlem için literatürde rapor edilen yöntem esas alınarak, 9 M HCl ve %0,3  $H_2O_2$  içeren sulu çözelti kullanılmıştır (Bury vd., 2023).  $MoAlB$  tozu, hazırlanan aşındırma çözeltisine kontrollü bir şekilde ilave edilmiş ve reaksiyonun başlangıç aşamasında buz banyosu altında karıştırılmıştır. Aşındırma işlemi daha sonra oda sıcaklığında manyetik karıştırıcı üzerinde 24 saat boyunca sürdürülmüştür. İşlem sonunda elde edilen ürün, yıkama ve santrifüj adımlarının ardından vakum filtrasyonu ile ayrılmış ve kurutularak  $MoAl_{1-x}B$  MBene yapısı elde edilmiştir.

### 3.3. Yapısal ve Morfolojik Analizler

Deneysel sentezlenen numunelerin kristal yapıları X-ışını kırınımı (PANalytical Empyrean, Cu-K $\alpha$ ,  $\lambda=1.54060$  Å) ile karakterize edilirken morfolojileri, alan etkili taramalı elektron

mikroskobu (FESEM, FEI Quanta 450 FEG) ve geçirimli elektron mikroskobu (TEM, FEI Tecnai) ile analiz edilmiştir. Kompozit yapının kimyasal bileşimini belirlemek için enerji dağılımlı X-ışını fotoelektron spektroskopisi (SPECS-Flex, Al-K $\alpha$ ) ve FESEM cihazında yer alan EDS (EDAX, AMETEK Materials Analysis Division) kullanılmıştır. Fe<sub>2</sub>Al<sub>1-x</sub>B<sub>2</sub> MBene yapısının Brunauer–Emmett–Teller (BET) yüzey alanı ve gözenek boyutu dağılımı, Micromeritics 3Flex yüzey alanı ve gözenek analiz cihazı (Flex Version 6.02) kullanılarak belirlenmiştir.

### 3.4. Elektrokimyasal Ölçümler

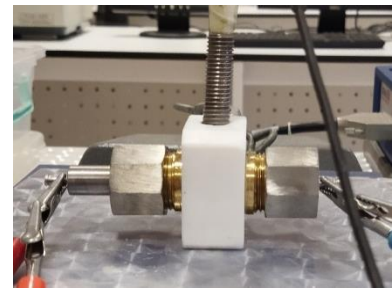
Elektrotların süperkapasitör performansına yönelik elektrokimyasal ölçümleri, laboratuvarımızda bulunan Gamry Interface 1010E potansiyostat/galvanostat cihazı kullanılarak gerçekleştirilmiştir. Elektrotların çalışma potansiyel aralıkları, spesifik kapasitans değerleri ve elektrokimyasal kararlılıkları, Swagelok tipi üç elektrotlu test hücresinde belirlenmiştir. Süperkapasitör aygıt performansına ilişkin enerji ve güç yoğunluğu gibi parametreler ise iki elektrotlu test hücresi kullanılarak değerlendirilmiştir (Şekil 3.4).



Gamry Interface 1010E



İki elektrotlu test hücresi



Üç elektrotlu test hücresi

Şekil 3.4. Potansiyostat / galvanostat cihazı ile iki ve üç elektrotlu test hücrelerinin gösterimi.

Elektrokimyasal performansın değerlendirilmesi amacıyla Fe<sub>2</sub>Al<sub>1-x</sub>B<sub>2</sub> aktif malzemesi, karbon siyahı ve politetrafloroetilen (PTFE, %60 ağırlıkça H<sub>2</sub>O dispersiyonu), ağırlıkça 85:10:5 oranında etanol içerisinde karıştırılmıştır. Elde edilen bulamaç (slurry), hava tabancası kullanılarak karbon kumaş (CC) akım toplayıcı üzerine homojen şekilde kaplanmış ve 60 °C’de 12 saat kurutulmuştur. Elektrokimyasal ölçümler, üç elektrotlu test hücresi konfigürasyonunda gerçekleştirilmiş olup, 3 M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> elektrolit olarak kullanılmıştır. Platin folyo karşıt elektrot, Ag/AgCl ise referans elektrot olarak görev yapmıştır.

Elektrotların gravimetrik (C<sub>s</sub>) spesifik kapasitansları, galvanostatik şarj/deşarj (GCD) ölçümü vasıtasıyla aşağıdaki denklemler yardımıyla hesaplanmıştır.

$$\text{Gravimetrik Kapasitans; } C_s = \frac{I \times \Delta t}{m \times \Delta V}$$

Burada,  $C_s$  ( $F \text{ g}^{-1}$ ); gravimetrik spesifik kapasitans, (I); sabit deşarj akımı (Amper), t (s); deşarj süresi, V (V); potansiyel aralık ve m (g); elektrotta bulunan elektroaktif malzemenin kütlesini ifade etmektedir. Elektrotların elektrokimyasal performansını deęerlendirmek amacıyla farklı tarama hızlarında ( $\text{mV s}^{-1}$ ) döngüsel voltametri (CV) ölçümleri ve farklı akım yoğunluklarında ( $\text{A g}^{-1}$ ) galvanostatik şarj/deşarj (GCD) ölçümleri belirli bir potansiyel aralığında (kullanılan elektrolitin kararlılık penceresine baęlı olarak) gerçekleştirilmiştir. Elektrokimyasal empedans spektroskopisi (EIS) ölçümleri ise 100 kHz ile 10 mHz frekans aralığında alınmıştır.

Günümüzde ticari elektriksel çift tabakalı kapasitörlerde (EDLC) en yaygın kullanılan elektrot malzemesi aktif karbon (AC) dur. Aktif karbon; kolay üretilebilirliği ve geniş bulunabilirliği, yüksek spesifik yüzey alanı ( $\sim 1000\text{--}3000 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$ ), yüksek kapasitans ve iyi elektriksel iletkenlik gibi avantajlı özelliklere sahiptir.



**Şekil 3.5.** Esnek ve serbest duran kâğıt formundaki aktif karbon elektrot.

Aktif karbon elektrotlar, sulu elektrolitlerde genellikle 1,0–1,2 V potansiyel aralığında çalışırken, organik elektrolitlerde bu çalışma aralığı 2,5–2,7 V seviyelerine kadar çıkabilmektedir (Borenstein vd., 2013). Bu çalışmada, iki elektrotlu asimetrik süperkapasitör (ASC) yapılarında karşıt elektrot olarak kullanılmak üzere aktif karbon elektrotlar hazırlanmıştır. Aktif karbon ve politetrafloroetilen (PTFE, %60 PTFE:H<sub>2</sub>O) bağlayıcı, ağırlıkça 95:5 oranında homojen bir karışım elde edilinceye kadar karıştırılmıştır. Elde edilen karışım, 80 °C’de 12 saat kurutularak kâğıt formunda aktif karbon elektrot hâline getirilmiştir (**Şekil 3.5**).

Elektrotlar arasındaki elektron transferi ile fiziksel teması da önlemek amacıyla iyi bir elektriksel yalıtkanlığa, elektrolit içerisindeki iyon difüzyonu esnasında minimum dirence ve iyi kimyasal kararlılığa sahip olan Celgard 3501 ayırıcı malzeme (separatör) kullanılmıştır. Enerji ve güç yoğunlukları aşağıdaki denklemler yardımıyla hesaplanmıştır (Tuzluca Yesilbag vd., 2025).

$$E = \frac{1}{2} C_s \Delta V^2 \quad P = \frac{E}{\Delta t}$$

### 3.5. Yük Depolama Mekanizması

Süperkapasitör elektrotlarında yük depolama mekanizmasının aydınlatılması amacıyla, farklı tarama hızlarında elde edilen CV verileri  $b$ -değeri analizi ve Dunn yöntemi kullanılarak değerlendirilmiştir. Tarama hızına bağlı akım yanıtı,  $i=av^b$  bağıntısı ile modellenmiş olup, burada  $i$  akımı,  $v$  tarama hızını,  $a$  ve  $b$  ise kinetik parametreleri temsil etmektedir. Logaritmik ölçekte çizilen  $\log(i)$ - $\log(v)$  grafiğinin eğimi olarak elde edilen  $b$  değeri, elektrotlarda baskın olan yük depolama mekanizmasına ilişkin doğrudan bilgi sunmaktadır (Shao vd., 2019).

Genel olarak  $b \approx 1$  değeri yüzey kontrollü kapasitif süreçlerin (elektrokimyasal çift tabaka kapasitansı ve/veya yüzeysel psödokapasitans) baskın olduğunu,  $b \approx 0,5$  değeri ise difüzyon kontrollü, batarya tipi yük depolama davranışını işaret etmektedir. Elde edilen  $b$  değerlerinin 0,5 ile 1,0 aralığında yer alması, elektrotlarda hem kapasitif hem de difüzyon kontrollü süreçlerin birlikte rol oynadığını göstermekte ve hibrit bir yük depolama mekanizmasına işaret etmektedir.

Tabakalı yapıya sahip elektrot malzemelerinde, yüzey kontrollü kapasitif süreçler ile sınırlı iyon difüzyonuna dayalı faradayik katkılar eşzamanlı olarak gerçekleşebilmektedir. Bu tür sistemlerde, malzemenin özgül yüzey alanı, iletkenliği ve tabakalar arası yapısal özellikleri, yük depolama mekanizmasının doğasını belirleyen temel parametrelerdir.

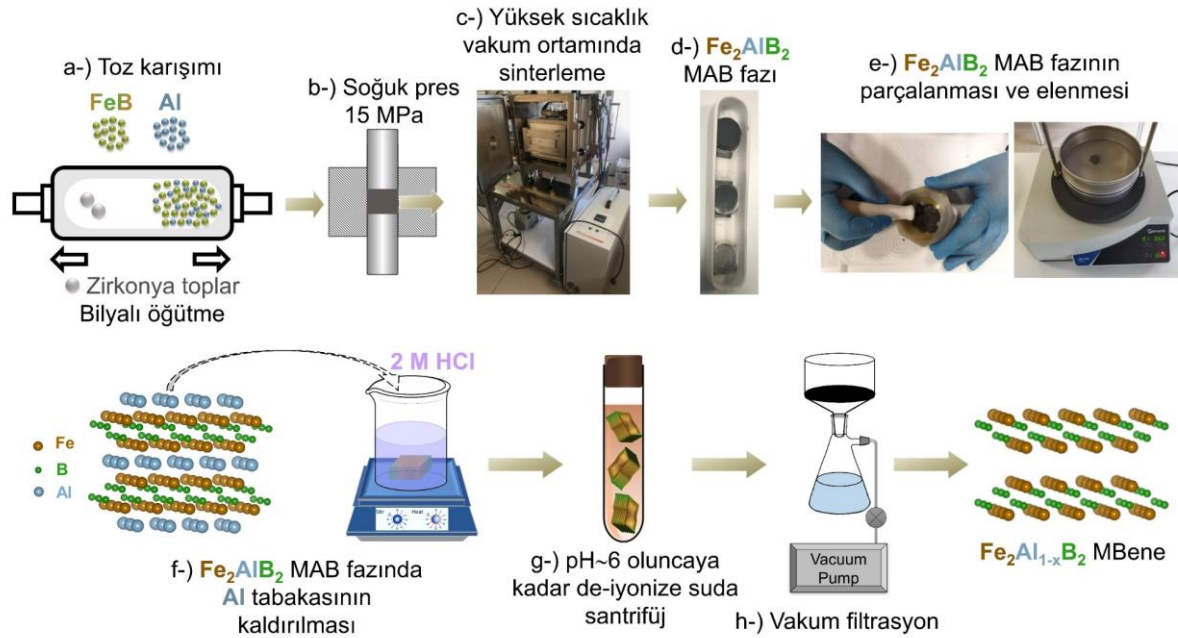
Yük depolama katkılarının nicel olarak ayrıştırılabilmesi amacıyla Dunn yöntemi uygulanmıştır. Bu yaklaşımda, belirli bir potansiyelde ölçülen akımın, tarama hızına bağlı olarak kapasitif ve difüzyon kontrollü bileşenlerden oluştuğu kabul edilmekte ve toplam akım  $i(V)=k_1v+k_2v^{1/2}$  ifadesi ile tanımlanmaktadır. Burada  $k_1v$  terimi yüzey kontrollü kapasitif katkıyı,  $k_2v^{1/2}$  terimi ise iyon difüzyonu kontrollü faradayik katkıyı temsil etmektedir.

Bu çalışmada elde edilen elektrotların yük depolama davranışı,  $b$ -değeri ve Dunn analizi sonuçları dikkate alınarak değerlendirilmiş ve kapasitif ile difüzyon kontrollü süreçlerin birlikte katkı sağladığı bir mekanizma kapsamında yorumlanmıştır.

## 4. ARAŞTIRMA BULGULARI

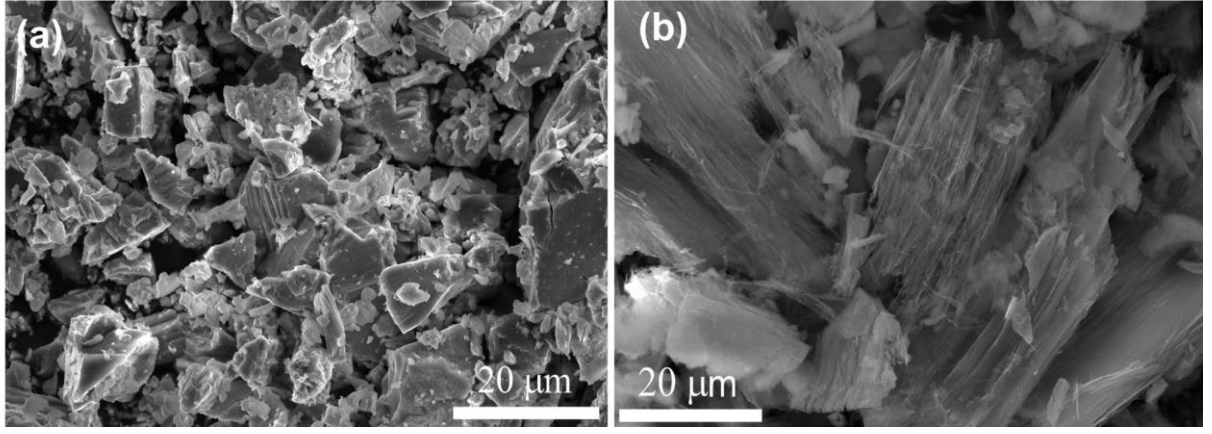
### 4.1. $Fe_2AlB_2$ MAB Fazının ve $Fe_2Al_{1-x}B_2$ MBene'nin Yapısal ve Morfolojik Analizleri

Şekil 4.1 (a–e)'de  $Fe_2AlB_2$  MAB fazının sentez adımları gösterilirken, Şekil 4.1 (f–h)'de  $Fe_2Al_{1-x}B_2$  MBene sentez sürecinin şematik diyagramı sunulmuştur. FeB ve Al tozları zirkonya bilyeleri ile bilyalı değirmende karıştırılmış, elde edilen toz karışımı 15 MPa basınç altında soğuk preslenmiş ve vakum ortamında yüksek sıcaklıkta sinterlenerek  $Fe_2AlB_2$  MAB fazı elde edilmiştir. Sinterleme sonrası numuneler öğütülerek elenmiş, Al tabakaları 2 M HCl ile seçici olarak uzaklaştırılmıştır. Aşındırma işlemi takiben numuneler pH ~6'ya kadar yıkanmış ve vakum filtrasyonu ile  $Fe_2Al_{1-x}B_2$  MBene yapısı elde edilmiştir.



Şekil 4.1.  $Fe_2AlB_2$  MAB fazı ve  $Fe_2Al_{1-x}B_2$  MBene sentez sürecinin şematik gösterimi: (a) FeB ve Al tozlarının YSZ bilyeleri ile karıştırılması, (b) 15 MPa'da soğuk presleme, (c,d) vakumda sinterleme ile  $Fe_2AlB_2$  oluşumu, (e) öğütme ve eleme, (f) 2 M HCl ile Al tabakalarının aşındırılması (4 h), (g) santrifüjleme ve yıkama (pH ~6), (h) vakum filtrasyonu.

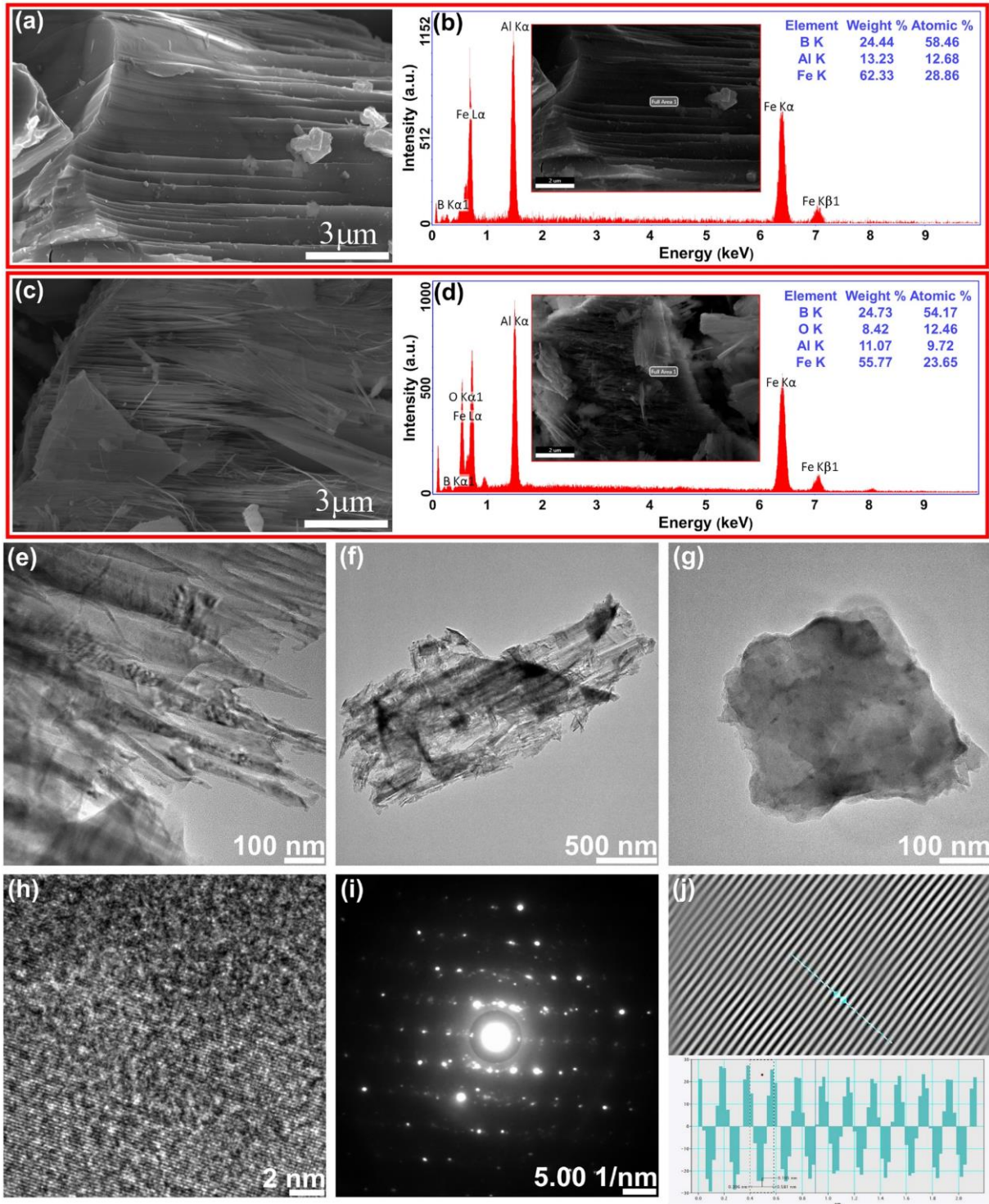
$Fe_2AlB_2$  MAB fazına ait FESEM görüntüsü Şekil 4.2 (a)'da verilmiştir. Mikroyapısal analiz,  $Fe_2AlB_2$  MAB fazının, MAX fazlarında gözlenen morfolojiye benzer şekilde tabakalı bir yapı sergilediğini ortaya koymaktadır (Zhang vd., 2018). Sentezlenen MAB tozunun ortalama parçacık boyutu yaklaşık 40  $\mu m$  olarak belirlenmiştir (Şekil 4.2 (a)).



**Şekil 4.2.** (a)  $\text{Fe}_2\text{AlB}_2$  MAB fazının düşük büyütme FESEM görüntüsü, (b)  $\text{Fe}_2\text{Al}_{1-x}\text{B}_2$  MBene'nin FESEM görüntüsü.

$\text{Fe}_2\text{AlB}_2$  MAB fazının elementel bileşimi, **Şekil 4.3** (b)'de gösterildiği üzere EDS ile analiz edilmiştir. Sonuçlar, herhangi bir tespit edilebilir safsızlık olmaksızın Fe, Al ve B elementlerinin varlığını doğrulamış ve  $\text{Fe}_2\text{AlB}_2$  fazının başarılı bir şekilde sentezlendiğini göstermiştir. Bununla birlikte, bor gibi hafif elementlerin düşük yoğunlukları ve düşük X-ışını emisyonları nedeniyle EDS analizinde atomik yüzdelerde küçük sapmalar gözlenmiştir.

$\text{Fe}_2\text{AlB}_2$  MAB fazındaki Al tabakalarını seçici olarak uzaklaştırmak amacıyla, oda sıcaklığında 4 saat boyunca düşük derişimli 2 M HCl asit çözeltisi kullanılmıştır. Aşındırma işleminden sonra elde edilen toz, artık asidin uzaklaştırılması için deiyonize su ile iyice yıkanmıştır. **Şekil 4.3** (c)'de verilen FESEM görüntüsü,  $\text{Fe}_2\text{Al}_{1-x}\text{B}_2$  MBene'in, MXene'lerde tipik olarak gözlenen morfolojiye benzer akordiyon benzeri bir yapı sergilediğini ortaya koymaktadır. Ayrıca, **Şekil 4.2** (b)'de sunulan FESEM görüntüleri, tabakaların ayrıştığı ve akordiyon benzeri MBene yapısının başarılı bir şekilde oluştuğunu doğrulamaktadır. Elde edilen morfoloji, oldukça ince ve birbirine bağlı tabakalar içermekte olup, aşındırma işlemiyle kütleli MAB fazından MBene yapısına gerçekleşen yapısal dönüşümün açık bir göstergesidir. **Şekil 4.3** (d)'de verilen EDS sonuçları, MBene yapısındaki Al içeriğinin başlangıçtaki MAB fazına kıyasla %24 oranında azaldığını ve böylece aşındırma işleminin etkinliğini doğrulamaktadır. Ayrıca, EDS ölçümlerinde yabancı elementlerin bulunmaması ve oksijen varlığının tespit edilmesi, aşındırma süreci sırasında oluşan yüzey sonlandırmalarına atfedilebilir. Aşındırılmış 2B malzemelerde yaygın olan bu yüzey sonlandırmaları, MBene yapısının kimyasal özelliklerini ve potansiyel uygulama alanlarını olumlu yönde etkilemektedir.



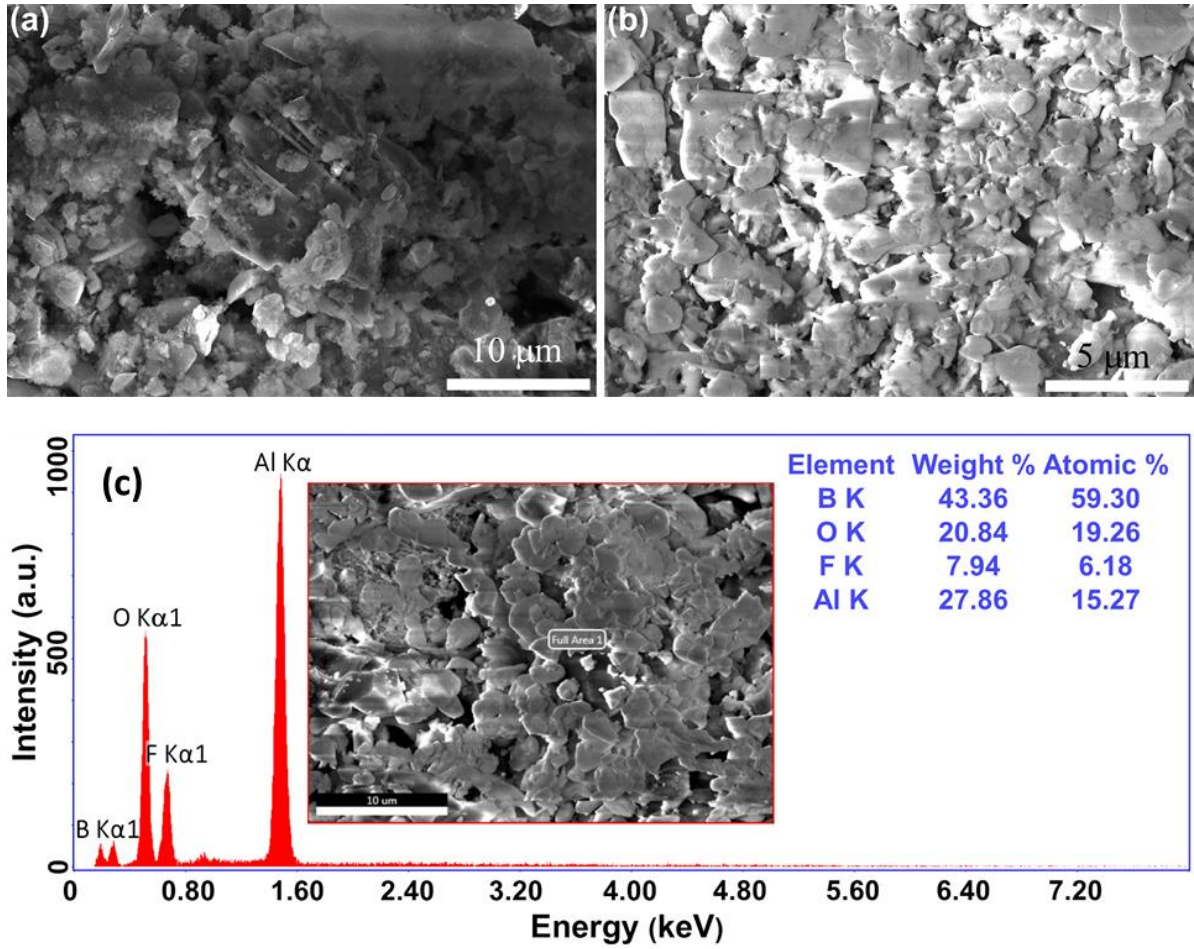
**Şekil 4.3.** (a)  $\text{Fe}_2\text{AlB}_2$  MAB fazına ait FESEM görüntüsü, (b) EDS analizi (c)  $\text{Fe}_2\text{Al}_{1-x}\text{B}_2$  MBene'e ait FESEM görüntüsü, (d) EDS sonuçları, (e-g) Farklı büyütmelerde alınan TEM görüntüleri, (h) HR-TEM görüntüsü, (i) SAED deseni, (j) düzlemler arası mesafe.

MBene yapısına ait farklı büyütmelerde elde edilen TEM görüntüleri **Şekil 4.3** (e–g)'de sunulmaktadır. Özellikle, **Şekil 4.3** (e)'de akordiyon benzeri yapılar gözlenirken, **Şekil 4.3** (f ve g)'de istiflenmiş ve tabakalı levhalarla karakterize edilen tipik 2B bir morfoloji görülmektedir. Ayrıca, **Şekil 4.3**'de verilen yüksek çözünürlüklü TEM (HR-TEM) görüntüsü,

atomik düzlemlerin net bir şekilde çözümlendiğini ortaya koyarak kristalin yapının korunduğunu doğrulamaktadır. Bu gözlem, **Şekil 4.3 (i)**'de sunulan seçilmiş alan elektron kırınımı (SAED) deseni ile de desteklenmektedir; söz konusu desen, malzemenin polikristalin doğasına işaret eden keskin ve simetrik kırınım noktaları sergilemektedir. **Şekil 4.3 (j)**'de, HR-TEM görüntüsüne dayalı olarak gerçekleştirilen düzlemler arası mesafe analizi sunulmakta olup, Gatan yazılımı kullanılarak elde edilen çizgi profiliyle birlikte 0.185 nm'lik bir kafes aralığı ortaya konulmaktadır. Bu sonuçlar, tabakalı MBene yapısının yapısal homojenliğini açıkça göstermektedir (Zhang vd., 2023c).

Literatürde, MAB fazlarından MBene yapılarının sentezi için aşındırıcı türü, sıcaklık ve süre gibi çeşitli aşındırma parametreleri ayrıntılı olarak incelenmiştir (Zhang vd., 2018) [9,27,32,39]. Alemada ve arkadaşları, florür bazlı aşındırıcılar (HF, LiF/HCl) veya NaOH gibi güçlü alkali bileşikler kullanılarak MoAlB MAB fazından yaklaşık %25 oranında Al'ın başarıyla uzaklaştırıldığını rapor etmiştir (Alameda vd., 2017). Bir başka çalışmada, oda sıcaklığında 24 saat boyunca %1 (ağırlıkça) NaOH kullanılmasıyla da yaklaşık %25 Al aşındırmasının sağlandığı gösterilmiştir (Wei vd., 2023). Ancak, hidrotermal yöntemle NaOH derişimi ve sıcaklığının artırılması, aşındırma verimliliğinde bir artış sağlamamıştır. Wei ve arkadaşları, LiF/HCl kullanılarak gerçekleştirilen Al tabakalarının heterojen aşındırılmasının, AlF<sub>3</sub> ve Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> parçacıklarının oluşumuna ve MAB fazında çatlakların meydana gelmesine yol açtığını göstermiştir (Wei vd., 2023). Buna rağmen, LiF/HCl ile elde edilen Al aşındırma oranı, NaOH yöntemiyle sağlanandan daha düşük kalmıştır.

Bugüne kadar, MAB fazlarında 2B tabakaların tam olarak aşındırılmaması veya oksitlenmesi, A ve B atomları arasındaki güçlü bağlara atfedilen önemli bir zorluk olarak öne çıkmaktadır. Borun yüksek reaktivitesi ve güçlü B–A bağı, aşındırıcı ajanların MAB fazının 2B tabakalarına nüfuz etmesini zorlaştırmaktadır. Bu çalışmada, Fe<sub>2</sub>AlB<sub>2</sub> MAB fazının oda sıcaklığında 4 saat boyunca %40 HF asit çözeltisi ile aşındırılması, **Şekil 4.4 (c)**'te gösterildiği üzere nanoparçacık oluşumuna yol açmıştır. Ayrıca, farklı derişim ve sürelerde LiF/HCl asit çözeltileri kullanılmış olsa da bu çözeltiler Al tabakalarını seçici olarak uzaklaştırmak yerine MAB fazını tamamen çözmüştür (**Şekil 4.4 (a, b)**). Bu bulgular, seçici aşındırma için güçlü flor bazlı asitler yerine daha zayıf asitlerin tercih edilmesi gerektiğini göstermektedir.

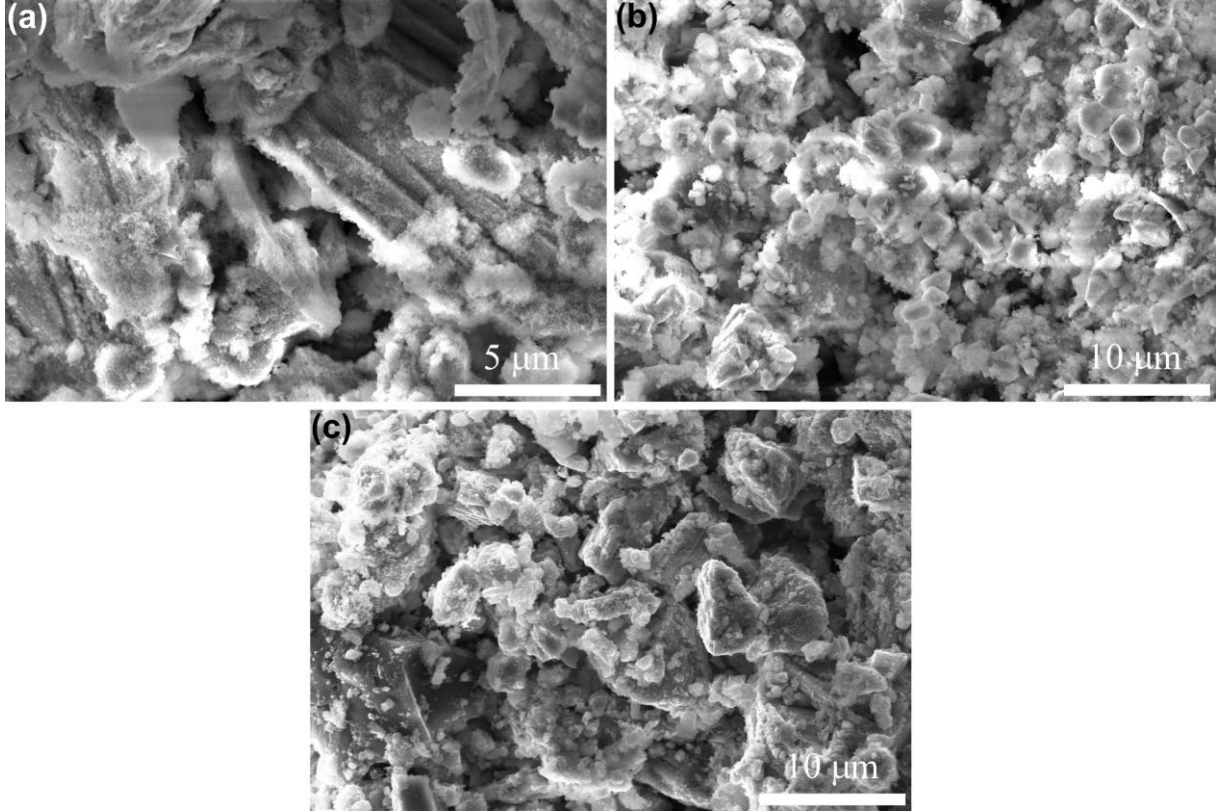


**Şekil 4.4.** Farklı molaritelerde ve aşındırma sürelerinde LiF:HCl asidi kullanılarak gerçekleştirilen deneylerin FESEM görüntüleri, (a) 1 g LiF ve 6M HCl ve 15 saatlik aşındırmadan sonrası; (b) 1,8 g LiF ve 9M HCl, 48 saatlik aşındırmadan sonrası, (c) %40'luk HF asidi kullanılarak gerçekleştirilen deneylerin FESEM görüntüleri.

MXene yapılarının sentezinde yaygın olarak kullanılan aşındırıcılarla karşılaştırıldığında, 2 M HCl çözeltisi, maliyet etkinliği ve nispeten yumuşak aşındırma özellikleri nedeniyle  $Fe_2AlB_2$  MAB fazı için en uygun aşındırıcı olarak öne çıkmaktadır. Ancak, farklı molaritelerde ve aşındırma sürelerinde HCl çözeltileriyle gerçekleştirilen deneylerimiz, **Şekil 4.5'te** gösterildiği üzere istenen aşındırma sonuçlarını vermemiştir. Bu durum, MAB ve MAX fazları arasındaki yapısal ve kimyasal aşındırma davranışındaki temel farkı vurgulamaktadır. MAX fazlarından MXene sentezi, güçlü ve kararlı M–X bağları nedeniyle genellikle agresif koşullar gerektirirken, MAB fazlarındaki nispeten daha zayıf M–B ve M–A bağları, daha yumuşak reaktifler kullanılarak seçici aşındırmaya olanak tanımaktadır (Guo vd., 2017).

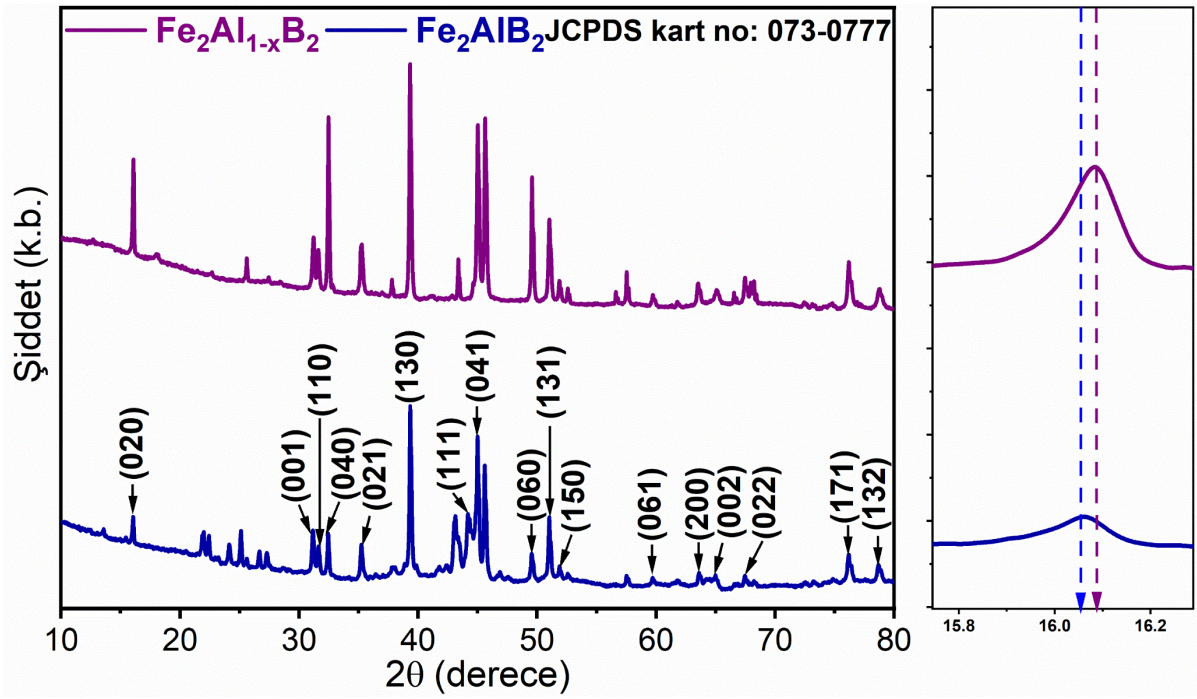
Özetle, MAX fazlarındaki M–X bağları, MAB fazlarındaki M–B bağlarına kıyasla çok daha güçlü ve kimyasal olarak daha karardır; bu nedenle MXene sentezi genellikle HF gibi daha agresif aşındırıcı ajanlar gerektirir. Buna karşılık, MAB fazları daha yumuşak koşullar altında

kısmi veya tam delaminasyona imkân tanımaktadır. Bağlanma dayanımındaki bu temel fark, MXene veya MBene malzemelere başarılı dönüşüm için gerekli aşındırıcı türü, derişimi ve süresinin belirlenmesinde kritik bir rol oynamaktadır.  $Fe_2Al_{1-x}B_2$  MAB türevli MBene özelinde, yüksek derişimli HCl çözeltileri yapısal bozulmaya yol açarak akordiyon benzeri morfolojinin çökmesine ve düzensiz nanoparçacıkların oluşmasına neden olmaktadır. Bu nedenle, karakteristik 2B mimarinin korunabilmesi için düşük derişimli HCl kullanılarak yumuşak koşullarda aşındırma tercih edilmelidir.



**Şekil 4.5.** Farklı molaritelerde ve aşındırma sürelerinde HCl asidi kullanılarak gerçekleştirilen deneylerin FESEM görüntüleri. (a) 8 saat 2M HCl; (b) 4 saat 4M HCl; (c) 12 saat 4M HCl.

Deneysel çalışmalar, MAB fazlarının başarılı bir şekilde sentezlenebilmesi için öncü malzemelerin seçimi, pelet oluşturma sırasında uygulanan basınç, sinterleme yöntemi, sıcaklık ve ısıl işlem süresinin kritik parametreler olduğunu vurgulamaktadır. **Şekil 4.6**'de, 1200 °C'de 2 saat sinterlenen öncül malzemelere ait XRD desenleri sunulmaktadır.  $Fe_2AlB_2$  MAB fazı ile  $Fe_2Al_{1-x}B_2$  MBene'e ait XRD sonuçlarının karşılaştırmalı analizi **Şekil 4.6** (a)'da gösterilmiştir. JCPDS kart numarası 073-0777'ye göre, ortorombik kristal yapıya sahip olan  $Fe_2AlB_2$  MAB fazı,  $Fe_2Al_{1-x}B_2$  MBene'e oldukça benzer kırınım desenleri sergilemektedir.

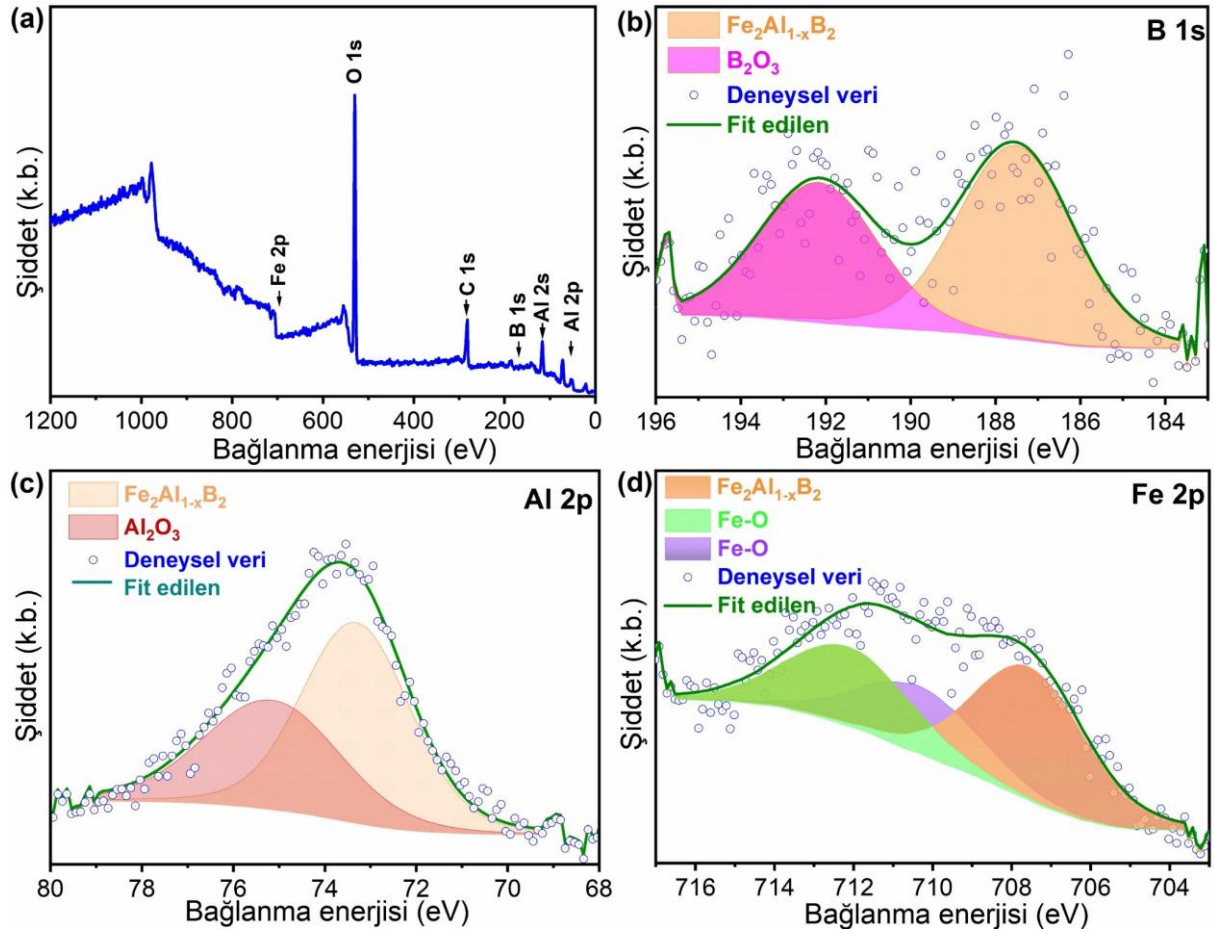


**Şekil 4.6.** (a)  $\text{Fe}_2\text{AlB}_2$  MAB fazı ve  $\text{Fe}_2\text{Al}_{1-x}\text{B}_2$  MBene'e ait XRD kırınım desenleri, (b)  $\text{Fe}_2\text{Al}_{1-x}\text{B}_2$  MBene'de (020) kristal düzlemine ait pik kayması.

**Şekil 4.6** (b)'de,  $\text{Fe}_2\text{Al}_{1-x}\text{B}_2$  MBene'e ait XRD deseninde yaklaşık  $16^\circ$  civarında geniş bir pik gözlenmektedir. Bu geniş pik, (020) kırınım düzleminin  $2\theta$  değerinde hafifçe daha yüksek açılara kaymasıyla birlikte, MBene'in akordiyon benzeri yapısına ve aşındırma işleminden sonra örgü parametresinde (c-LP) meydana gelen değişimlere atfedilmektedir (Xiong vd., 2022). XRD deseni aynı zamanda baskın olarak  $\text{Fe}_2\text{AlB}_2$  MAB fazının varlığını göstermekte olup,  $\text{Al}_{13}\text{Fe}_4$  ve FeB fazlarına ait zayıf pikler de tespit edilmiştir (Zhang vd., 2018).  $\text{Fe}_2\text{AlB}_2$  MAB fazının başarılı bir şekilde sentezlenmesi, esas olarak Al içeren öncül malzemelerin seçimine ve optimize edilmiş sinterleme sıcaklığına bağlanmaktadır. MAB fazında  $\text{Al}_2\text{O}_3$  tespit edilmesi ise, öncül tozların yüzeylerinde adsorplanmış oksijen ile Al arasındaki etkileşimlerin bir sonucu olarak değerlendirilmektedir (Liu vd., 2018).

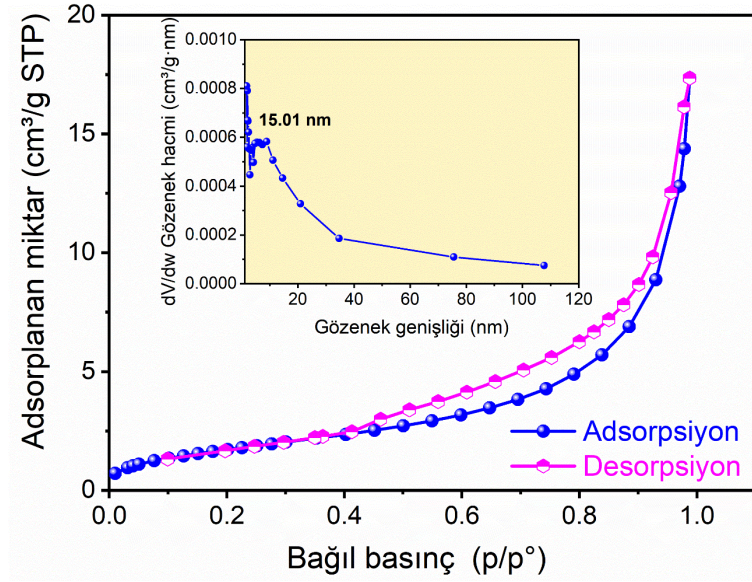
$\text{Fe}_2\text{Al}_{1-x}\text{B}_2$  MBene'e ait XPS spektrumu **Şekil 4.7**'de sunulmaktadır. Tam spektrum taraması, Al, B, C, O ve Fe elementlerine karşılık gelen pikleri ortaya koyarak MBene'in elementel bileşimini doğrulamaktadır. **Şekil 4.7** (b)'de, B 1s spektrumu 187.5 eV ve 192.2 eV bağlanma enerjilerine sahip iki pike ayrıştırılmış olup, bu pikler sırasıyla B-Fe etkileşimlerine ve  $\text{B}_2\text{O}_3$ 'e atfedilmektedir (Natu vd., 2020). **Şekil 4.7** (c)'de verilen Al 2p spektrumu ise, 73.3 eV ve 75.1 eV bağlanma enerjilerinde iki belirgin pik içermekte olup, bunlar sırasıyla  $\text{Fe}_2\text{Al}_{1-x}\text{B}_2$  MBene ve  $\text{Al}_2\text{O}_3$  fazlarına karşılık gelmektedir. Benzer şekilde, **Şekil 4.7** (d)'de sunulan Fe 2p spektrumu, 707.7 eV, 710.6 eV ve 712.3 eV bağlanma enerjilerinde pikler sergilemekte; bu

pikler sırasıyla  $\text{Fe}^{2+}$ ,  $\text{Fe}^{3+}$  ve  $\text{Fe}_2\text{Al}_{1-x}\text{B}_2$  MBene'e atfedilmektedir. Tam spektrum taramasında gözlenen O 1s piki ise, aşındırma işlemi sırasında kaçınılmaz olarak oluşan ve büyük olasılıkla havaya maruz kalma sonucu meydana gelen yüzey oksit tabakasına bağlanmaktadır.



**Şekil 4.7.** (a)  $\text{Fe}_2\text{Al}_{1-x}\text{B}_2$  MBene'e ait XPS tam spektrum, (b) B 1s spektrumu, (c) Al 2p spektrumu, (d) Fe 2p spektrumu.

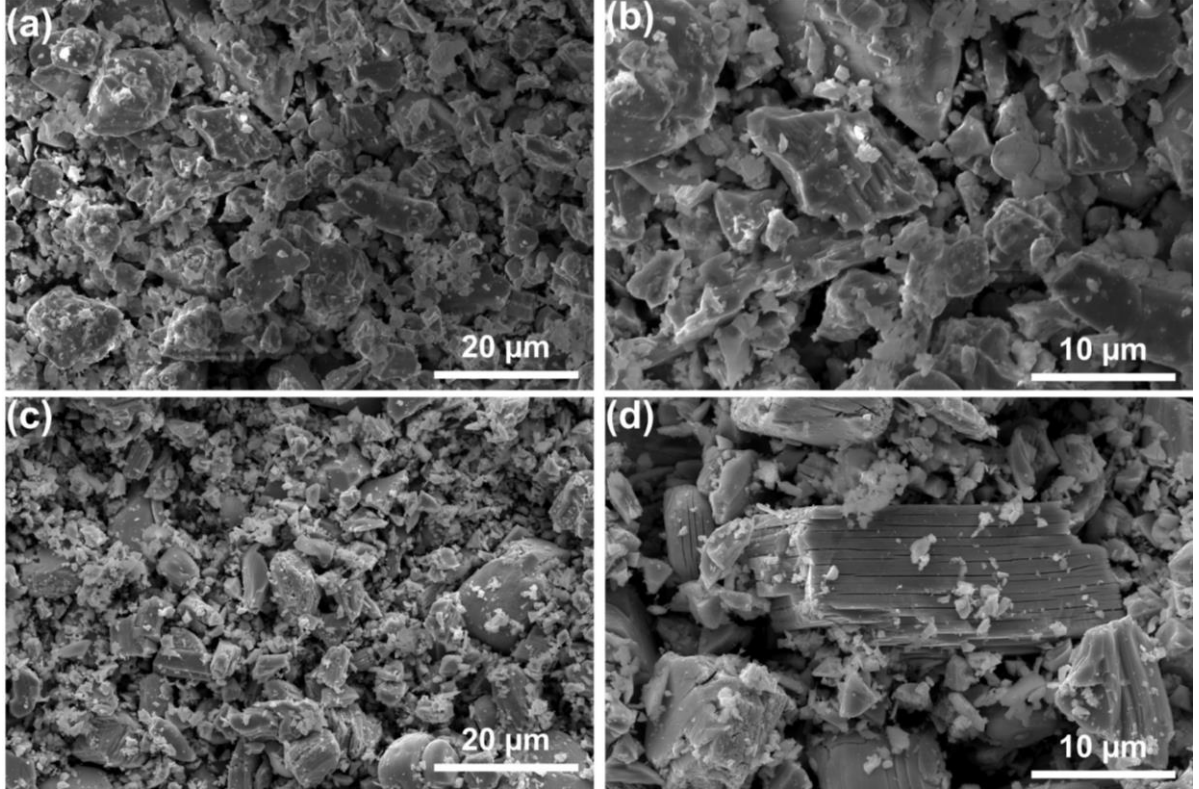
$\text{Fe}_2\text{Al}_{1-x}\text{B}_2$  MBene'in spesifik yüzey alanı ve gözenek boyutu dağılımı, **Şekil 4.8'de** gösterildiği üzere azot adsorpsiyon–desorpsiyon izotermine dayanarak değerlendirilmiştir. BET spesifik yüzey alanı  $5,12 \text{ m}^2/\text{g}$  olarak hesaplanmış olup, bu değer elektrokimyasal uygulamalarda iyon taşınımını ve yük depolanmasını kolaylaştırabilecek orta düzeyde gelişmiş bir yüzeye işaret etmektedir. Ayrıca, gözenek boyutu dağılım eğrisi, ortalama gözenek çapının yaklaşık  $15.01 \text{ nm}$  olduğunu göstermekte ve malzemenin mezogözenekli karakterini doğrulamaktadır. Mezogözeneklilik ile orta seviyedeki yüzey alanının birlikte bulunması, etkin iyon taşınımını destekleyerek  $\text{Fe}_2\text{Al}_{1-x}\text{B}_2$  MBene elektrodunun elektrokimyasal performansını artırması beklenen bir özelliktir.



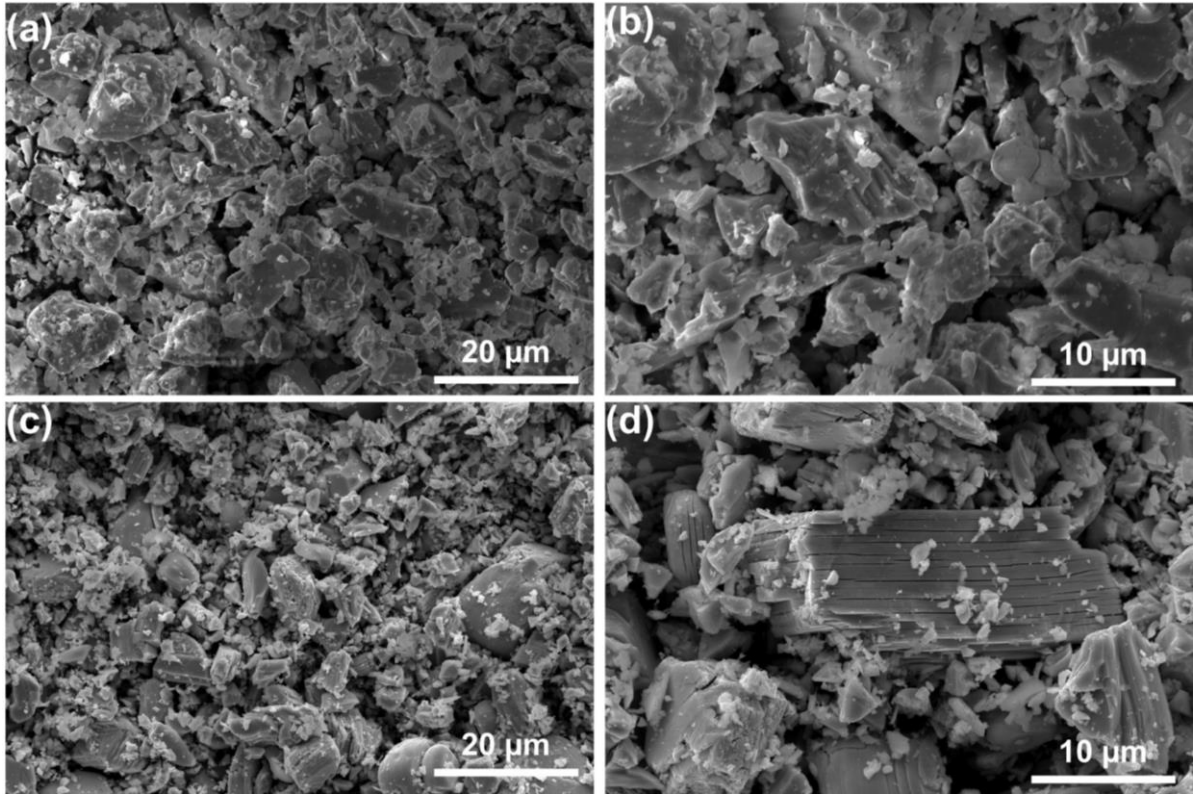
Şekil 4.8. Fe<sub>2</sub>Al<sub>1-x</sub>B<sub>2</sub> MBene'nin azot adsorpsiyon-desorpsiyon izotermi ve BJH gözenek boyutu dağılımı.

#### 4.2. MoAlB MAB Fazının ve MoAl<sub>1-x</sub>B MBene'nin Yapısal ve Morfolojik Analizleri

MoAlB MAB fazının elde edilmesinde öncü malzeme olarak MoB ve Al sırasıyla 2:1.3 oranında karıştırılmış ve 15 MPa pres uygulanarak 1400 °C sıcaklıkta 4 saat sinterlenmesiyle elde edilmiş olup MoAlB MAB fazına ait FESEM görüntüleri de

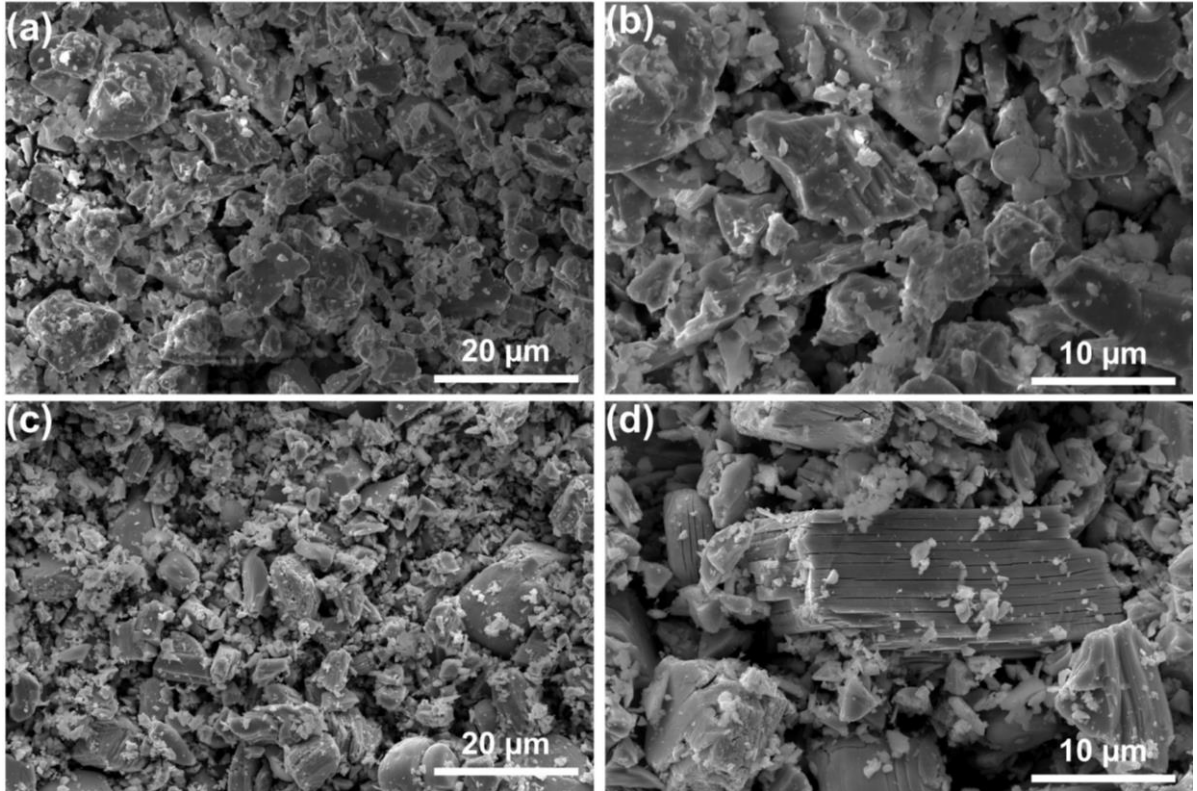


Şekil 4.9 (a, b)'de verilmiştir.

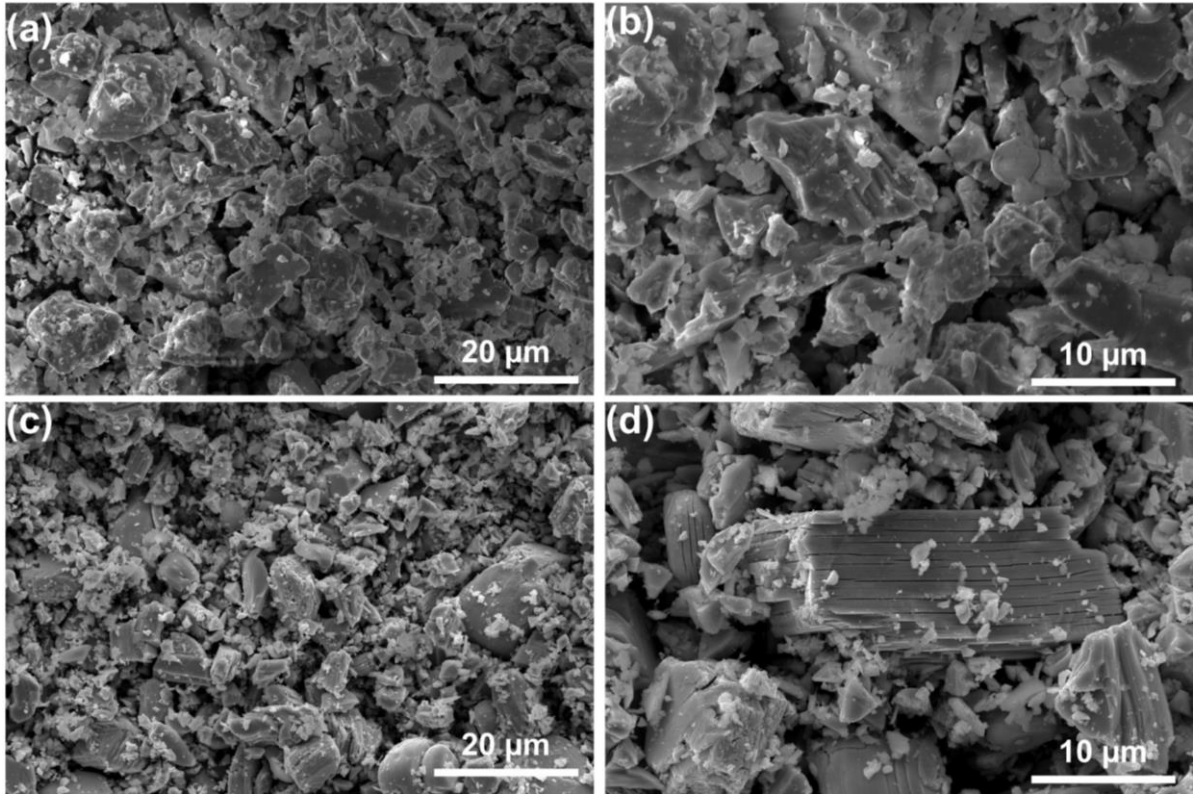


**Şekil 4.9.** (a, b) MoAlB MAB fazı ve (c, d) MoAl<sub>1-x</sub>B MBene yapılarının FESEM görüntüleri.

MoAlB fazı, daha önce diğer araştırmacılar tarafından da ortaya konulduğu gibi tipik bir tabakalı yapıya sahip olduğu görülmektedir (Bury vd., 2023).

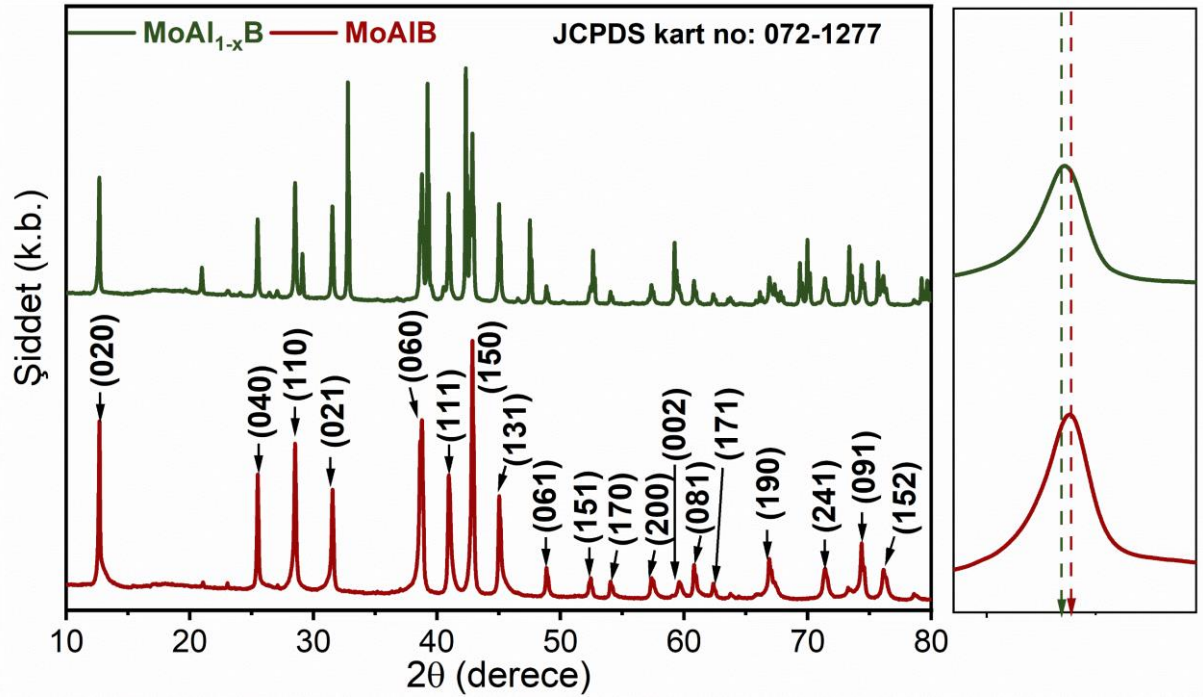


**Şekil 4.9** (c, d)'de  $\text{MoAl}_{1-x}\text{B}$  MBene, çok tabakalı levha yapısı nedeniyle aşındırılmış 2B malzemenin tipik morfolojisini gösterilmektedir. Literatürde çok tabakalı veya tabakalı yapıya sahip olan  $\text{MoAlB}$ 'dan Al tabakalarının aşındırılması için seyreltilmiş HCl veya HF asitleri aşındırıcı olarak Alameda ve arkadaşları kullanmışlardır (Alameda vd., 2019).  $\text{MoAlB}$  fazından oda sıcaklığında seçici olarak Al tabakalarının aşındırılarak  $\text{MoAl}_{1-x}\text{B}$  sentezi gerçekleştirilmiştir. Literatürde daha önce kullanılan 9 M HCl ve %0,3  $\text{H}_2\text{O}_2$ 'den oluşan çözelti ile deneyler yapılmıştır (Bury vd., 2023). Bu işlemde  $\text{MoAlB}$  tozu 9 M HCl ve %0,3  $\text{H}_2\text{O}_2$  sulu çözeltisine yavaş yavaş eklenmiş ve numune buz banyosunda karıştırılmıştır. HCl ve  $\text{H}_2\text{O}_2$ 'nin 10 dakika karıştırılmasından sonra az miktarda yeşilimsi  $\text{Cl}_2$  gazı açığa çıkmaktadır. Gaz halindeki klorun tehlikeli olması nedeniyle aşındırma işleminin kimyasal çeker ocakta gerçekleştirilmesi önemli olmaktadır.  $\text{Cl}_2$ 'nin ortaya çıkması HCl ile  $\text{H}_2\text{O}_2$  arasında bir reaksiyonun işareti olsa da reaktan konsantrasyonunun seyreltilmesine izin vermemek için MAB fazının verimli bir şekilde eklenmesi önemlidir (Bury vd., 2023).  $\text{MoAlB}$  tozu HCl/ $\text{H}_2\text{O}_2$  çözeltisine kademeli olarak eklenirken ekzotermik aşındırma reaksiyonu en aza indirilmesi sağlanmış olur.

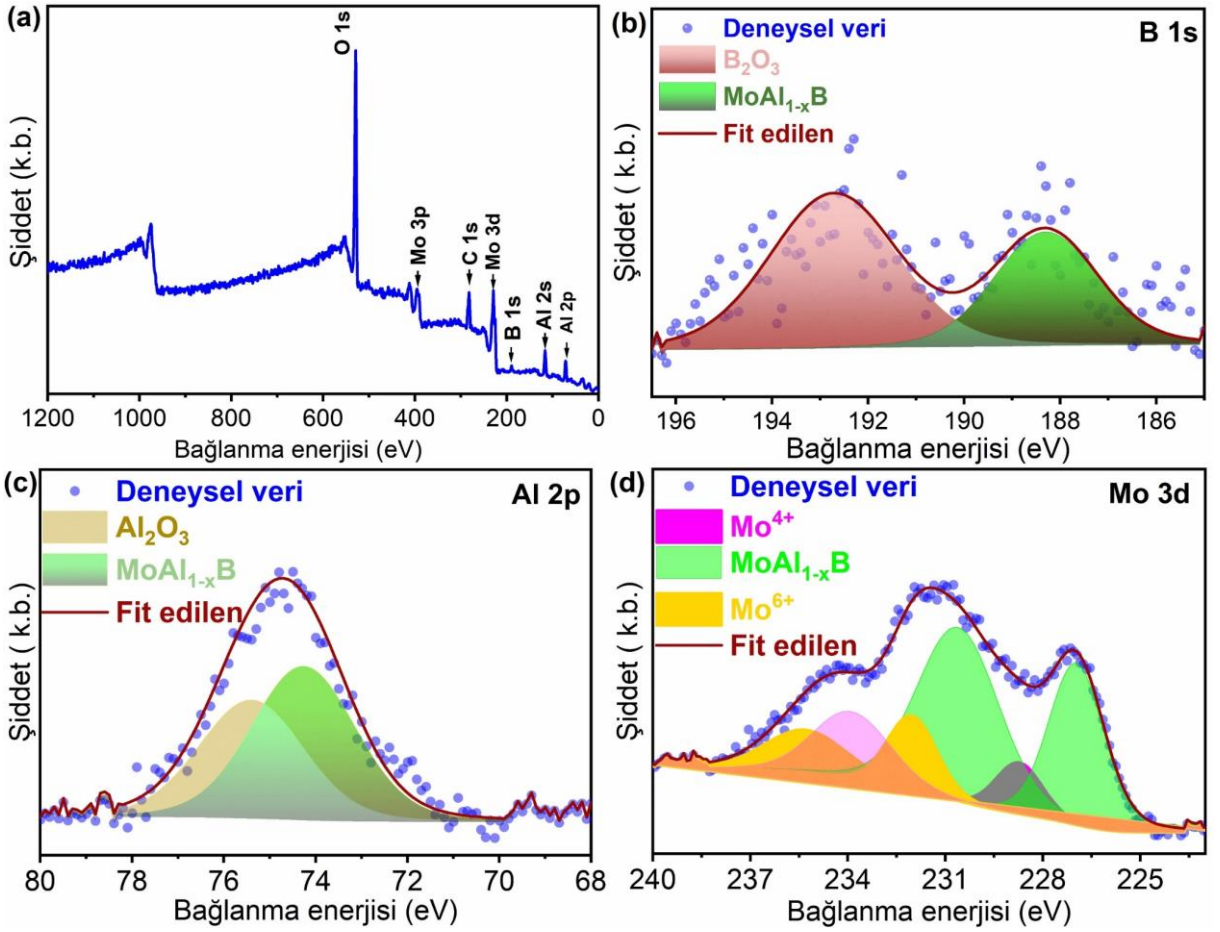


**Şekil 4.9** (c, d)'de FESEM görüntüleri, 24 saatlik aşındırma işleminden sonra, kalınlığı 50 ila 500 nm arasında değişen  $\text{MoAl}_{1-x}\text{B}$  MBene'nin 10–200 nm aralıklarla periyodik boşluklar sergilediğini göstermektedir.

MoAlB MAB fazının ve MoAl<sub>1-x</sub>B MBene'nin XRD sonuçlarının bir **Şekil 4.10** (a)'da görülebilir. 072-1227 numaralı JCPDS kartına göre ortorombik kristal yapıya sahip olan MoAlB MAB fazı, MoAl<sub>1-x</sub>B MBene yapısı ile hemen hemen aynı kırınım modellerini sergilemiştir. **Şekil 4.10** (a)'daki XRD analizi, daha önce yapılan teorik ve deneysel çalışmalarla iyi bir şekilde eşleştiğinden, iyi bir MoAlB elde edildiğini doğrulamaktadır (Alemada vd., 2019; Bury vd., 2023). Oda sıcaklığında 24 saat boyunca HCl/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> ile aşındırıldıktan sonra MoAl<sub>1-x</sub>B'yi veren MoAlB'nin XRD'si **Şekil 4.10**'de gösterilmektedir. XRD desenleri arasındaki en dikkate değer fark, MoAl<sub>1-x</sub>B'nin XRD desenindeki piklerin çoğu için MoAlB'ye kıyasla geniş tepe noktalarının ortaya çıkmasıdır (Alemada vd., 2019). Bu fark MoAlB MAB fazından Al'nin belirli oranda aşındırılmasından kaynaklanabilir. **Şekil 4.10** (b)'de MoAl<sub>1-x</sub>B MBene yapısında 12° civarında geniş bir tepe noktası vardır. MBene'nin aşındırılması ve delaminasyonu sonucunda (020) kırınım düzlemi az da olsa daha düşük bir 2θ'ya kaymıştır.



**Şekil 4.10.** (a) MoAlB MAB ve MoAl<sub>1-x</sub>B MBene yapılarının XRD kırınım desenleri, (b) (020) kristal düzleminin tepe kayması.



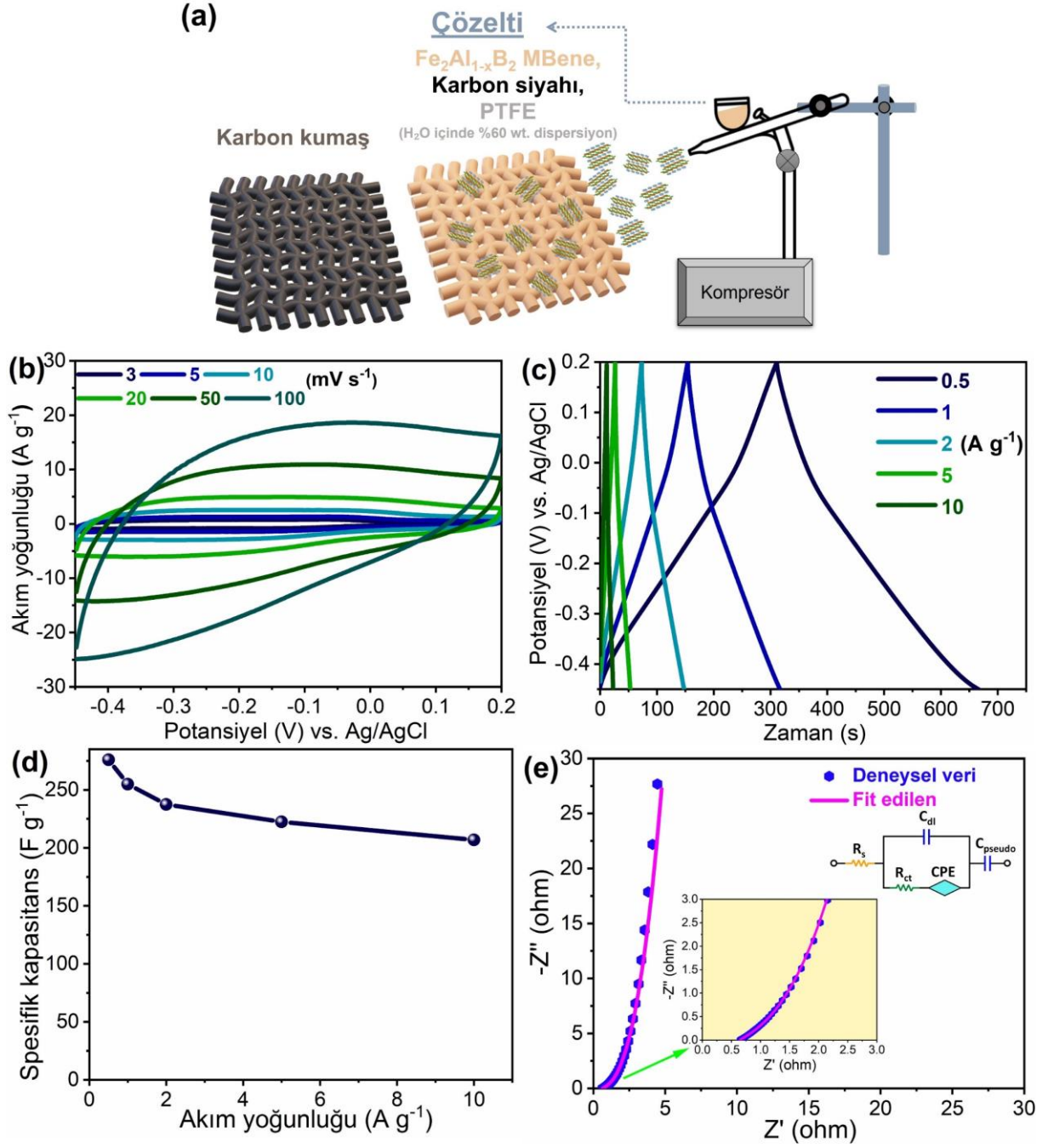
**Şekil 4.11.** (a)  $\text{MoAl}_{1-x}\text{B}$  MBene yapısının XPS spektrumu, sırasıyla (b) B 1s, (c) Al 2p ve (d) Mo 3d'in dekonvüle edilmiş yüksek çözünürlüklü spektrumları.

$\text{MoAl}_{1-x}\text{B}$  MBene'nin temel bileşimini ortaya koyabilmek için enerji dağılımlı X-ışını spektroskopisi kullanılmış ve **Şekil 4.11** (a)'da bu MBene yapısına ait tam spektrum verilmiştir. Geniş alanda yapılan tarama sonucunda spektrumda Al, B, Mo, C ve O pikleri yer almaktadır. **Şekil 4.11** (b)'deki  $\text{MoAl}_{1-x}\text{B}$  MBene'nin B 1s piki 188.3 eV ve 192.4 eV bağlanma enerjisine karşılık gelen iki tepe noktasına fit edilmiş olup bu pikler sırasıyla B-Mo etkileşimine ve bor oksit türlerine atfedilebilir (Natu vd., 2020). (**Şekil 4.11** (c)'deki Al 2p spektrumu, sırasıyla  $\text{MoAl}_{1-x}\text{B}$  MBene ve  $\text{Al}_2\text{O}_3$ 'e atfedilen, 74.4 eV ve 75.2 eV'de bulunan iki pike ayrıştırılabilir. **Şekil 4.11** (d)'de ise MBene'nin Mo 3d spektrumu, sırasıyla 227.5 eV, 228.7 eV ve 232.3 eV'de bulunan  $3d_{5/2}$  pikleri ile  $\text{MoAl}_{1-x}\text{B}$  MBene,  $\text{Mo}^{4+}$  ve  $\text{Mo}^{6+}$ 'dan oluşan üç set ikili tepe noktaları bulunmaktadır. Yüksek değerlikli Mo pikleri ( $\text{MoO}_2$  ve  $\text{MoO}_3$ ), hava ortamındaki kaçınılmaz olan oksijene atfedilebilir (Xiong vd., 2022; Wei vd., 2023).

### 4.3. Fe<sub>2</sub>Al<sub>1-x</sub>B<sub>2</sub> MBene'nin Üç Elektrotlu Hücredeki Ölçüm Sonuçları

FESEM, XRD ve XPS analizleri, Fe<sub>2</sub>AlB<sub>2</sub> MAB fazının ve Fe<sub>2</sub>Al<sub>1-x</sub>B<sub>2</sub> MBene'in başarılı bir şekilde sentezlendiğini doğrulamaktadır. Fe<sub>2</sub>Al<sub>1-x</sub>B<sub>2</sub> MBene'lerinin sentezi, bu 2B malzemelerin özellikle süperkapasitörler başta olmak üzere enerji depolama uygulamalarında elektrot olarak kullanılma potansiyelini ortaya koymaktadır. Elektrokimyasal ölçümler, Fe<sub>2</sub>Al<sub>1-x</sub>B<sub>2</sub> MBene elektrodu ile üç elektrotlu sistemde gerçekleştirilmiştir. H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, yüksek iyonik iletkenliğe sahip olup küçük ve yüksek hareketliliğe sahip yük taşıyıcıları olan protonlar (H<sup>+</sup>) açısından zengindir. Bu protonlar, şarj/deşarj süreci sırasında hızlı iyon taşınımını kolaylaştırarak elektrodun kapasitif performansını artırmaktadır. Özellikle H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> içerisindeki bol miktardaki H<sup>+</sup> iyonları, Fe<sub>2</sub>Al<sub>1-x</sub>B<sub>2</sub> MBene gibi geçiş metali esaslı malzemelerin yüzeyinde etkin Faradayik redoks reaksiyonlarını teşvik edebilmektedir. Ayrıca, 3 M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> sulu sistemlerde yaklaşık 1,0 V'luk kararlı bir elektrokimyasal pencere sunmakta olup, elektrot malzemelerinin içsel performansının önemli bir yapısal bozulmaya yol açmadan değerlendirilmesi için yeterlidir.

**Şekil 4.12** (a)'da gösterildiği üzere, çalışma elektrodu Fe<sub>2</sub>Al<sub>1-x</sub>B<sub>2</sub> MBene malzemesinin hava tabancası kullanılarak karbon kumaş (CC) altlık üzerine kaplanmasıyla hazırlanmıştır. **Şekil 4.12** (b), -0,45 ile 0,2 V potansiyel aralığında 3, 5, 10, 20, 50 ve 100 mV s<sup>-1</sup> tarama hızlarında ölçülen Fe<sub>2</sub>Al<sub>1-x</sub>B<sub>2</sub> MBene elektrotlarına ait CV eğrilerini göstermektedir. CV eğrilerinin neredeyse dikdörtgen şekli, Fe<sub>2</sub>Al<sub>1-x</sub>B<sub>2</sub> MBene'in psödokapasitif davranış sergilediğini yansıtmaktadır. **Şekil 4.12** (b)'de görüldüğü üzere, Fe<sub>2</sub>Al<sub>1-x</sub>B<sub>2</sub> MBene'in CV eğrileri özellikle düşük tarama hızlarında hafif bozulmalar içeren yarı-dikdörtgen bir profil göstermektedir. İdeal bir EDLC davranışından bu sapmalar, Fe aktif bölgeleriyle ilişkili kısmi Faradayik etkileşimlerin varlığına işaret edebilir.



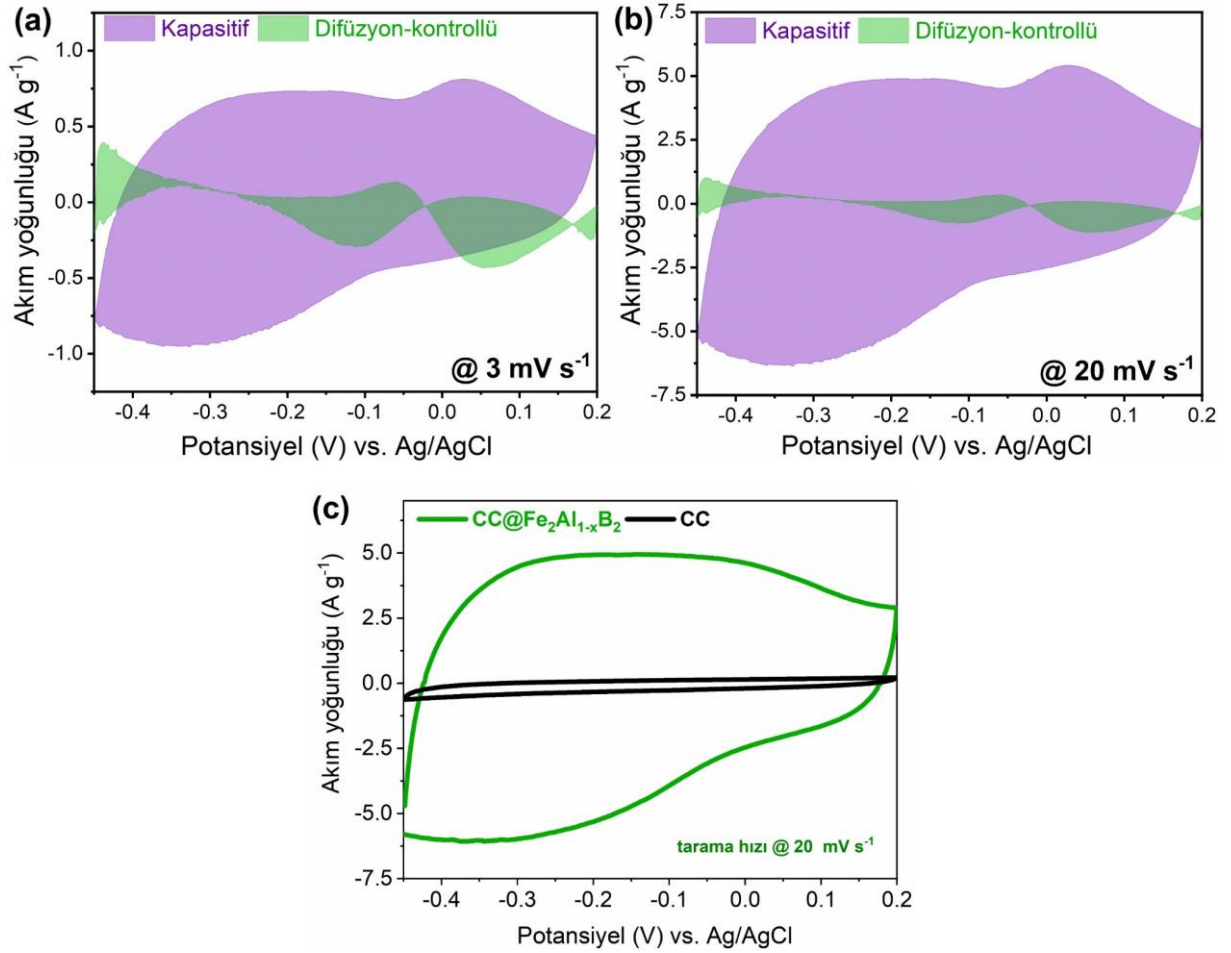
**Şekil 4.12.**  $\text{Fe}_2\text{Al}_{1-x}\text{B}_2$  MBene elektrodunun elektrokimyasal performansı, (a) Elektrot hazırlama sürecinin şematik gösterimi, (b) 3–100  $\text{mV s}^{-1}$  tarama hızlarında elde edilen CV eğrileri, (c) 0,5–10  $\text{A g}^{-1}$  akım yoğunluklarında kaydedilen GCD eğrileri, (d) Spesifik kapasitans değerleri, (e) Nyquist diyagramı (içteki grafik yüksek frekans bölgesi gösterilmektedir).

**Şekil 4.12** (c)'de  $\text{Fe}_2\text{Al}_{1-x}\text{B}_2$  MBene'e ait GCD eğrileri verilmiş olup, bu eğriler neredeyse simetrik üçgen profiller sergilemektedir. **Şekil 4.12** (d)'de gösterildiği üzere, 0,5, 1, 2, 5 ve 10  $\text{A g}^{-1}$  akım yoğunluklarında elde edilen spesifik kapasitans değerleri sırasıyla 276, 255, 238, 223 ve 207  $\text{F g}^{-1}$  olarak hesaplanmıştır. Dikkat çekici şekilde, 276  $\text{F g}^{-1}$ 'lik spesifik kapasitans değeri, literatürde  $\text{MoAl}_{1-x}\text{B}$  MBene için rapor edilen değer (1  $\text{mV s}^{-1}$ 'de 66,89  $\text{F g}^{-1}$ ) oldukça

üzerindedir (Wei vd., 2023). Al'ın kısmi olarak aşındırılması, Fe<sub>2</sub>Al<sub>1-x</sub>B<sub>2</sub> MBene'in spesifik yüzey alanını önemli ölçüde artırmakta; bu durum elektrolit iyonlarının difüzyonunu kolaylaştırarak süperkapasitör performansını iyileştirmektedir. MAB fazlarında metalik Al tabakaları elektronik köprüler olarak görev yapmaktadır. Bu Al tabakalarının kısmen uzaklaştırılması, yüksek iletkenliğe sahip ara tabakaların oluşmasına yol açarak MBene esaslı elektrodun spesifik kapasitansının artmasına katkı sağlamaktadır.

**Şekil 4.12** (e)'de, 10 mHz–100 kHz frekans aralığında gerçekleştirilen EIS ölçümlerinden elde edilen Nyquist diyagramı ve buna karşılık gelen eşdeğer devre modeli sunulmaktadır. Eşdeğer devre; R<sub>s</sub>, R<sub>ct</sub>, CPE, C<sub>dl</sub> ve C<sub>pseudo</sub> bileşenlerinden oluşmaktadır. Burada R<sub>s</sub>, elektrot/elektrolit arayüzündeki elektrolit direncini; R<sub>ct</sub>, yük transfer direncini; CPE ise elektrokimyasal reaksiyon sırasında elektron–iyon difüzyonunu temsil etmektedir. R<sub>s</sub> ve R<sub>ct</sub> değerleri sırasıyla 0.61 Ω ve 0.021 Ω olarak belirlenmiş olup, bu sonuçlar düşük iç direnç ve elektrot arayüzünde etkin yük transferine işaret etmektedir.

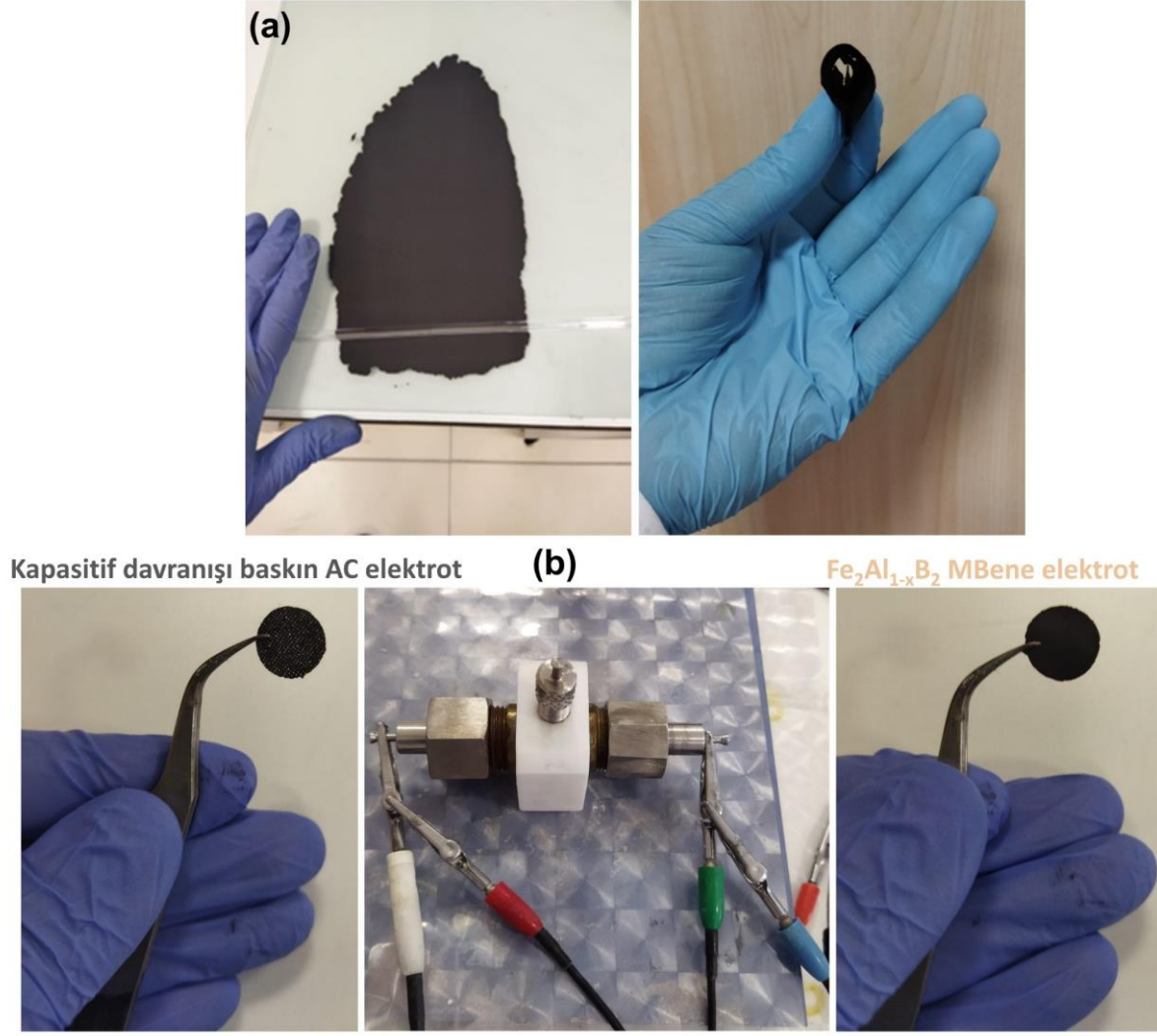
Yük depolama mekanizmasını daha ayrıntılı olarak açıklığa kavuşturmak amacıyla, **Şekil 4.13** (a, b)'de verilen Dunn yöntemi analizi gerçekleştirilmiştir. Sonuçlar, 3 ve 20 mV s<sup>-1</sup> tarama hızlarında kapasitif katkının baskın olduğunu, ancak 3 mV s<sup>-1</sup>'de belirgin bir difüzyon kontrollü katkının da mevcut olduğunu göstermektedir. Bu nedenle, belirgin redoks pikleri gözlenmemesine rağmen, CV eğrilerinin şekli ve Dunn analizi birlikte değerlendirildiğinde, EDLC ile yüzeyle sınırlı psödokapasitif davranışı içeren hibrit bir yük depolama mekanizmasının söz konusu olduğu anlaşılmaktadır. Ayrıca, üç elektrotlu konfigürasyonda 20 mV s<sup>-1</sup> tarama hızında yalnız CC ve CC@Fe<sub>2</sub>Al<sub>1-x</sub>B<sub>2</sub> elektrotlarının CV eğrileri ölçülmüştür. CC'nin neredeyse düz bir CV profili sergilemesi, toplam kapasitansa katkısının ihmal edilebilir düzeyde olduğunu göstermektedir (**Şekil 4.13** (c)).



**Şekil 4.13.** (a, b) CV analizine dayalı olarak,  $\text{Fe}_2\text{Al}_{1-x}\text{B}_2$  MBene elektrotu için  $3 \text{ mV s}^{-1}$  ve  $20 \text{ mV s}^{-1}$  tarama hızlarında kapasitif ve difüzyon kontrollü katkıların karşılaştırılması, (c) Saf CC ve  $\text{CC@Fe}_2\text{Al}_{1-x}\text{B}_2$  elektrotlarının  $20 \text{ mV s}^{-1}$  tarama hızında ölçülen CV eğrileri.

#### 4.4. $\text{Fe}_2\text{Al}_{1-x}\text{B}_2$ MBene'nin Asimetrik Süperkapasitör (ASC) Ölçüm Sonuçları

Üç elektrotlu sistemde elde edilen umut verici elektrokimyasal performansın ardından, **Şekil 4.15 (a)**'da gösterildiği üzere iki elektrotlu asimetrik süperkapasitör (ASC) konfigürasyonunda ölçümler gerçekleştirilmiştir. Negatif elektrot olarak, kâğıt formunda hazırlanmış aşırı kapasitif aktif karbon (AC) kullanılırken (**Şekil 4.14 (a)**), pozitif elektrot olarak  $\text{Fe}_2\text{Al}_{1-x}\text{B}_2$  MBene tercih edilmiştir. Elektrotlar, **Şekil 4.14 (b)**'de gösterildiği gibi bir Swagelok test hücresinde bir araya getirilmiştir. ASC sistemine ait CV ve GCD ölçümleri, 0–1,2 V potansiyel aralığında ve farklı tarama hızları ile akım yoğunluklarında gerçekleştirilmiş olup, sonuçlar **Şekil 4.15 (b ve c)**'de sunulmaktadır.

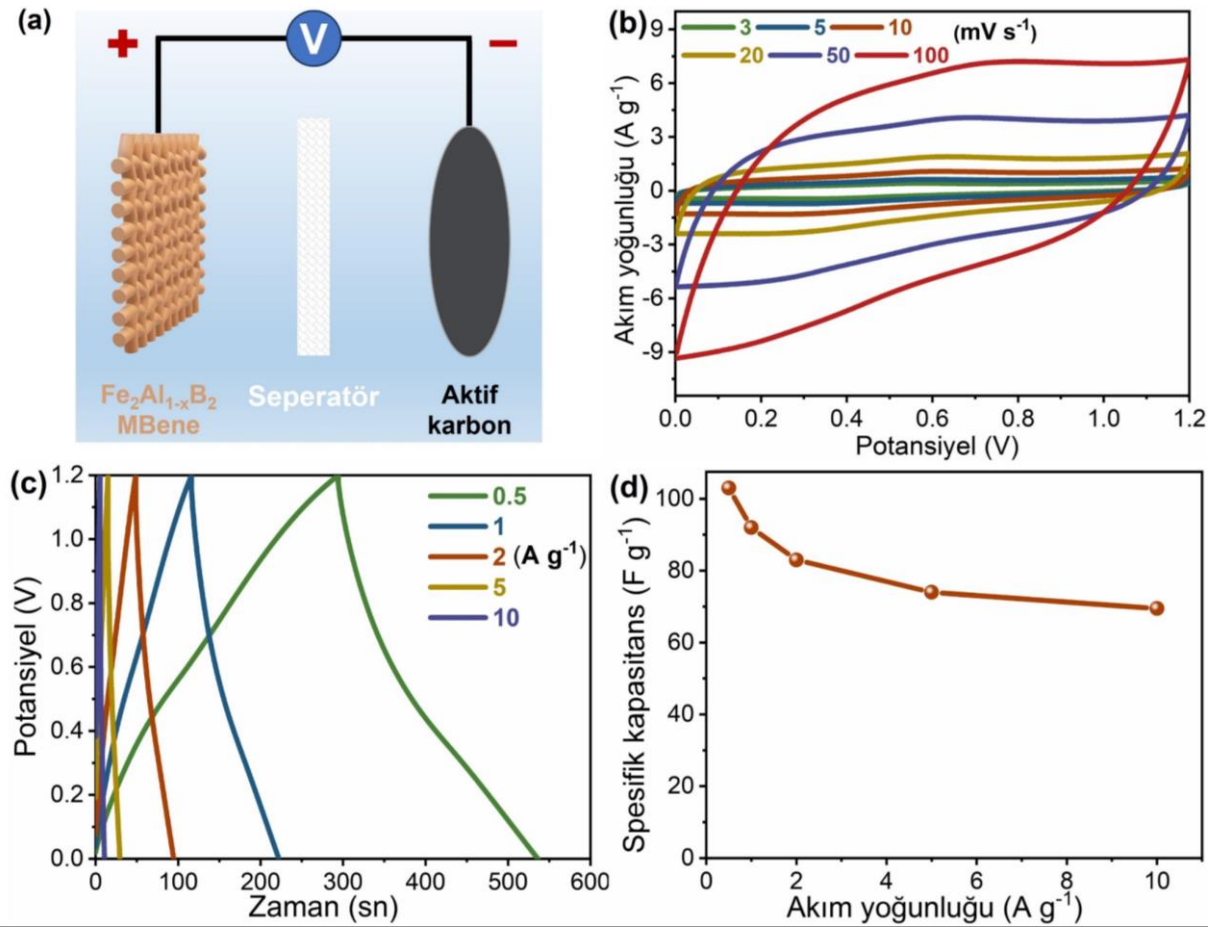


**Şekil 4.14.** (a) ASC’de kullanılan esnek aşırı kapasiteli aktif karbon elektrot, (b) Swagelok test hücresi.

$Fe_2Al_{1-x}B_2$  MBene,  $H_2SO_4$  gibi sulu elektrolitlerde kullanıldığında hidrojen gelişim reaksiyonu (HER) ve oksijen gelişim reaksiyonu (OER) meydana gelebilmektedir. Fe, elektrokimyasal olarak aktif bir element olduğundan HER’i katalize edebilir.  $H_2SO_4$  ortamında, uygulanan potansiyel yeterince negatif değerlere ulaştığında, protonların ( $H^+$ ) negatif elektrot üzerinde hidrojen gazına indirgenmesiyle HER başlatılabilir. Benzer şekilde, pozitif elektrot üzerinde suyun ayrışması oksijen gazı açığa çıkararak OER’in gerçekleşmesine yol açabilmektedir.

Her iki reaksiyon da süperkapasitörün kullanılabilir voltaj penceresini sınırlandırmakta ve elektrolitin elektrokimyasal kararlılık sınırlarının aşıldığını göstermektedir. Ayrıca, yapısal özellikleri nedeniyle  $Fe_2Al_{1-x}B_2$  MBene, elektrokimyasal olarak aktif metalik bir yüzeye ve bor ile atomik ölçekte etkileşimlere sahiptir. MBene’in tabakalı yapısı, katalitik merkezler olarak işlev görebilecek aktif bölgeler içermektedir. Bor atomları, yüzey yük dağılımını değiştirerek

belirli bölgeleri  $H^+$  veya  $OH^-$  adsorpsiyonu için daha elverişli hâle getirebilir ve böylece spesifik bölgelerde katalitik aktiviteyi artırabilir.



**Şekil 4.15.** Fe<sub>2</sub>Al<sub>1-x</sub>B<sub>2</sub> MBene tabanlı ASC'nin elektrokimyasal performansı: (a) Pozitif elektrot olarak Fe<sub>2</sub>Al<sub>1-x</sub>B<sub>2</sub> MBene, negatif elektrot olarak AC ve elektrolit olarak 3 M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> kullanılan ASC'nin şematik gösterimi, (b) 0–1.2 V potansiyel aralığında, farklı tarama hızlarında elde edilen CV eğrileri, (c) farklı akım yoğunluklarında kaydedilen GCD eğrileri, (d) spesifik kapasitans değerleri.

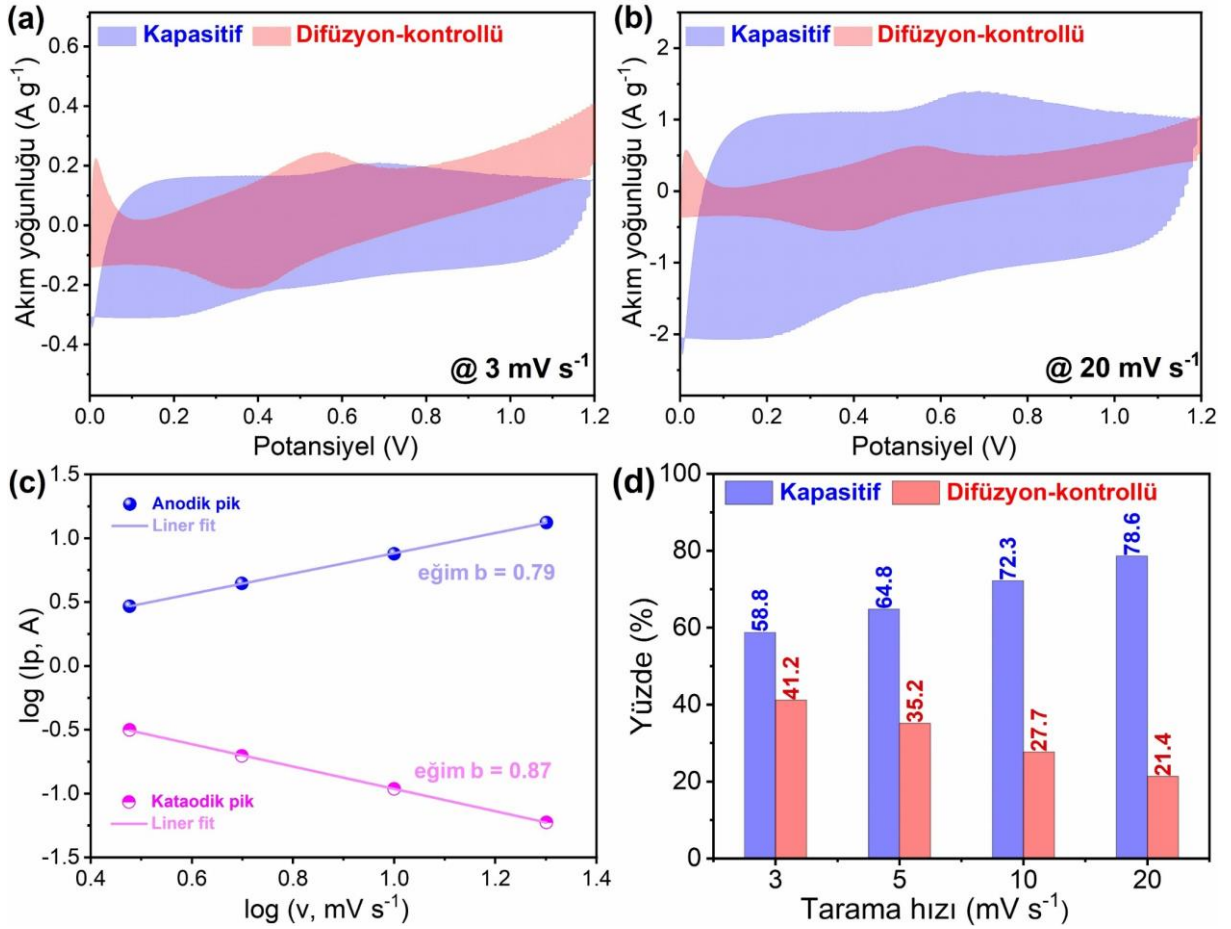
**Şekil 4.15** (b), 3–100 mV s<sup>-1</sup> aralığındaki farklı tarama hızlarında Fe<sub>2</sub>Al<sub>1-x</sub>B<sub>2</sub> MBene elektroduna ait CV eğrilerini göstermektedir. CV eğrileri tüm tarama hızlarında neredeyse dikdörtgen benzeri bir şekli korumakta olup, bu durum iyi kapasitif davranışa ve elektrot malzemesi içerisinde etkin iyon taşınımına işaret etmektedir. Tarama hızı arttıkça akım yanıtı orantılı olarak artarken, eğrilerin genel şekli korunmakta ve belirgin redoks piklerinin ortaya çıkmadığı görülmektedir. **Şekil 4.15** (d)'de gösterildiği üzere, ASC'nin spesifik kapasitans değerleri sırasıyla 0.5, 1, 2, 5 ve 10 A g<sup>-1</sup> akım yoğunluklarında 103, 92, 83, 74 ve 70 F g<sup>-1</sup> olarak hesaplanmıştır.

GCD profillerinden de gözleendiği üzere,  $Fe_2Al_{1-x}B_2$  elektrodunun spesifik kapasitansı akım yoğunluğu arttıkça azalmaktadır. Bu durum, süperkapasitörlerde yaygın olarak rapor edilen bir olgu olup, temel olarak yüksek akım yoğunluklarında iyonik difüzyonun sınırlanmasına atfedilmektedir. Düşük akım yoğunluklarında elektrolit iyonları, gözenekli yapı içerisine derinlemesine nüfuz etmek ve iç aktif bölgeler dâhil olmak üzere elektrodun tüm yüzey alanına erişmek için yeterli zamana sahiptir. Buna karşılık, yüksek akım yoğunluklarında şarj/deşarj süresinin kısalması iyon difüzyonunu kısıtlamakta ve yalnızca elektrodun dış yüzeyinin etkin şekilde kullanılmasına yol açmaktadır. Bu durum, etkin kapasitansın azalmasıyla sonuçlanmaktadır. Ayrıca, yüksek akım yoğunluklarında hem Faradayik hem de Faradayik olmayan süreçleri etkileyen kinetik sınırlamalar ortaya çıkmaktadır. Özellikle redoks reaksiyonları nedeniyle daha uzun zaman ölçekleri gerektiren psödokapasitif katkılar, bu koşullarda daha az etkin hâle gelmekte ve toplam kapasitansın düşmesine neden olmaktadır.

ASC'nin enerji depolama mekanizması, güç yasası yaklaşımı ve Dunn yöntemi kullanılarak ayrıntılı biçimde analiz edilmiştir. Bu yöntem, toplam kapasitansı yüzey kontrollü ve difüzyon kontrollü katkılara ayırmaktadır. Elektrokimyasal davranış, CV ölçümleri aracılığıyla incelenmiş ve aşağıdaki denklemler kullanılmıştır. Dunn yöntemi ile yüzey kontrollü akım yanıtı nicel olarak belirlenmiş; burada  $k_1v$  terimi yüzey kontrollü katkıyı,  $k_2v'^{1/2}$  terimi ise difüzyon kontrollü katkıyı temsil etmektedir (Shao vd., 2019). **Şekil 4.16** (a ve b), sırasıyla  $3 \text{ mV s}^{-1}$  ve  $20 \text{ mV s}^{-1}$  tarama hızlarında kapasitif ve difüzyon kontrollü katkıların değişimini göstermektedir.

**Şekil 4.16** (c)'de,  $\log(i_p)$  ile  $\log(v)$  arasındaki ilişkiye dayalı olarak elde edilen  $b$  değeri, yük depolama mekanizmasına dair önemli bilgiler sunmaktadır.  $b$  değerinin 1'e yaklaşması yüzey kontrollü (kapasitif) bir süreci, 0,5'e yakın olması ise difüzyon kontrollü bir davranışı ifade etmektedir. Hesaplanan  $b$  değerlerinin anodikte 0,79 ve katodikte 0,87 olması, baskın kapasitif katkı ile hibrit bir yük depolama mekanizmasının varlığını doğrulamaktadır. **Şekil 4.16** (d)'de gösterildiği üzere,  $3 \text{ mV s}^{-1}$  tarama hızında difüzyon kontrollü katkı %41,2 iken kapasitif katkı %58,8 olarak belirlenmiştir. Buna karşılık,  $20 \text{ mV s}^{-1}$  tarama hızında difüzyon kontrollü katkı %21,4'e düşerken, kapasitif katkı %78,6'ya yükselmektedir. Bu eğilim, tarama hızı arttıkça difüzyon kontrollü katkının azaldığını ve kapasitif katkının giderek baskın hâle geldiğini göstermektedir. Yüksek tarama hızlarında difüzyon kontrollü katkının azalması, elektrot yüzeyinde gerçekleşen kimyasal reaksiyonlar için gerekli sürenin kısalmasıyla ilişkilidir. Bu hibrit yük depolama mekanizması, yüksek çevrim sayılarında dahi mükemmel elektrokimyasal

kararlılığı korurken, ASC'nin güç yoğunluğunu, enerji yoğunluğunu ve kapasite korunmasını önemli ölçüde artırmaktadır.

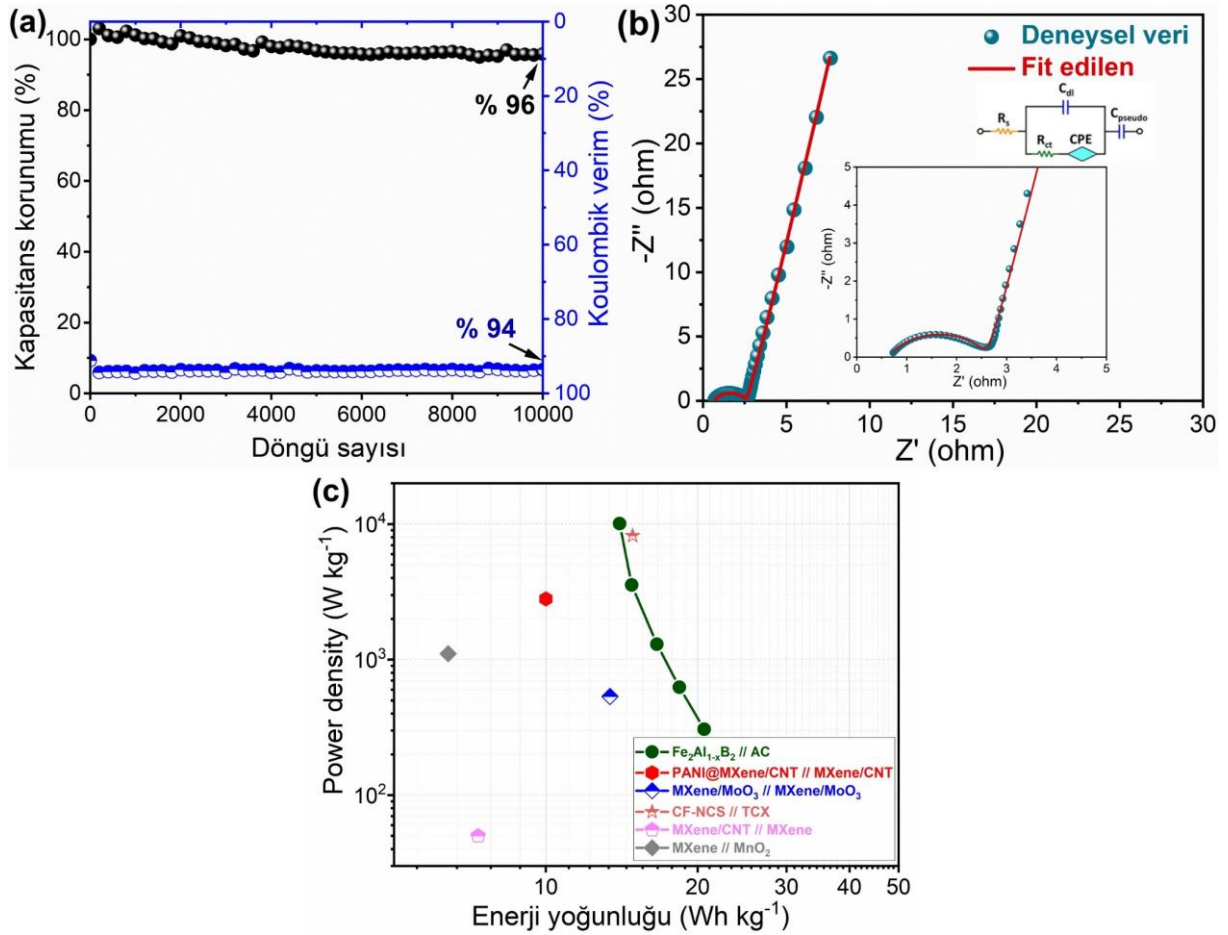


**Şekil 4.16.** ASC'nin kapasitansına katkıda bulunan kapasitif ve difüzyon kontrollü bileşenler: (a, b) 3 ve 20 mV s<sup>-1</sup>'de kapasitif (mavi) ve difüzyon kontrollü (kırmızı) katkıları; yüksek tarama hızlarında kapasitif katkı, (c) log(*i<sub>p</sub>*)–log(*v*) grafiğinden elde edilen *b* değerleri, (d) tarama hızına bağlı katkının yüzdesel dağılımı.

**Şekil 4.17** (a), 10 A g<sup>-1</sup> akım yoğunluğunda ASC'nin çevrim performansını ve Koulombik verimliliğini göstermektedir. Cihaz, 10.000 çevrim sonrasında %96 kapasite korunumu ve %94 Koulombik verimlilik sergileyerek üstün çevrim kararlılığı ortaya koymaktadır. Şekil 8a'da gözlenen, spesifik kapasitansın periyodik olarak azalması ve tekrar artması şeklindeki küçük dalgalanmalar; elektrolit iyonlarının yeniden dağılımı, ıslanma dinamikleri ve yapısal gevşeme gibi etkilere bağlanabilir. İlk çevrimlerde, gözenekli Fe<sub>2</sub>Al<sub>1-x</sub>B<sub>2</sub> MBene yapısı içerisinde iyonların tam olarak nüfuz edememesi veya düzensiz dağılımı, kapasitans değerlerinde çok küçük değişimlere yol açabilmektedir. Çevrimler ilerledikçe, iyonların daha iyi nüfuz etmesi ve daha önce erişilemeyen aktif bölgelerin etkinleşmesi kısmi kapasite geri kazanımına neden olabilmektedir. Ayrıca, tekrarlanan GCD işlemleri sırasında meydana gelen yapısal gevşeme,

iyon taşınımını iyileştirerek veya aktif yüzey alanını artırarak kapasitansın zaman zaman toparlanmasına katkı sağlayabilmektedir.

Şekil 4.17 (b)'de, ASC'ye ait EIS ölçümünden elde edilen Nyquist diyagramı ve iç grafikte buna karşılık gelen eşdeğer devre sunulmaktadır. Şekil 4.17 (b)'deki eşdeğer devreye dayanarak hesaplanan  $R_s$  ve  $R_{ct}$  değerleri sırasıyla  $0.64 \Omega$  ve  $1.99 \Omega$  olarak bulunmuştur. Deşarj eğrisinin başlangıcında gözlenen IR düşümü, elektrot/elektrolit sisteminin eşdeğer seri direncinden (ESR) kaynaklanmaktadır. Bu direnç; elektrot malzemesinin öz direnci, aktif malzeme ile akım toplayıcı arasındaki temas direnci ve elektrolitin iyonik direnci gibi çeşitli bileşenlerden oluşmaktadır. Bu çalışmada, GCD profilinde gözlenen IR düşümünün oldukça küçük olması,  $Fe_2Al_{1-x}B_2$  MBene elektrodunun iyi bir elektriksel iletkenliğe sahip olduğunu ve düşük iç direnci koruduğunu göstermektedir.



Şekil 4.17. (a)  $10 A g^{-1}$  akım yoğunluğunda ASC'nin uzun süreli döngü performansı, (b) EIS ölçümlerinden elde edilen Nyquist diyagramı ve eşdeğer devre modeli, (c) ASC'nin enerji ve

güç yoğunluklarını literatürde rapor edilen elektrot malzemeleriyle karşılaştıran Ragone diyagramı.

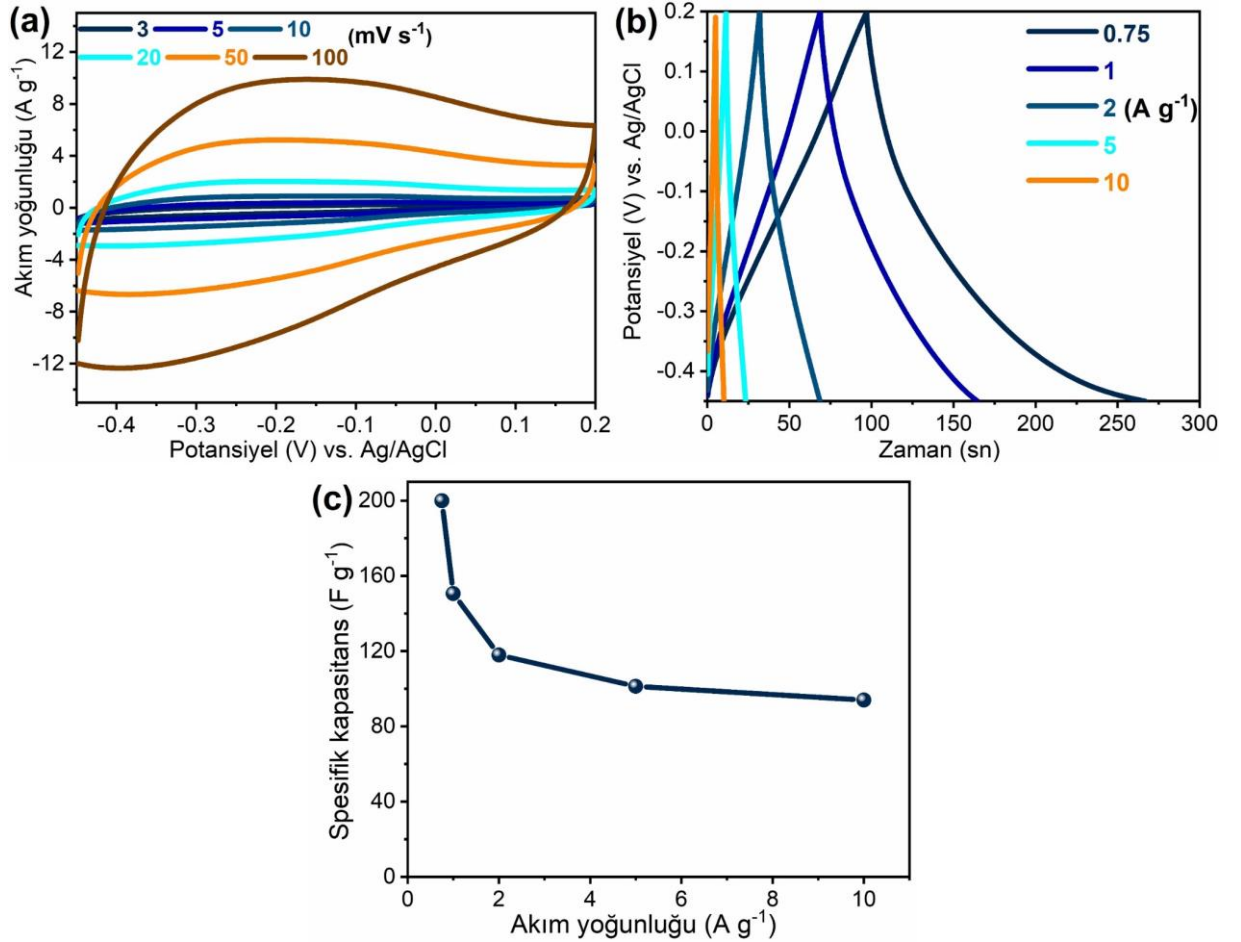
**Şekil 4.17** (c), asimetrik süperkapasitörün (ASC) enerji ve güç yoğunluklarını sunmakta olup,  $306.4 \text{ W kg}^{-1}$  güç yoğunluğunda  $20.6 \text{ Wh kg}^{-1}$  enerji yoğunluğuna ulaşıldığını göstermektedir. **Tablo 4.1**'de özetlendiği üzere, bu çalışmada geliştirilen  $\text{Fe}_2\text{Al}_{1-x}\text{B}_2$  // AC cihazı, literatürde rapor edilen birçok MXene ve hibrit tabanlı sisteme kıyasla daha üstün bir enerji yoğunluğu sergilemektedir. Ayrıca, **Şekil 4.17** (c)'de sunulan Ragone diyagramı, bu çalışmada geliştirilen ASC'nin enerji ve güç yoğunluklarını önceki çalışmalarda rapor edilen değerlerle karşılaştırarak rekabetçi performansını ortaya koymaktadır. Örneğin, CF-NCS // TCX aygıtı  $8197 \text{ W kg}^{-1}$  güç yoğunluğunda  $14.86 \text{ Wh kg}^{-1}$  enerji yoğunluğuna ulaşırken ulaşırken (Pathak vd., 2022), MXene/CNT // MXene sistemi  $50 \text{ W kg}^{-1}$ 'de  $7.34 \text{ Wh kg}^{-1}$  (Shi vd., 2023), MXene/MoO<sub>3</sub> // MXene/MoO<sub>3</sub> yapısı  $534.6 \text{ W kg}^{-1}$ 'de  $13.4 \text{ Wh kg}^{-1}$  (Wang vd., 2020), MXene // MnO<sub>2</sub> sistemi  $1107.7 \text{ W kg}^{-1}$ 'de  $6.4 \text{ Wh kg}^{-1}$  (Wei vd., 2022) ve PANI@MXene/CNT // MXene/CNT yapısı  $2808 \text{ W kg}^{-1}$ 'de  $10 \text{ Wh kg}^{-1}$  enerji yoğunluğu sergilemektedir (Wu vd., 2022). Bu karşılaştırmalı analiz, geliştirilen ASC'nin üstün enerji depolama kapasitesini vurgulamakta ve onu yüksek performanslı enerji depolama uygulamaları için umut vadeden bir aday olarak konumlandırmaktadır.

**Tablo 4.1.** Süperkapasitörlerin elektrokimyasal performans karşılaştırması.

Elektrot malzemesi	Spesifik kapasitans ( $\text{F g}^{-1}$ )	Döngü kararlılığı	Enerji ve Güç yoğunluğu	Ref.
CF-NCS // TCX	$54,57 \text{ F g}^{-1} @ 2 \text{ A g}^{-1}$	5,000 döngü sonrası %85	$14,86 \text{ Wh kg}^{-1} / 8197 \text{ W kg}^{-1}$	Pathak vd., 2022
MXene/CNT // MXene	$114 \text{ F g}^{-1} @ 2 \text{ mV s}^{-1}$	5,000 döngü sonrası %99	$7,34 \text{ Wh kg}^{-1} / 50 \text{ W kg}^{-1}$	Shi vd., 2023
MXene/MoO <sub>3</sub> //MXene/MoO <sub>3</sub>	$118,8 \text{ F g}^{-1} @ 10 \text{ mV s}^{-1}$	5,000 döngü sonrası %90	$13,4 \text{ Wh kg}^{-1} / 534,6 \text{ W kg}^{-1}$	Wang vd., 2020
MXene // MnO <sub>2</sub>	$20,5 \text{ F g}^{-1} @ 1 \text{ A g}^{-1}$	3,000 döngü sonrası %84	$6,4 \text{ Wh kg}^{-1} / 1107,7 \text{ W kg}^{-1}$	Wei vd., 2022
PANI@MXene/CNT//MXene/CNT	$72 \text{ F g}^{-1} @ 5 \text{ mV s}^{-1}$	5,000 döngü sonrası %95	$10 \text{ Wh kg}^{-1} / 2808 \text{ W kg}^{-1}$	Wu vd., 2022
MoAl <sub>1-x</sub> B // MoAl <sub>1-x</sub> B	$741,6 \text{ mF cm}^{-2} @ 1 \text{ mV s}^{-1}$	--	--	Wei vd., 2023
$\text{Fe}_2\text{Al}_{1-x}\text{B}_2$ // AC	$103 \text{ A g}^{-1} @ 0,5 \text{ A g}^{-1}$	10,000 döngü sonrası %96	$20,6 \text{ Wh kg}^{-1} / 36,4 \text{ W kg}^{-1}$	Bu çalışma
MoAl <sub>1-x</sub> B // AC	$89 \text{ F g}^{-1} @ 0,5 \text{ A g}^{-1}$	10.000 döngü sonrası %91	$17,8 \text{ Wh kg}^{-1} / 21,6 \text{ kW kg}^{-1}$	Bu çalışma

#### 4.5. MoAl<sub>1-x</sub>B MBene'nin Üç Elektrotlu Hücredeki Ölçüm Sonuçları

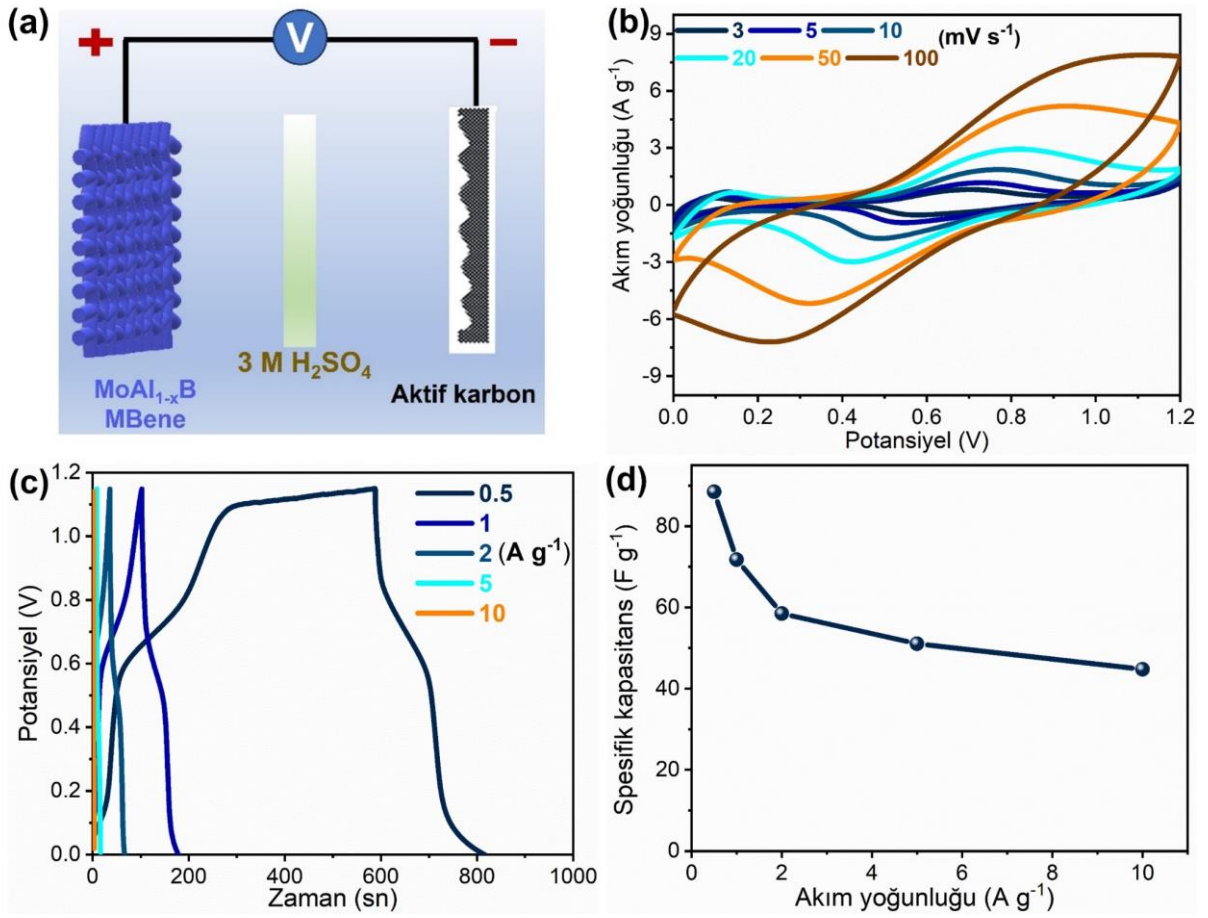
MoAl<sub>1-x</sub>B MBene elektrodunun farklı tarama hızlarında kaydedilen CV eğrileri ile çeşitli akım yoğunluklarında elde edilen GCD eğrileri sırasıyla Şekil 4.18 (a) ve Şekil 4.18 (b)'de verilmiştir. CV eğrilerinin genel formu ve akım yanıtındaki artış, elektrodun iyi iletkenlik ve hızlı iyon/elektron taşınımı sergilediğini göstermektedir. GCD eğrilerinin yaklaşık simetrik karakteri ise yük depolama sürecinin yüksek tersinirliğe sahip olduğuna işaret etmektedir. 0.75, 1, 2, 5 ve 10 A g<sup>-1</sup> akım yoğunluklarında hesaplanan spesifik kapasitans değerleri sırasıyla 200, 151, 118, 101 ve 94 F g<sup>-1</sup> olup, bu sonuçlar Şekil 4.18 (c)'de özetlenmiştir. Akım yoğunluğu arttıkça kapasitansın azalması, yüksek akım altında iyon difüzyon sınırlamaları ve aktif yüzeyin tam kullanımının kısıtlanması ile ilişkilendirilebilir. Bununla birlikte, 0.75'ten 10 A g<sup>-1</sup>'e çıkıldığında elektrot, başlangıç kapasitansının yaklaşık %47'sini koruyarak tatmin edici bir hız performansı ortaya koymaktadır.



Şekil 4.18. MoAl<sub>1-x</sub>B MBene elektrodunun a) CV eğrileri, b) farklı akım yoğunluklarındaki GCD eğrileri, c) spesifik kapasitans değerleri.

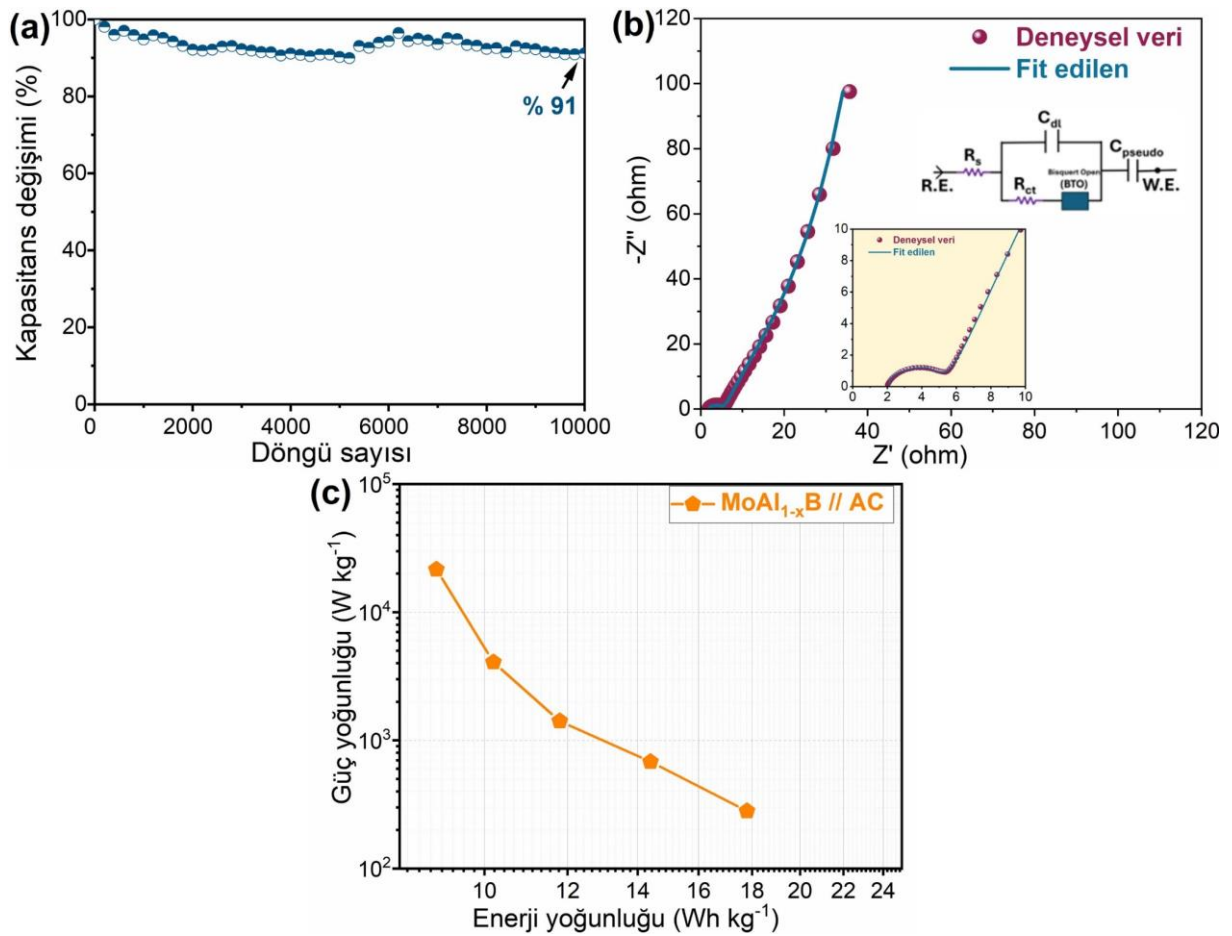
#### 4.6. MoAl<sub>1-x</sub>B MBene'nin Asimetrik Süperkapasitör (ASC) Ölçüm Sonuçları

Şekil 4.19 (a)'da gösterildiği gibi yine kapasitif aktif karbon negatif elektrot ve MoAl<sub>1-x</sub>B pozitif elektrot olarak bir araya getirilerek MoAl<sub>1-x</sub>B//AC yapısı oluşturulmuştur. ASC süperkapasitörün 0-1,2 V potansiyel aralığında farklı tarama hızlarındaki CV eğrileri Şekil 4.19 (b)'de verilmiştir. MoB bazlı malzemeler hidrojen (HER) ve oksijen (OER) oluşum reaksiyonları için iyi elektro katalizörler olduğundan, HER ve ORR asidik ve alkalın elektrolitlerde kolaylıkla meydana gelmekte ve voltaj penceresini azaltmaktadır (Wei vd., 2023). Şekil 4.19 (b)'de görüldüğü üzere CV eğrisinin şekli, MoAl<sub>1-x</sub>B yapısından kaynaklanan ve iyonların difüzyonundaki sınırlamalara işaret eden pikler yer bulunmaktadır. CV eğrilerinin redoks tepe noktalarına sahip olması ve Şekil 4.19 (c)'de verilen doğrusal olmayan GCD eğrileri, CV eğrilerinde görünen tepe noktalarıyla tutarlı görünmesi nedeniyle elektrotun psödokapasitif davranış sergilediğini göstermektedir. Asimetrik süperkapasitörün 0.5, 1, 2, 5 ve 10 A g<sup>-1</sup> farklı akım yoğunluklarındaki spesifik kapasitansları 89, 72, 59, 51 ve 45 F g<sup>-1</sup> olarak elde edilmiş ve Şekil 4.19 (d)'de verilmiştir.



Şekil 4.19. (a) Asimetrik yapıdaki süperkapasitörün gösterimi, (b) CV eğrileri, (c) farklı akım yoğunluklarındaki GCD eğrileri, (d) spesifik kapasitans değerleri,

**Şekil 4.20** (a)'de  $10 \text{ A g}^{-1}$  akım yoğunluğunda gerçekleştirilen döngü performansı gösterilmektedir. Elektrot, 10.000 döngü sonrasında başlangıç kapasitesinin yaklaşık %91'ini koruyarak yüksek çevrimsel kararlılık sergilemiştir. Bu yüksek kapasite korunumu, elektrot yapısının uzun süreli şarj–deşarj işlemleri sırasında yapısal bütünlüğünü koruduğunu ve elektrokimyasal olarak kararlı bir sistem olduğunu göstermektedir. Ayrıca, döngü süresince gözlenen sınırlı kapasite kaybı, elektrot–elektrolit arayüzeyinde minimal bozulma ve iyi tersinirlik ile ilişkilendirilebilir. **Şekil 4.20** (b)'de verilen EIS sonuçları, elektrotun yük transfer kinetiği ve iç direnç özellikleri hakkında önemli bilgiler sunmaktadır.  $3 \text{ M H}_2\text{SO}_4$  elektrolit ortamında elde edilen seri direnç ( $R_s$ ) ve yük transfer direnci ( $R_{ct}$ ) değerlerinin sırasıyla  $2,12$  ve  $1,92 \text{ } \Omega$  olması, sistemin düşük iç dirence ve hızlı elektron/iyon taşınımına sahip olduğunu göstermektedir. Nyquist diyagramında yüksek frekans bölgesindeki küçük yarım daire, düşük  $R_{ct}$  değeri ile uyumlu olup elektrot–elektrolit arayüzeyinde etkin bir yük transfer sürecine işaret etmektedir. Düşük frekans bölgesinde gözlenen eğimli doğru ise iyon difüzyonunun varlığını doğrulamakta ve kapasitif davranışın baskın olduğunu göstermektedir.



**Şekil 4.20.** Asimetrik yapıdaki süperkapasitörün (a) uzun döngü, (b) EIS ölçümü (c) Ragon eğrisi.

**Şekil 4.20 (c)**'de sunulan Ragone grafiđi, asimetrik süperkapasitörün enerji ve güç yoğunluđu performansını ortaya koymaktadır. Cihaz,  $281,0 \text{ W kg}^{-1}$  güç yoğunluđuunda  $17,8 \text{ Wh kg}^{-1}$  enerji yoğunluđu sergilerken, güç yoğunluđu  $21,6 \text{ kW kg}^{-1}$ 'e yükseldiđinde dahi  $9,0 \text{ Wh kg}^{-1}$  enerji yoğunluđunu korumaktadır. Bu sonuçlar, sistemin hem yüksek enerji depolama kapasitesine hem de yüksek güç çıkışına sahip olduđunu göstermekte olup, elektrot malzemesinin hızlı şarj–deşarj koşullarında dahi etkin performans sergileyebildiđini ortaya koymaktadır. Enerji yoğunluđu ile güç yoğunluđu arasındaki bu dengeli ilişki, cihazın hem yüksek enerji hem de yüksek güç gerektiren uygulamalar için uygun bir aday olduđunu göstermektedir.

## 5. SONUÇLAR

Bu doktora tezinin temel amacı,  $Fe_2AlB_2$  ve  $MoAlB$  MAB fazlarının sentezlenmesi, bu fazlardan türetilen  $Fe_2Al_{1-x}B_2$  ve  $MoAl_{1-x}B$  MBene yapıların elde edilmesi ve bu malzemelerin enerji depolama uygulamalarındaki potansiyellerinin sistematik olarak incelenmesidir.  $Fe_2AlB_2$  fazı,  $1200\text{ }^\circ\text{C}$ 'de 2 saat sinterleme yöntemiyle başarıyla sentezlenmiş, ardından 2 M HCl çözeltisi ile gerçekleştirilen seçici aşındırma işlemi sonucunda, tabakalı ve akordeon benzeri morfolojiye sahip  $Fe_2Al_{1-x}B_2$  MBene yapısı elde edilmiştir.

FESEM, XRD, XPS ve EDS analizleri hem MAB fazlarının hem de bunlardan türetilen MBene yapıların başarıyla sentezlendiğini ve Al tabakalarının etkin şekilde uzaklaştırıldığını doğrulamıştır. Özellikle gözlenen tabakalı ve genişlemiş yapı, yüzey alanının artmasına ve iyon erişilebilirliğinin iyileşmesine katkı sağlamıştır.

Elektrokimyasal ölçümler,  $Fe_2Al_{1-x}B_2$  MBene'in üstün enerji depolama performansı sergilediğini ortaya koymuştur. Bu malzeme,  $0,5\text{ A g}^{-1}$  akım yoğunluğunda  $276\text{ F g}^{-1}$  gibi yüksek bir spesifik kapasitans değerine ulaşmıştır. Bu yüksek performans; artan özgül yüzey alanı, tabakalar arası genişlemiş yapı ve Fe tabanlı redoks aktif bölgelerin varlığı ile ilişkilendirilmektedir. Ayrıca, yük depolama mekanizmasının hem kapasitif hem de difüzyon kontrollü süreçlerin birleşiminden oluştuğu anlaşılmaktadır.

Asimetrik süperkapasitör (ASC) konfigürasyonunda,  $306,4\text{ W kg}^{-1}$  güç yoğunluğunda  $20,6\text{ Wh kg}^{-1}$  enerji yoğunluğu elde edilmiş ve cihaz, 10,000 çevrim sonunda başlangıç kapasitansının %96'sını koruyarak üstün çevrim kararlılığı sergilemiştir. Bu sonuçlar,  $Fe_2Al_{1-x}B_2$  MBene'in hem yüksek enerji hem de yüksek güç gerektiren uygulamalar için uygun bir elektrot malzemesi olduğunu göstermektedir.

$MoAl_{1-x}B$  MBene için gerçekleştirilen elektrokimyasal analizler, bu malzemenin de dikkate değer bir performans sunduğunu ortaya koymuştur. Üç elektrotlu sistemde  $0,5\text{ A g}^{-1}$  akım yoğunluğunda  $200\text{ F g}^{-1}$  spesifik kapasitans elde edilmiştir. Ancak,  $Fe_2Al_{1-x}B_2$  ile karşılaştırıldığında daha düşük performans göstermesi; Mo tabanlı yapının nispeten daha düşük elektriksel iletkenliği ve daha sınırlı aktif yüzey bölgelerine sahip olması ile ilişkilendirilebilir.

İki elektrotlu ASC konfigürasyonunda ise  $MoAl_{1-x}B$  elektrodu,  $17,8\text{ Wh kg}^{-1}$  enerji yoğunluğu ve  $21,6\text{ kW kg}^{-1}$  güç yoğunluğu değerlerine ulaşmıştır. Bu sonuçlar,  $MoAl_{1-x}B$  MBene'in de

yüksek güç yoğunluğu gerektiren uygulamalar için potansiyel bir aday olduğunu göstermektedir.

**Tablo 4.2'**de sunulan karşılaştırmalı analiz, bu çalışmada elde edilen  $Fe_2Al_{1-x}B_2$  ve  $MoAl_{1-x}B$  MBene elektrotlarının, literatürde rapor edilen diğer MBene bazlı elektrotlarla rekabet edebilir ve bazı durumlarda üstün elektrokimyasal performans sergilediğini ortaya koymaktadır. Özellikle  $Fe_2Al_{1-x}B_2$  MBene'in yüksek spesifik kapasitans değeri, bu malzemenin MBene ailesi içerisinde öne çıkan bir elektrot adayı olduğunu göstermektedir.

Sonuç olarak, bu çalışma MBene tabanlı malzemelerin yalnızca teorik olarak değil, deneysel olarak da yüksek performanslı süperkapasitör elektrotları olarak kullanılabilceğini ortaya koymakta ve bu alandaki literatüre önemli bir katkı sağlamaktadır.

**Tablo 4.2.** MBene tabanlı elektrotların elektrokimyasal performans karşılaştırması.

Elektrot Malzemesi	Uygulama	Kapasitans/kapasite	Döngü Kararlılığı	Ref.
CoO/MoB	Lityum-iyon batarya	819.8 mAh g <sup>-1</sup>	-	Wang vd., 2025
MoB	Süperkapasitör	20.3 mF cm <sup>-2</sup>	1300 döngü sonrası %92	Aghamohammadi vd., 2025b
MoB	Süperkapasitör	117 mF cm <sup>-2</sup>	5000 döngü sonrası 97%	Duan vd., 2025
MoB	Süperkapasitör	201.28 F g <sup>-1</sup>	6000 döngü sonrası %91.54	Wei vd., 2024
CrB	Süperkapasitör	92.3 F g <sup>-1</sup>	-	Aghamohammadi vd., 2025a
$Fe_2Al_{1-x}B_2$	Süperkapasitör	276 F g <sup>-1</sup>	-	Bu çalışma
$MoAl_{1-x}B$	Süperkapasitör	200 F g <sup>-1</sup>	-	Bu çalışma

## 6. ÖNERİLER

Bu doktora tezinde elde edilen bulgular,  $Fe_2Al_{1-x}B_2$  ve  $MoAl_{1-x}B$  MBene tabanlı elektrot malzemelerinin süperkapasitör uygulamaları açısından yüksek potansiyele sahip olduğunu açıkça ortaya koymuştur. Bununla birlikte, söz konusu malzemelerin performansının daha da iyileştirilmesi ve uygulama alanlarının genişletilmesi amacıyla gelecekte gerçekleştirilebilecek çalışmalar için aşağıdaki öneriler sunulmaktadır.

Öncelikle, MBene yapılarının elektrokimyasal performansını daha da artırmak amacıyla farklı yüzey fonksiyonel gruplarının ( $-O$ ,  $-OH$ ,  $-S$ ,  $-N$  vb.) kontrollü biçimde oluşturulması ve bu fonksiyonel grupların iyon taşınımı ile yük depolama mekanizmaları üzerindeki etkilerinin ayrıntılı olarak incelenmesi önerilmektedir. Yüzey kimyasının ayarlanması, özellikle yüksek akım yoğunluklarında kapasite korunumu ve uzun süreli çevrim kararlılığı açısından önemli kazanımlar sağlayabilir.

Bunun yanı sıra, MBene malzemelerinin karbon bazlı malzemeler (grafen, indirgenmiş grafen oksit, karbon nanotüpler veya aktif karbon) ile kompozit yapılar hâlinde tasarlanması, elektrotların mekanik dayanımını, elektriksel iletkenliğini ve elektrolit erişilebilirliğini iyileştirebilir. Özellikle esnek ve ince film süperkapasitör uygulamaları için bu tür kompozit elektrot mimarileri önemli bir araştırma alanı olarak değerlendirilebilir.

Gelecek çalışmalarda, enerji depolama mekanizmalarının daha derinlemesine anlaşılabilmesi için in-situ veya operando karakterizasyon tekniklerinin (in-situ XRD, Raman spektroskopisi veya elektrokimyasal kuvars kristal mikroterazi (EQCM) tekniği gibi) kullanılması önerilmektedir. Bu yaklaşımlar, iyon enterkalasyonuna, yüzey redoks reaksiyonları ve yapısal değişimlerin gerçek zamanlı olarak izlenmesine olanak sağlayacaktır.

Ayrıca, deneysel sonuçların teorik çalışmalarla desteklenmesi amacıyla yoğunluk fonksiyoneli teorisi (DFT) hesaplamalarının gerçekleştirilmesi, katkılama, yüzey fonksiyonelleştirme ve farklı elektrolit ortamlarının MBene'lerin elektronik yapısı üzerindeki etkilerinin anlaşılmasına önemli katkılar sunacaktır.

Farklı elektrolit sistemlerinin (organik elektrolitler, iyonik sıvılar veya geniş potansiyel penceresine sahip jel elektrolitler) kullanılmasıyla çalışma geriliminin artırılması ve enerji yoğunluğunun iyileştirilmesi mümkündür.

Son olarak, bu tez kapsamında geliştirilen MBene tabanlı elektrotların yalnızca süperkapasitörlerle sınırlı kalmayıp, lityum-iyon, sodyum-iyon veya potasyum-iyon piller gibi diğer enerji depolama sistemlerinde ve elektrokatalitik uygulamalarda (örneğin CO<sub>2</sub> indirgenmesi veya hidrojen üretimi) denenmesi, bu malzemelerin çok işlevli kullanım potansiyelini ortaya koymak açısından büyük önem taşımaktadır.

Bu öneriler doğrultusunda yürütülecek gelecekteki çalışmaların, MBene ailesine ait malzemelerin temel özelliklerinin daha iyi anlaşılmasına ve ileri nesil enerji depolama teknolojilerinde etkin biçimde kullanılmasına önemli katkılar sağlayacağı düşünülmektedir.

## 7. KAYNAKLAR

- Ade, M., & Hillebrecht, H. (2015). Ternary borides  $\text{Cr}_2\text{AlB}_2$ ,  $\text{Cr}_3\text{AlB}_4$ , and  $\text{Cr}_4\text{AlB}_6$ : the first members of the series  $(\text{CrB}_2)_n\text{CrAl}$  with  $n= 1, 2, 3$  and a unifying concept for ternary borides as MAB-phases. *Inorganic chemistry*, 54(13), 6122-6135.
- Aghamohammadi, P., Karakaya Mert, F., Akgul, E. T., Aghabalapoor Keshtiban, N., Altıncı, O. C., Gelir, A., ... & Demir, M. (2025b). Synthesis, characterization, and theoretical modeling of 2D molybdenum boride (MBene) for all solid-State flexible interdigitated Supercapacitor application. *ACS omega*, 10(8), 8202-8212.
- Aghamohammadi, P., Üstün, B., Akgül, E., Altıncı, O. C., Kurtan, Ü., Koç, S. N., ... & Demir, M. (2025). CrB MBene: Synthesis, structural insights, and electrochemical performance assessment. *Journal of Alloys and Compounds*, 183679.
- Muzaffar, A., Ahamed, M. B., Deshmukh, K., & Thirumalai, J. (2019) "A review on recent advances in hybrid supercapacitors: Design, fabrication and applications", *Renewable and sustainable energy reviews*, 101, 123-145.
- Béguin, F., Presser, V., Balducci, A., & Frackowiak, E. (2014) "Carbons and electrolytes for advanced supercapacitors", *Advanced materials*, 26(14), 2219-2251.
- Yan, J., Wang, Q., Wei, T., & Fan, Z. (2014) "Recent advances in design and fabrication of electrochemical supercapacitors with high energy densities", *Advanced Energy Materials*, 4(4), 1300816.
- Zhi, M., Xiang, C., Li, J., Li, M., & Wu, N. (2013) "Nanostructured carbon–metal oxide composite electrodes for supercapacitors: a review", *Nanoscale*, 5(1), 72-88.
- Alameda, L. T., Holder, C. F., Fenton, J. L., & Schaak, R. E. (2017). Partial etching of Al from  $\text{MoAlB}$  single crystals to expose catalytically active basal planes for the hydrogen evolution reaction. *Chemistry of Materials*, 29(21), 8953-8957.
- Alameda, L. T., Lord, R. W., Barr, J. A., Moradifar, P., Metzger, Z. P., Steimle, B. C., ... & Schaak, R. E. (2019). Multi-step topochemical pathway to metastable  $\text{Mo}_2\text{AlB}_2$  and related two-dimensional nanosheet heterostructures. *Journal of the American Chemical Society*, 141(27), 10852-10861.
- Alameda, L. T., Moradifar, P., Metzger, Z. P., Alem, N., & Schaak, R. E. (2018). Topochemical deintercalation of Al from  $\text{MoAlB}$ : stepwise etching pathway, layered intergrowth structures, and two-dimensional MBene. *Journal of the American Chemical Society*, 140(28), 8833-8840.
- Alipoori, S., Mohamadi, A., Taheri, S. M. R., Barsbay, M., & Aboutalebi, S. H. (2026). Next-generation wearable electronics: The role of flexible fiber-based supercapacitors. *Journal of Energy Storage*, 167, 122484.
- Arias-Camacho, I. M., & Gonzalez Szwacki, N. (2023). Exploring the Structural, Electronic, Magnetic, and Transport Properties of 2D Cr, Fe, and Zr Monoborides. *Materials*, 16(14), 5104.

- Augustyn, V., Come, J., Lowe, M. A., Kim, J. W., Taberna, P. L., Tolbert, S. H., ... & Dunn, B. (2013). High-rate electrochemical energy storage through  $\text{Li}^+$  intercalation pseudocapacitance. *Nature materials*, 12(6), 518-522.
- Bai, Y., Qi, X., Duff, A., Li, N., Kong, F., He, X., ... & Lee, W. E. (2017). Density functional theory insights into ternary layered boride MoAlB. *Acta Materialia*, 132, 69-81.
- Barsoum, M. W. (2000). The  $\text{M}_{\text{N}+1}\text{AX}_\text{N}$  phases: A new class of solids: Thermodynamically stable nanolaminates. *Progress in solid state chemistry*, 28(1-4), 201-281.
- Bury, D., Jakubczak, M., Purbayanto, M. A. K., Rybak, M., Birowska, M., Wójcik, A., ... & Jastrzębska, A. M. (2023). Wet-chemical etching and delamination of MoAlB into MBene and its outstanding photocatalytic performance. *Advanced Functional Materials*, 33(50), 2308156.
- Cao, K., Liu, H., Li, W., Xu, C., Han, Q., Zhang, Z., & Jiao, L. (2019).  $\text{K}_2\text{Ti}_6\text{O}_{13}$  nanorods for potassium-ion battery anodes. *Journal of Electroanalytical Chemistry*, 841, 51-55.
- Chai, P., Stoian, S. A., Tan, X., Dube, P. A., & Shatruk, M. (2015). Investigation of magnetic properties and electronic structure of layered-structure borides  $\text{AlT}_2\text{B}_2$  (T= Fe, Mn, Cr) and  $\text{AlFe}_{2-x}\text{M}_{\text{nx}}\text{B}_2$ . *Journal of Solid State Chemistry*, 224, 52-61.
- Chen, D. R., Chitranshi, M., Schulz, M., & Shanov, V. (2019) "A Review of Three Major Factors Controlling Carbon Nanotubes Synthesis from the Floating Catalyst Chemical Vapor Deposition", *Nano Life*, 9(04), 1930002.
- Dahlqvist, M., Barsoum, M. W., & Rosen, J. (2024). MAX phases—Past, present, and future. *Materials Today*, 72, 1-24.
- Duan, H., Zhang, J., & Zhao, T. (2025). Hydrothermal fabrication and electrochemical properties of MoB MBene as supercapacitor electrode material. *Diamond and Related Materials*, 113139.
- Gao, J. F., Hou, J. F., & Kong, L. B. (2021). Amorphous cobalt boride alloy synthesized by liquid phase methods as electrode materials for electrochemical capacitors. *Particle & Particle Systems Characterization*, 38(5), 2100020.
- Gonzalez-Llorente, J., Lidtke, A. A., Hatanaka, K., Limam, L., Fajardo, I., & Okuyama, K. I. (2020). In-orbit feasibility demonstration of supercapacitors for space applications. *Acta Astronautica*, 174, 294-305.
- Guo, Z., Zhou, J., & Sun, Z. (2017). New two-dimensional transition metal borides for Li ion batteries and electrocatalysis. *Journal of Materials Chemistry A*, 5(45), 23530-23535.
- Hayat, A., Sohail, M., Hamdy, M. S., Taha, T. A., AlSalem, H. S., Alenad, A. M., ... & Mane, S. K. B. (2022). Fabrication, characteristics, and applications of bor nitride and their composite nanomaterials. *Surfaces and Interfaces*, 29, 101725.
- Huang, Y., Pan, Y. H., Yang, R., Bao, L. H., Meng, L., Luo, H. L., ... & Gao, H. J. (2020). Universal mechanical exfoliation of large-area 2D crystals. *Nature communications*, 11(1), 2453.

- Ibragimova, R., Rinke, P., & Komsa, H. P. (2022). Native vacancy defects in MXenes at etching conditions. *Chemistry of Materials*, 34(7), 2896-2906.
- Jakubczak, M., Szuplewska, A., Rozmysłowska-Wojciechowska, A., Rosenkranz, A., & Jastrzębska, A. M. (2021). Novel 2D MBenes—synthesis, structure, and biotechnological potential. *Advanced Functional Materials*, 31(38), 2103048.
- Jakubczak, M., Wojciechowska, A., Zambrano, D. F., Moncada, D., Birowska, M., Moszczyńska, D., ... & Jastrzębska, A. M. (2023). Synthesis, properties and solid lubrication performance of MoAlB-based MBene. *Applied Materials Today*, 35, 101925.
- Javed, M. S., Zhang, X., Ahmad, T., Usman, M., Shah, S. S. A., Ahmad, A., ... & Han, W. (2024). MXenes to MBenes: latest development and opportunities for energy storage devices. *Materials Today*, 74, 121-148.
- Jiang, Y., & Lu, Y. (2020). Designing transition-metal-boride-based electrocatalysts for applications in electrochemical water splitting. *Nanoscale*, 12(17), 9327-9351.
- Kandavelu, K., Gunasekaran, M., Ashokan, A., & Rajendran, S. (2025). Green energy management in electric vehicles with regenerative braking using super capacitors and batteries. *GLOBAL NEST JOURNAL*, 27(7).
- Khan, A. J., Shah, S. S., Khan, S., Mateen, A., Iqbal, B., Naseem, M., ... & Zhao, G. (2024). 2D metal borides (MBenes): Synthesis methods for energy storage applications. *Chemical Engineering Journal*, 497, 154429.
- Khazaei, M., Wang, J., Estili, M., Ranjbar, A., Suehara, S., Arai, M., ... & Yunoki, S. (2019). Novel MAB phases and insights into their exfoliation into 2D MBenes. *Nanoscale*, 11(23), 11305-11314.
- Kiamahalleh, M. V., Zein, S. H. S., Najafpour, G., Sata, S. A., & Buniran, S. (2012). Multiwalled carbon nanotubes based nanocomposites for supercapacitors: a review of electrode materials. *Nano*, 7(02), 1230002.
- Kitchamsetti, N., de Barros, A. L., Han, H., & Mhin, S. (2025). Unveiling MBenes: A New Class of 2D Materials Shaping the Future of Energy. *Advanced Sustainable Systems*, 9(9), e00581.
- Kota, S., Agne, M., Zapata-Solvas, E., Dezellus, O., Lopez, D., Gardiola, B., ... & Barsoum, M. W. (2017). Elastic properties, thermal stability, and thermodynamic parameters of MoAlB. *Physical Review B*, 95(14), 144108.
- Kota, S., Zapata-Solvas, E., Ly, A., Lu, J., Elkassabany, O., Huon, A., ... & Barsoum, M. W. (2016). Synthesis and characterization of an alumina forming nanolaminated boride: MoAlB. *Scientific reports*, 6(1), 26475.
- Kyeremateng, N. A., Brousse, T., & Pech, D. (2017). Microsupercapacitors as miniaturized energy-storage components for on-chip electronics. *Nature nanotechnology*, 12(1), 7-15.
- Li, R., Wang, Y., Xu, L. C., Shen, J., Zhao, W., Yang, Z., ... & Li, X. (2020). A bor-exposed TiB<sub>3</sub> monolayer with a lower electrostatic-potential surface as a higher-performance

- anode material for Li-ion and Na-ion batteries. *Physical Chemistry Chemical Physics*, 22(39), 22236-22243.
- Lim, K. R. G., Shekhirev, M., Wyatt, B. C., Anasori, B., Gogotsi, Y., & Seh, Z. W. (2022). Fundamentals of MXene synthesis. *Nature Synthesis*, 1(8), 601-614.
- Liu, D., Liu, H., Ning, S., Ye, B., & Chu, Y. (2019). Synthesis of high-purity high-entropy metal diboride powders by boro/carbothermal reduction. *Journal of the American Ceramic Society*, 102(12), 7071-7076.
- Liu, J., Li, S., Yao, B., Hu, S., Zhang, J., Yu, W., & Zhou, Y. (2018). Rapid synthesis and characterization of a nanolaminated Fe<sub>2</sub>AlB<sub>2</sub> compound. *Journal of Alloys and Compounds*, 766, 488-497.
- Liu, X., Liu, Z., & Deng, H. (2021). Theoretical evaluation of MBenes as catalysts for the CO<sub>2</sub> reduction reaction. *The Journal of Physical Chemistry C*, 125(35), 19183-19189.
- Liu, Y., Wang, H., Fu, Y., Li, D., Wei, M., Wu, Q., & Hu, Q. (2023). Functionalized two-dimensional iron boride compounds as novel electrode materials in Li-ion batteries. *Physical Chemistry Chemical Physics*, 25(34), 23133-23140.
- Luo, X., Wang, J., Dooner, M., & Clarke, J. (2015) "Overview of current development in electrical energy storage technologies and the application potential in power system operation", *Applied energy*, 137, 511-536.
- Ma, X., Wen, J., Zhang, S., Yuan, H., Li, K., Yan, F., ... & Chen, Y. (2017). Crystal Co<sub>x</sub>B (x= 1–3) synthesized by a ball-milling method as high-performance electrocatalysts for the oxygen evolution reaction. *ACS Sustainable Chemistry & Engineering*, 5(11), 10266-10274.
- Majed, A., Torkamanzadeh, M., Nwaokorie, C. F., Eisawi, K., Dun, C., Buck, A., ... & Naguib, M. (2023). Toward MBenes Battery Electrode Materials: Layered Molybdenum Borides for Li-Ion Batteries. *Small methods*, 7(8), 2300193.
- Miao, N., Gong, Y., Zhang, H., Shen, Q., Yang, R., Zhou, J., ... & Wang, J. (2023). Discovery of Two-dimensional hexagonal MBene HfBO and exploration on its potential for Lithium-Ion storage. *Angewandte Chemie*, 135(36), e202308436.
- Miller, J. R., & Burke, A. (2008). Electrochemical capacitors: challenges and opportunities for real-world applications. *The electrochemical society interface*, 17(1), 53.
- Music, D., & Schneider, J. M. (2007). The correlation between the electronic structure and elastic properties of nanolaminates. *Jom*, 59(7), 60-64.
- Natu, V., Kota, S. S., & Barsoum, M. W. (2020). X-ray photoelectron spectroscopy of the MAB phases, MoAlB, M<sub>2</sub>AlB<sub>2</sub> (M= Cr, Fe), Cr<sub>3</sub>AlB<sub>4</sub> and their binary monoborides. *Journal of the European Ceramic Society*, 40(2), 305-314.
- Panda, S., Deshmukh, K., Pasha, S. K., Theerthagiri, J., Manickam, S., & Choi, M. Y. (2022). MXene based emerging materials for supercapacitor applications: Recent advances, challenges, and future perspectives. *Coordination Chemistry Reviews*, 462, 214518.

- Park, S. J., Nguyen, T. H., Tran, D. T., Dinh, V. A., Lee, J. H., & Kim, N. H. (2023). Delaminated MBene sheets beyond usual 2D transition metal materials for securing Pt single atoms to boost hydrogen evolution. *Energy & Environmental Science*, 16(9), 4093-4104.
- Partridge, J., & Abouelamaimen, D. I. (2019). The role of supercapacitors in regenerative braking systems. *Energies*, 12(14), 2683.
- Pathak, M., Polaki, S. R., & Rout, C. S. (2022). High performance asymmetric supercapacitors based on  $Ti_3C_2T_x$  MXene and electrodeposited spinel  $NiCo_2S_4$  nanostructures. *RSC advances*, 12(17), 10788-10799.
- Pottathara, Y. B. (2017). Graphene based Composites with Cellulose Nanofibrils for Energy storage applications (Doctoral dissertation, Université de Bretagne Sud).
- Prasankumar, T., Jose, J., Jose, S., & Balakrishnan, S. P. (2021). Pseudocapacitors. In *Supercapacitors for the Next Generation*. IntechOpen.
- Pu, J., Fan, S., Shen, Z., Yin, J., Tan, Y., Zhang, K., ... & Yao, Y. (2025). F-Free Fabrication Novel 2D Mo-Based MBene Catalyst for Advanced Lithium–Sulfur Batteries. *Advanced Functional Materials*, 35(25), 2424215.
- Qin, T., Wang, Z., Wang, Y., Besenbacher, F., Otyepka, M., & Dong, M. (2021). Recent progress in emerging two-dimensional transition metal carbides. *Nano-micro letters*, 13(1), 183.
- Ramezanzadeh, M., Ghamarpoor, R., Dashan, A., Fallah, A., Soleimani, S., & Ramezanzadeh, B. (2025). 2D-Transition Metal Borides (MBenes): a comprehensive review of the materials, chemistry, advances, and novel applications. *Advanced Composites and Hybrid Materials*, 8(3), 269.
- Ruan, Y., He, Z. H., Liu, Z. T., Wang, W., Hao, L., Xu, L., ... & Sun, Z. (2023). Emerging two-dimensional materials for the electrocatalytic nitrogen reduction reaction to yield ammonia. *Journal of Materials Chemistry A*, 11(42), 22590-22607.
- Seetharaman, A., Kandasamy, M., Khanolkar, H., Manickavasakam, K., & Chakraborty, B. (2024). MBenes: Powering the future of energy storage and electrocatalysis. *Journal of Energy Storage*, 100, 113310.
- Shao, H., Lin, Z., Xu, K., Taberna, P. L., & Simon, P. (2019). Electrochemical study of pseudocapacitive behavior of  $Ti_3C_2T_x$  MXene material in aqueous electrolytes. *Energy Storage Materials*, 18, 456-461.
- Sharma, A., Rangra, V. S., & Thakur, A. (2022). Synthesis, properties, and applications of MBenes (two-dimensional metal borides) as emerging 2D materials: a review. *Journal of Materials Science*, 57(27), 12738-12751.
- Sharma, M., Ajayan, P. M., & Deb, P. (2023). Quantum energy storage in 2D heterointerfaces. *Advanced Materials Interfaces*, 10(11), 2202058.

- Shi, X., Guo, F., Hou, K., Guan, G., Lu, L., Zhang, Y., ... & Shang, Y. (2023). Highly flexible all-solid-state supercapacitors based on MXene/CNT composites. *Energy & Fuels*, 37(13), 9704-9712.
- Siriwardane, E. M., Joshi, R. P., Kumar, N., & Çakır, D. (2020). Revealing the formation energy–exfoliation energy–structure correlation of MAB phases using machine learning and DFT. *ACS applied materials & interfaces*, 12(26), 29424-29431.
- Tuzluca Yesilbag, F. N., Yesilbag, Y. O., Huseyin, A., Salih, A. J. S., & Ertugrul, M. (2025). Electrochemical performance of Fe<sub>2</sub>Al<sub>1-x</sub>B<sub>2</sub> MBene as a novel electrode material for supercapacitor applications. *Journal of Energy Storage*, 140, 118944.
- Wang, G., Zhang, L., & Zhang, J. (2012). A review of electrode materials for electrochemical supercapacitors. *Chemical Society Reviews*, 41(2), 797-828.
- Wang, H. F., Tang, C., Zhao, C. X., Huang, J. Q., & Zhang, Q. (2022). Emerging graphene derivatives and analogues for efficient energy electrocatalysis. *Advanced Functional Materials*, 32(42), 2204755.
- Wang, H., Yan, J., Wang, R., Li, S., Brett, D. J., Key, J., & Ji, S. (2017). Toward high practical capacitance of Ni (OH)<sub>2</sub> using highly conductive CoB nanochain supports. *Journal of Materials Chemistry A*, 5(1), 92-96.
- Wang, J., Malgras, V., Sugahara, Y., & Yamauchi, Y. (2021). Electrochemical energy storage performance of 2D nanoarchitected hybrid materials. *Nature communications*, 12(1), 3563.
- Wang, J., Ye, T. N., Gong, Y., Wu, J., Miao, N., Tada, T., & Hosono, H. (2019). Discovery of hexagonal ternary phase Ti<sub>2</sub>InB<sub>2</sub> and its evolution to layered boride TiB. *Nature communications*, 10(1), 2284.
- Wang, S., Gao, Y., Yang, Z., Zhou, H., Ni, D., Li, C., ... & Zhang, X. (2025). Heterostructured CoO/MoB MBene composites for high performance lithium-ion batteries anode. *iScience*, 28(4).
- Wang, Y., Wang, X., Li, X., Liu, R., Bai, Y., Xiao, H., ... & Yuan, G. (2020). Intercalating ultrathin MoO<sub>3</sub> nanobelts into MXene film with ultrahigh volumetric capacitance and excellent deformation for high-energy-density devices. *Nano-micro letters*, 12(1), 115.
- Waqas Hakim, M., Fatima, S., Rizwan, S., & Mahmood, A. (2022). Pseudo-capacitors: Introduction, controlling factors and future. In *Nanostructured Materials for Supercapacitors* (pp. 53-70). Cham: Springer International Publishing.
- Wei, S., Kale, G., & Lai, X. (2024). Unlocking Enhanced Electrochemical Performance of MBene-MoB Through Controlled Aluminum Dissipation from MoAlB. *Small*, 20(38), 2401573.
- Wei, S., Lai, X., & Kale, G. M. (2023). Exploring the potential of MBenes supercapacitors: fluorine-free synthesized MoAl<sub>1-x</sub>B with ultrahigh conductivity and open space. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 15(28), 33560-33570.

- Wei, Y., Zheng, M., Luo, W., Dai, B., Ren, J., Ma, M., ... & Ma, Y. (2022). All pseudocapacitive MXene-MnO<sub>2</sub> flexible asymmetric supercapacitor. *Journal of Energy Storage*, 45, 103715.
- Winter, M., & Brodd, R. J. (2004) "What are batteries, fuel cells, and supercapacitors?", *Chemical reviews*, 104(10), 4245-4270.
- Wu, X., Hu, W., Qiu, J., Geng, B., Du, M., & Zheng, Q. (2022). Solvent-assisted self-assembly to fabricate a ternary flexible free-standing polyaniline@ MXene-CNTs electrode for high-performance supercapacitors. *Journal of Alloys and Compounds*, 921, 166062.
- Xiao, Y., Li, Y., Guo, Z., Tang, C., Sa, B., Miao, N., ... & Sun, Z. (2021). Functionalized Mo<sub>2</sub>B<sub>2</sub> MBenes: promising anchoring and electrocatalysis materials for lithium-sulfur battery. *Applied Surface Science*, 566, 150634.
- Xiong, W., Feng, X., Xiao, Y., Huang, T., Li, X., Huang, Z., ... & Liu, J. (2022). Fluorine-free prepared two-dimensional molybdenum boride (MBene) as a promising anode for lithium-ion batteries with superior electrochemical performance. *Chemical Engineering Journal*, 446, 137466.
- Yu, A., Chabot, V., & Zhang, J. (2013) "Electrochemical supercapacitors for energy storage and delivery: fundamentals and applications" (p. 383), *Taylor & Francis*.
- Yu, Y., & Lundström, T. (1995). Crystal growth and structural investigation of the new quaternary compound Mo<sub>1-x</sub>Cr<sub>x</sub>AlB with x= 0.39. *Journal of alloys and compounds*, 226(1-2), 5-9.
- Zhang, B., Zhou, J., & Sun, Z. (2022). MBenes: progress, challenges and future. *Journal of Materials Chemistry A*, 10(30), 15865-15880.
- Zhang, G., Li, X., Chen, K., Guo, Y., Ma, D., & Chu, K. (2023c). Tandem electrocatalytic nitrate reduction to ammonia on MBenes. *Angewandte Chemie International Edition*, 62(13), e202300054.
- Zhang, H., Dai, F. Z., Xiang, H., Wang, X., Zhang, Z., & Zhou, Y. (2019). Phase pure and well crystalline Cr<sub>2</sub>AlB<sub>2</sub>: A key precursor for two-dimensional CrB. *Journal of Materials Science & Technology*, 35(8), 1593-1600.
- Zhang, H., Xiang, H., Dai, F. Z., Zhang, Z., & Zhou, Y. (2018). First demonstration of possible two-dimensional MBene CrB derived from MAB phase Cr<sub>2</sub>AlB<sub>2</sub>. *Journal of Materials Science & Technology*, 34(11), 2022-2026.
- Zhang, J., & Zhao, X. S. (2012). On the configuration of supercapacitors for maximizing electrochemical performance. *ChemSusChem*, 5(5), 818-841.
- Zhang, J., Gu, M., & Chen, X. (2023). Supercapacitors for renewable energy applications: A review. *Micro and Nano Engineering*, 21, 100229.
- Zhang, T., Zhang, B., Peng, Q., Zhou, J., & Sun, Z. (2021). Mo<sub>2</sub>B<sub>2</sub> MBene-supported single-atom catalysts as bifunctional HER/OER and OER/ORR electrocatalysts.

- Zhang, W., Li, S., Fan, X., Zhang, X., Fan, S., & Bei, G. (2024a). Two-dimensional carbonitride MXenes: From synthesis to properties and applications. *Carbon Energy*, 6(12), e609.
- Zhang, Y., Zhang, Y., Guo, Z., Fang, Y., Tang, C., Miao, N., ... & Sun, Z. (2023b). Establishing theoretical landscapes for identifying basal plane active sites in MBene toward multifunctional HER, OER, and ORR catalysts. *Journal of Colloid and Interface Science*, 652, 1954-1964.
- Zhang, Z., Ling, W., Ma, N., Wang, J., Chen, X., Fan, J., ... & Huang, Y. (2024c). Ultralong Cycle Life and High Rate of Zn|| I2 Battery Enabled by MBene-Hosted I2 Cathode. *Advanced Functional Materials*, 34(1), 2310294.
- Zheng, Z., Cui, Z., Peng, W., & Liu, J. (2025). Advances in Emerging MBene-Based Materials for Electrocatalysis. *Advanced Functional Materials*, e13341.
- Zhou, J., Palisaitis, J., Halim, J., Dahlqvist, M., Tao, Q., Persson, I., ... & Rosen, J. (2021). Boridene: Two-dimensional  $\text{Mo}_{4/3}\text{B}_{2-x}$  with ordered metal vacancies obtained by chemical exfoliation. *Science*, 373(6556), 801-805.
- Zhou, S., Yang, X., Pei, W., Jiang, Z., & Zhao, J. (2020). MXene and MBene as efficient catalysts for energy conversion: roles of surface, edge and interface. *Journal of Physics: Energy*, 3(1), 012002.

## 8. EKLER

### Ek-1. Tez Çalışması Süresince Yapılan Akademik Çalışmalar

#### 1. Uluslararası Makale

##### SCIE veya SSCI kapsamındaki dergide yayımlanmış makale

1. Yesilbag, Y. O., Yesilbag, F. N. T., Huseyin, A., Salih, A. J. S., & Ertugrul, M. (2026). 2D/2D Borophene/Ti<sub>2</sub>NbC<sub>2</sub>T<sub>x</sub> MXene hybrids as advanced electrodes for supercapacitors. *Chemical Engineering Journal*, 176896.
2. Yesilbag, F. N. T., Yesilbag, Y. O., Huseyin, A., Salih, A. J. S., & Ertugrul, M. (2025). Electrochemical performance of Fe<sub>2</sub>Al<sub>1-x</sub>B<sub>2</sub> MBene as a novel electrode material for supercapacitor applications. *Journal of Energy Storage*, 140, 118944.
3. Huseyin, A., & Salih, A. J. S. (2025). Batteries and supercapacitors: An analytical perspective on electrode materials and performance challenges. *Journal of Alloys and Compounds*, 181972.
4. Salih, A. J. S., & Huseyin, A. (2025). Nitrogen-doped MXene for supercapacitor: A review. *Journal of Energy Storage*, 131, 117521.
5. Yesilbag, Y. O., & Salih, A. J. S. (2025). Optimization of MXene/CNT free-standing composite electrodes for enhanced electrochemical performance in symmetric supercapacitors. *Materials Research Bulletin*, 113703.
6. Tuzluca Yesilbag, F. N., Yesilbag, Y. O., Huseyin, A., Salih, A. J. S., & Ertugrul, M. (2025). Ti<sub>2</sub>NbC<sub>2</sub>T<sub>x</sub> MXene Nanosheets as an Ordered Double Transition Metal Electrode for High-Performance Supercapacitors. *ACS Applied Nano Materials*, 8(18), 9211-9226.
7. Yesilbag, F. N. T., Yesilbag, Y. O., Huseyin, A., Salih, A. J. S., & Ertugrul, M. (2023). Rational design of MXene/Boron Carbon Nitride nanotube composite electrode for supercapacitors with improved electrochemical properties. *Journal of Energy Storage*, 72, 108446.

#### 2. Kitap

##### BKCI kapsamındaki kitapta bölüm

1. Yesilbag, Y. O., Yesilbag, F. N. T., Huseyin, A., Salih, A. J. S., & Ertugrul, M. (2026). 2D Materials for Solar-Assisted Hybrid Energy Storage Devices: Photo-Supercapacitors. *Solar Capacitors and Batteries*, 143-173.

#### 3. Ulusal Makale

##### TR Dizin kapsamındaki dergide yayımlanmış makale

1. Yeşilbağ, Y. Ö., Tuzluca, F. N., Hüseyin, A., & Salih, A. J. (2024). Synthesis of Tungsten Disulfide on BN-Doped Carbon Nanotubes to Enhance the Electrochemical Performance of Supercapacitors. *Erzincan University Journal of Science and Technology*, 17(2), 563-572.
2. Tuzluca, F. N., Yeşilbağ, Y. Ö., Salih, A. J., & Hüseyin, A. (2024). The effect of Aluminum (Al) ratio on the synthesis of the laminated Mn<sub>2</sub>AlB<sub>2</sub> MAB Phase. *Erzincan University Journal of Science and Technology*, 17(3), 598-606.

#### 4. Projeler

1. İki boyutlu heteroyapılı hibrit esnek elektrotların oluşturulması ve süperkapasitör özelliklerinin araştırılması, TÜBİTAK Projesi, 1001- Bilimsel ve Teknolojik Araştırma Projelerini Destekleme Programı. Projedeki Görevi: Bursiyer, 2024-2026.
2.  $(\text{Ti}_2\text{Nb})\text{C}_2$  sıralı faz MXene ve  $\text{Fe}_2\text{B}_2$ ,  $\text{Mn}_2\text{B}_2$  MBene yapıların sentezi ve Hibrit SC-LIB uygulamalarının araştırılması, TÜBİTAK Projesi, 1001- Bilimsel ve Teknolojik Araştırma Projelerini Destekleme Programı. Projedeki Görevi: Bursiyer, 2021-2024.