

(3C03) $\text{Ti}_3\text{C}_2\text{T}_x$ MXeneを導電助剤として用いた Si負極の特性評価

2025年11月20日

日本材料技研株式会社 大井寛崇 (hirotaka.ooi@jmtc.co.jp)

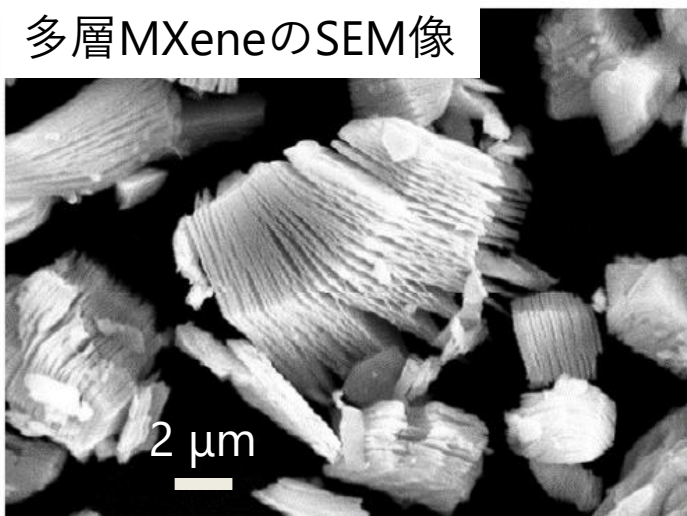
東京都立大学 小菅尚人、金村聖志

東北工業大学 下位法弘

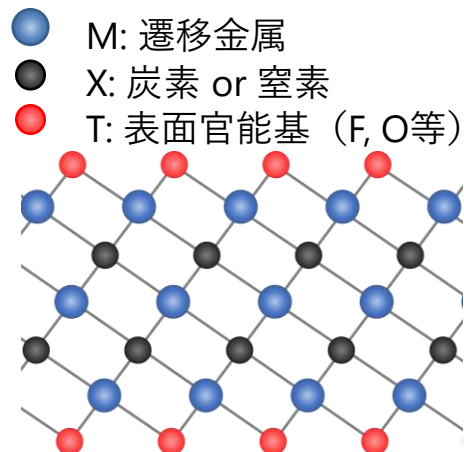


日本材料技研株式会社
Japan Material Technologies Corporation

多層MXeneのSEM像



結晶構造



H																						He
Li	Be											B	C	N	O	F	Ne					
Na	Mg											Al	Si	P	S	Cl	Ar					
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	Rf	Db	Sg	Bh	Hs	Mt	Ds	Rg	Cn	Nh	Fl	Mc	Lv	Ts	Og					

M成分

X成分

T成分

- MXeneは一般式 $M_{n+1}X_nT_x$ で表される、二次元ナノシート形状の遷移金属炭化物あるいは窒化物の総称。⁽¹⁾
Mは金属、Xは炭素または窒素、Tは酸素やフッ素等の表面官能基。
- シートがアコーディオン状に積層した多層MXene、薄いシートに剥離された剥離MXeneの形態がある。
- 元素の組み合わせで50種類以上のバリエーション。
- $Ti_3C_2T_x$ MXene：高導電性（24,000 S/cm⁽²⁾）、高分散性。
- MXene／樹脂複合材料についても0.05 ~ 6.9 vol%と低いパーコレーション閾値が報告されている。⁽³⁾
- 応用例：蓄電池やキャパシタの電極材料。透明導電膜。センサ。触媒。電磁波シールド等。

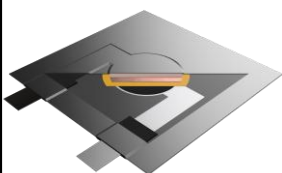
(1) Naguib M., et al., *Adv. Mater.*, 2011, **23**, 4248-4253.
(2) Ali. S. Zeraati., et al., *Nanoscale*, 2021, **13**, 3572
(3) F. Damiri, et al., *Materials* 2022, **15(5)**, 1666

MXeneを導電助剤に用いたリチウムイオン電池

電極組成

- LFP : MXene : PVDF_{W#9100} = 96 : 2 : 2

セル構成（リチウムイオン電池）

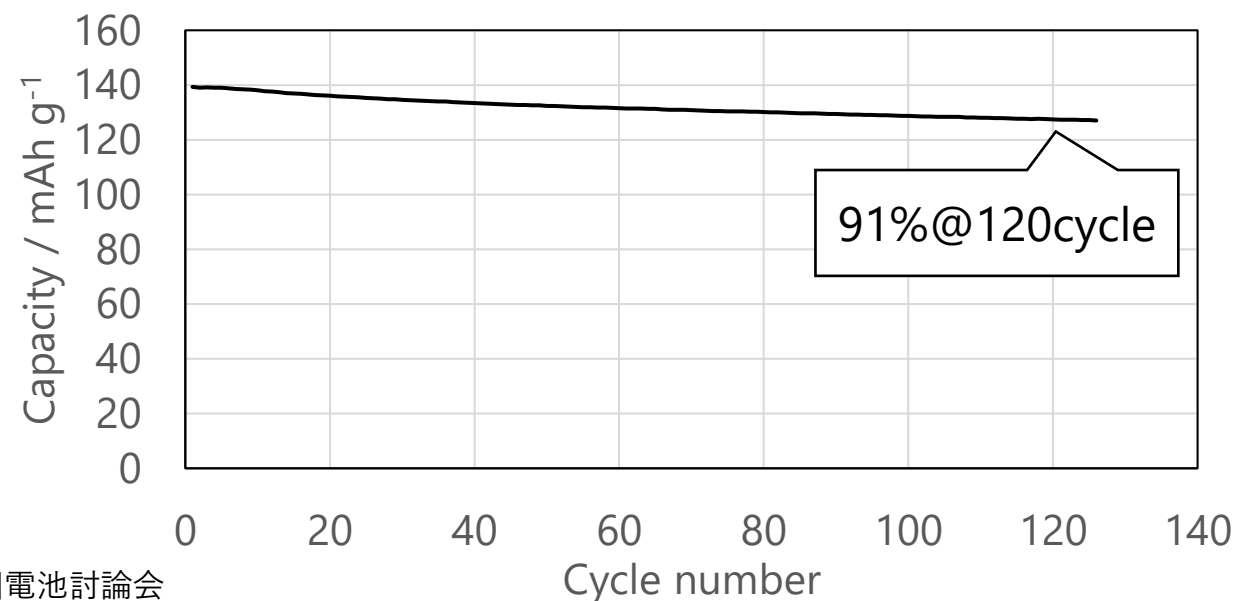
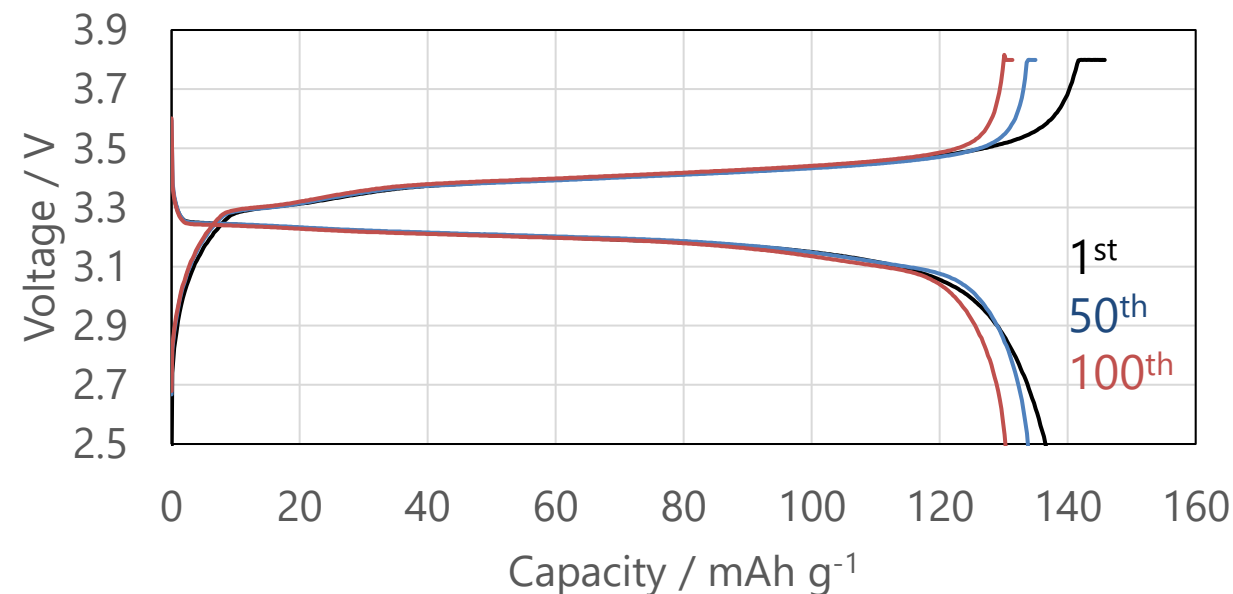


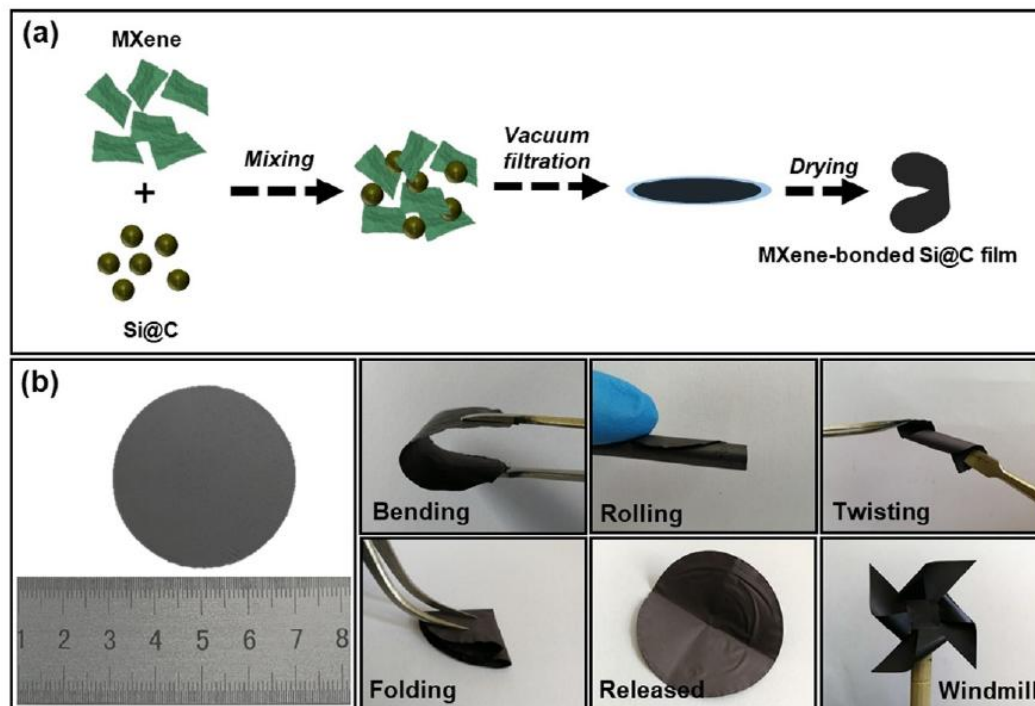
- Cathode: LFP, 1.5 mAh cm⁻²
- Anode: Gr, 2.0 mAh cm⁻²
- Separator: 3DOM Polyimide
- Electrolyte: 0.2M LiPF₆ + 1.3M LiFSA/EC:PC(1:1) + 1%VC + 1%PS

ラミネート
セル

充放電条件

- CC-CV充電 / CC放電
- カットオフ電位：3.8 V–2.5 V
- 充放電レート：1C
- 測定温度：30 °C





シリコン負極の課題⁽¹⁾

- 充放電時の大きな体積変動
- 低い導電性

対策例

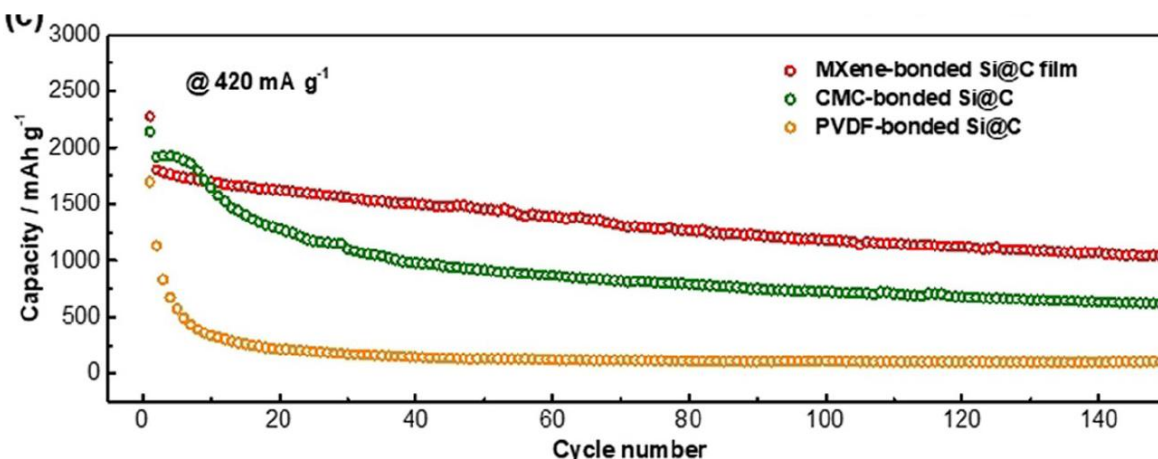
- 固いバインダー（ポリイミド等）の活用
- シリコンの小粒径化、導電材との複合化

MXene-Si複合化^(2,3)

- MXene：高導電性、ナノシート、柔軟などが特徴
- MXeneとSiを複合化して柔軟な電極が作製されている
- 良好なサイクル特性が報告されている

MXeneを一般的な電池製造プロセスへ適用するために

- 剥離MXeneの形態（粉末、NMP分散液）の検討
- Si負極への適用条件の最適化



目的

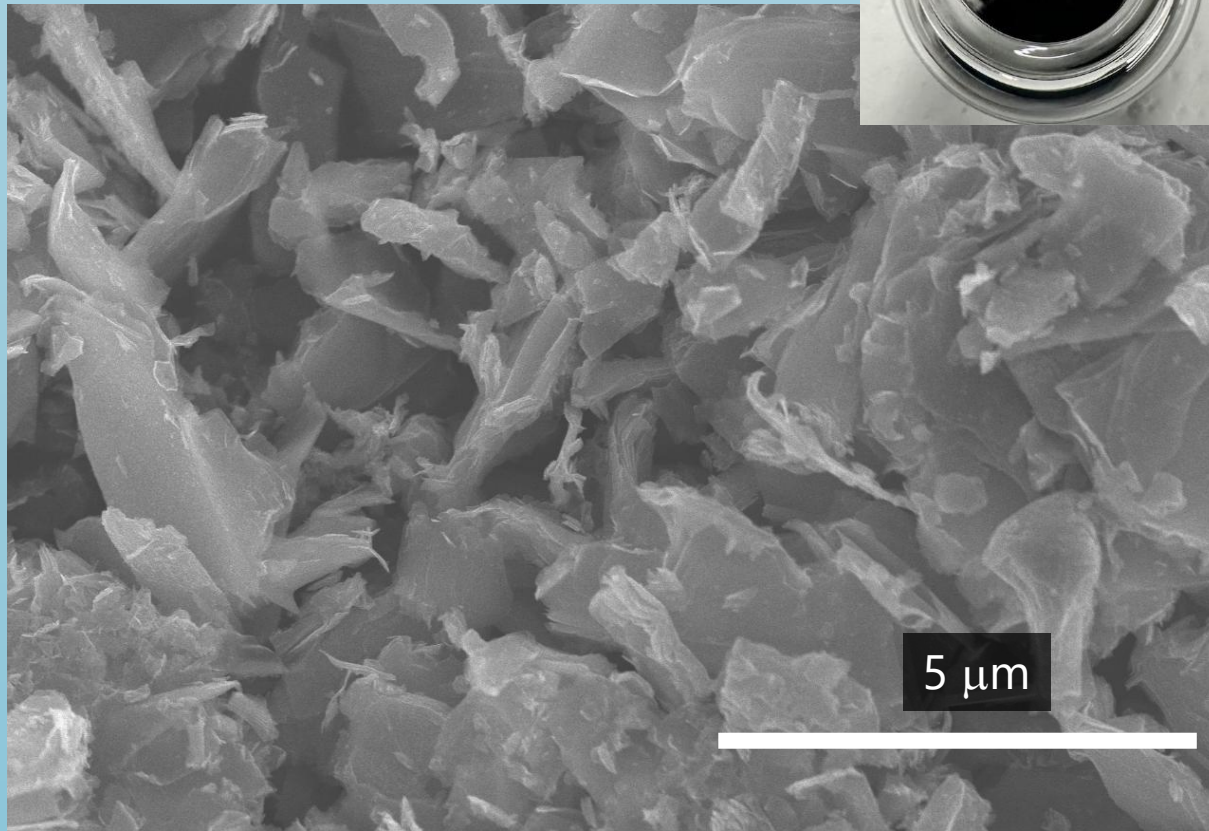
混練・塗工成膜プロセスに適用可能な導電助剤として、MXene材料を開発する。
本研究では導電助剤としてMXeneジェットミル粉とNMP分散液を作製し、それらを用いてシリコン負極を作製しその特性を調べる。

実験

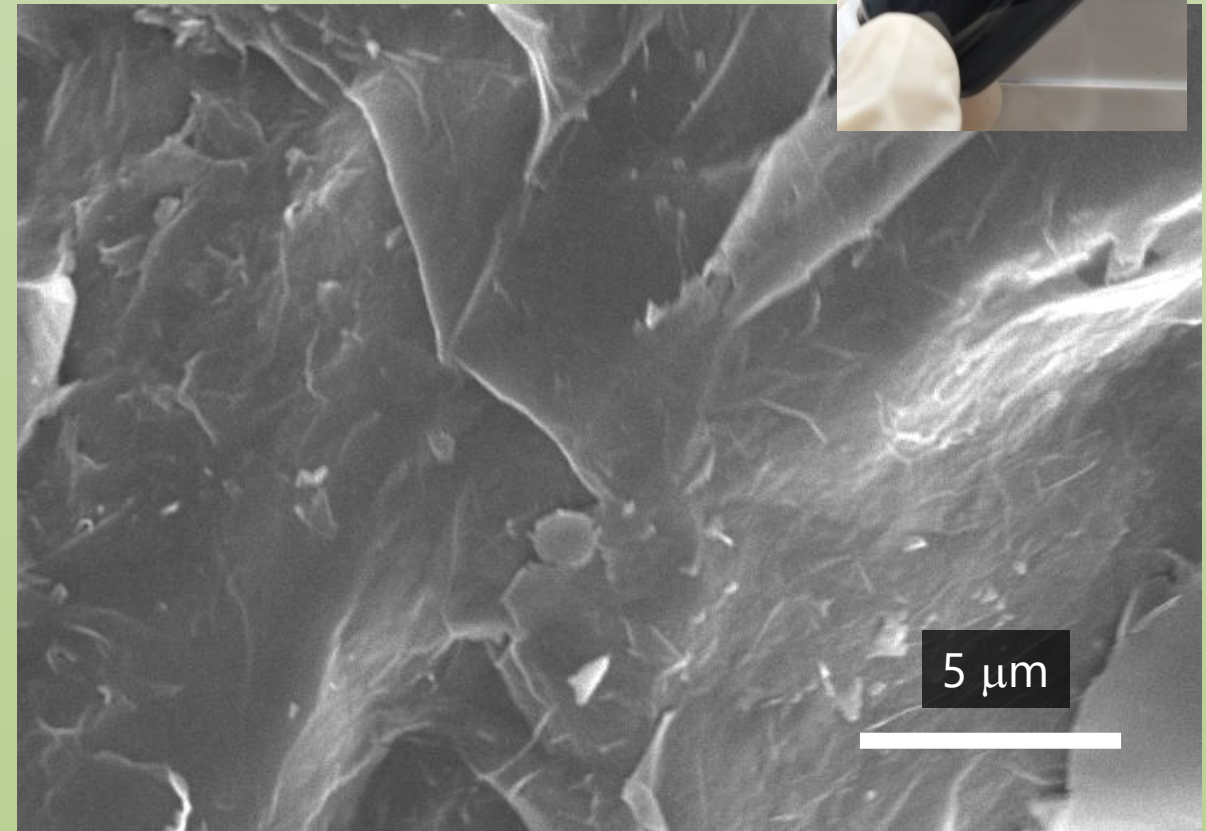
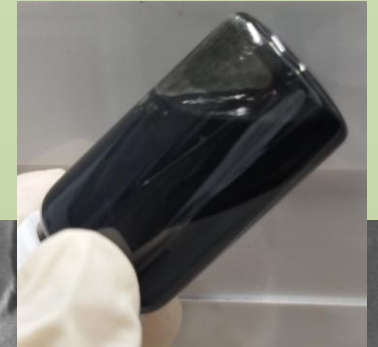
- $\text{Ti}_3\text{C}_2\text{T}_x$ MXeneの準備
 - 多層 $\text{Ti}_3\text{C}_2\text{T}_x$ MXeneのジェットミルにより物理的に剥離した粉末を作製
 - 多層 $\text{Ti}_3\text{C}_2\text{T}_x$ MXeneを化学剥離しNMPに分散した分散液を作製
- Si-MXene-ポリイミド負極の評価
 - シリコン、MXene、ポリイミドの配合比の検討
 - 剥離方法の異なるMXeneの比較

$\text{Ti}_3\text{C}_2\text{T}_x$ MXene剥離体の作製

ジェットミル粉



NMP分散液



Si負極作製方法

スラリー作製手順①

Si粉末 (5 μm), MXene
ジェットミル粉を混合



ポリイミド溶液を混合



混練

スラリー作製手順②

MXene NMP分散液,
ポリイミド溶液を混合



Si粉末 (5 μm)を混合



混練

電極作製手順

塗布



乾燥
75 $^{\circ}\text{C}$, 20 min



焼成
600~650 $^{\circ}\text{C}$, 2~3 h



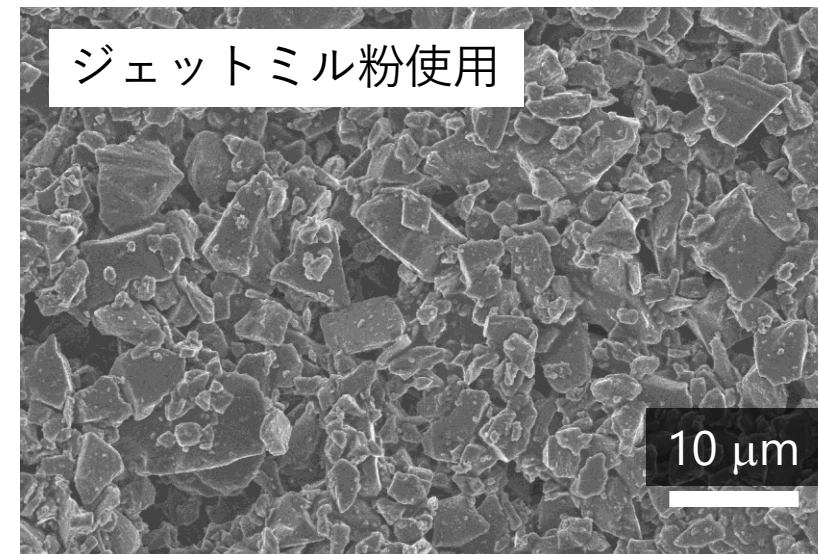
プレス



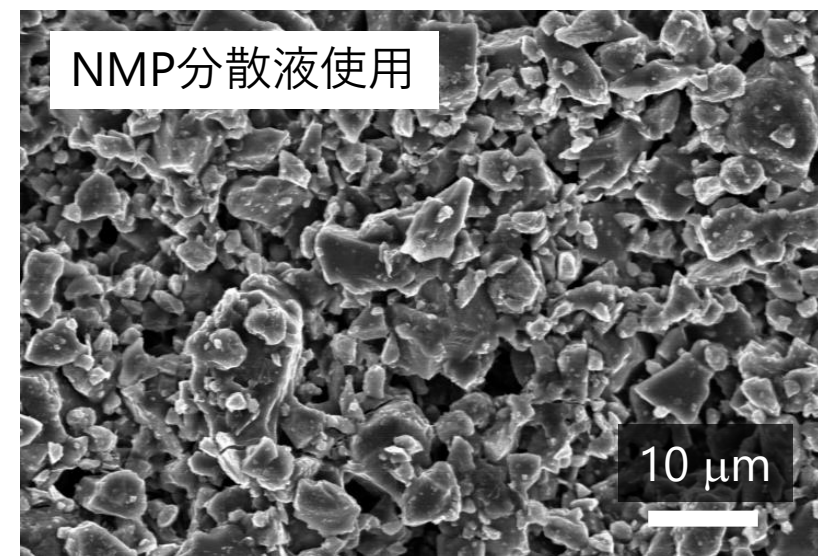
電池組立

電極表面SEM像

ジェットミル粉使用



NMP分散液使用



目的

- Si負極組成の最適化を行う

実験

- 下の負極組成表に従い負極を作製した。
※MXene NMP分散液を使用した。
- 各負極とNCM523正極とで作製したLIBの特性を評価した。

負極組成

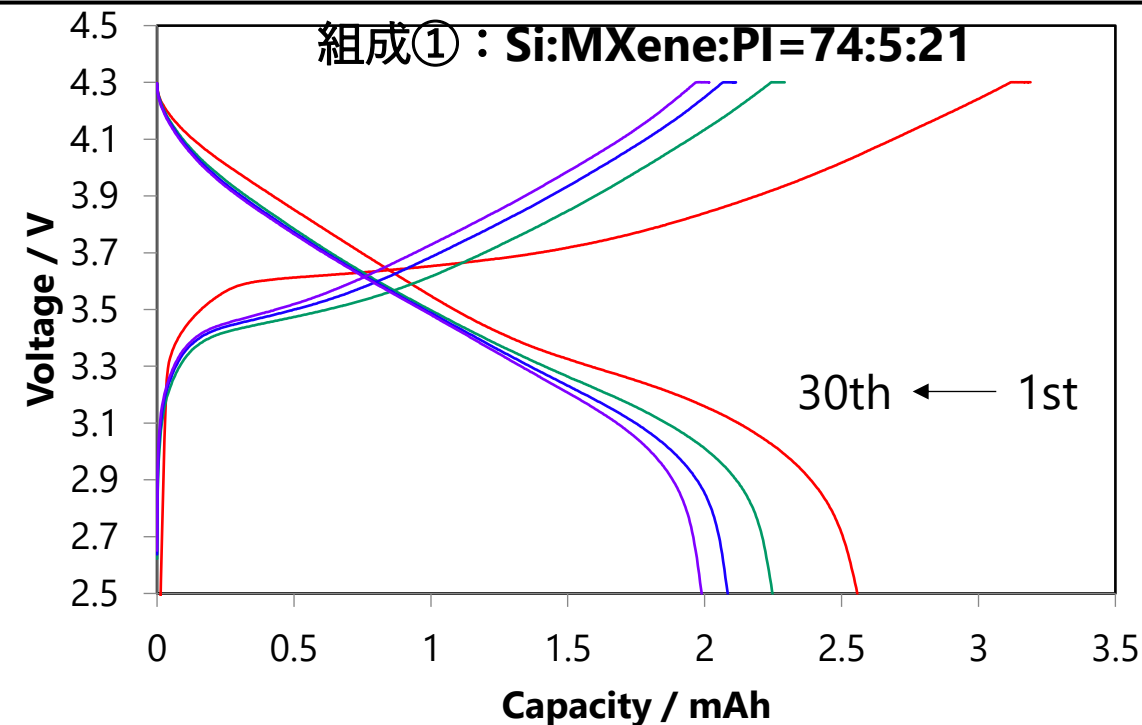
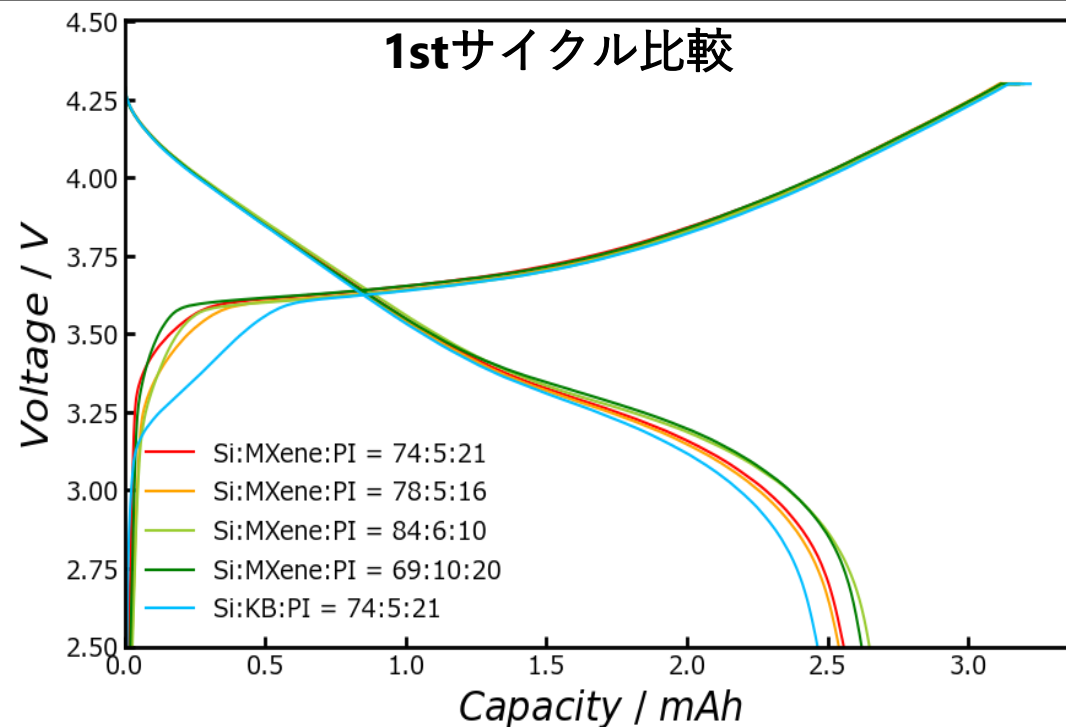
No.		Si	MXene	PI
1	%	74	5	21
2	%	78	5	16
3	%	84	6	10
4	%	69	10	20
5	%	74	5*	21

*MXeneの代わりにケッチェンブラックを使用

電池設計

項目	内容
正極	NCM523 (2.5 mAh)
負極	Si
電解液	1M LiPF ₆ EC/EMC(3:7)
セルタイプ	ラミセル

Si負極組成の検討



正極 : NCM523 (2.5mAh)

負極 : Si負極

電解液 : 1M LiPF₆ EC/EMC(3:7)

測定電圧 : 2.5-4.3V

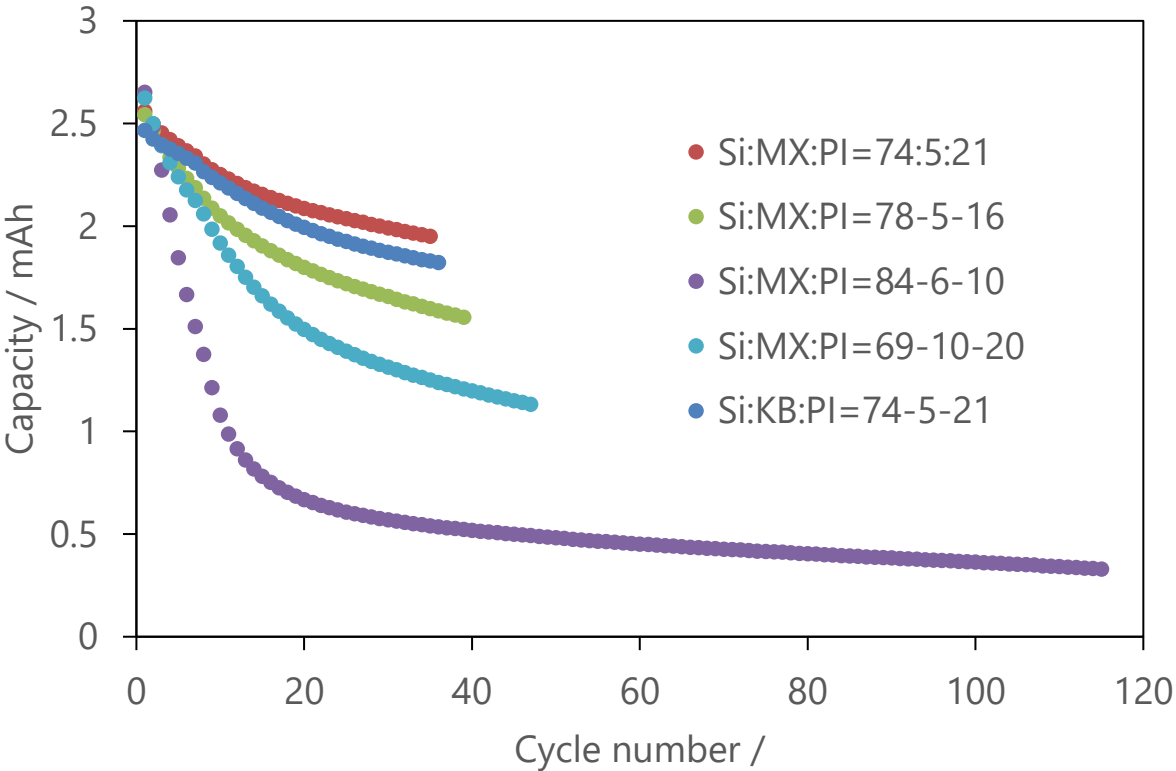
レート : 0.1C

温度 : 30°C

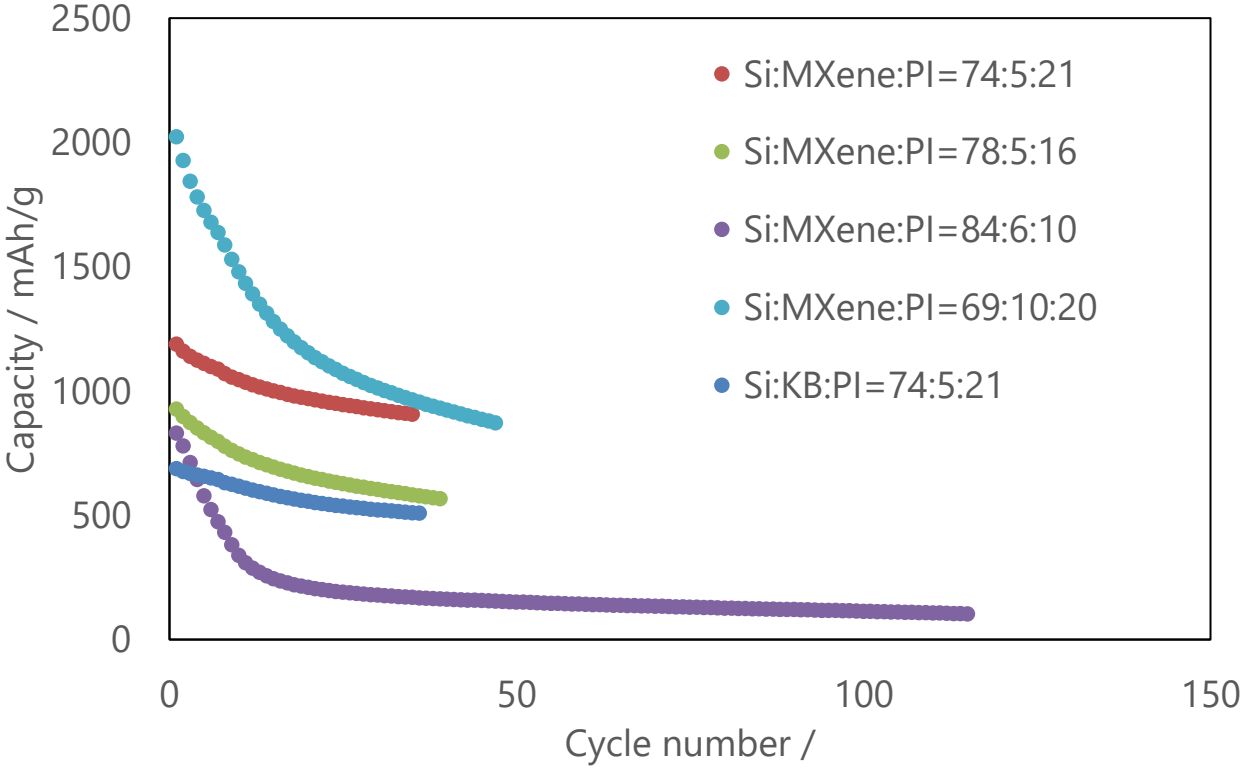
セル : ラミセル

No.	Si	MXene	PI
1	74%	5%	21%
2	78%	5%	16%
3	84%	6%	10%
4	69%	10%	20%
5	74%	KB5%*	21%

セル容量



負極活物質重量当たりの容量

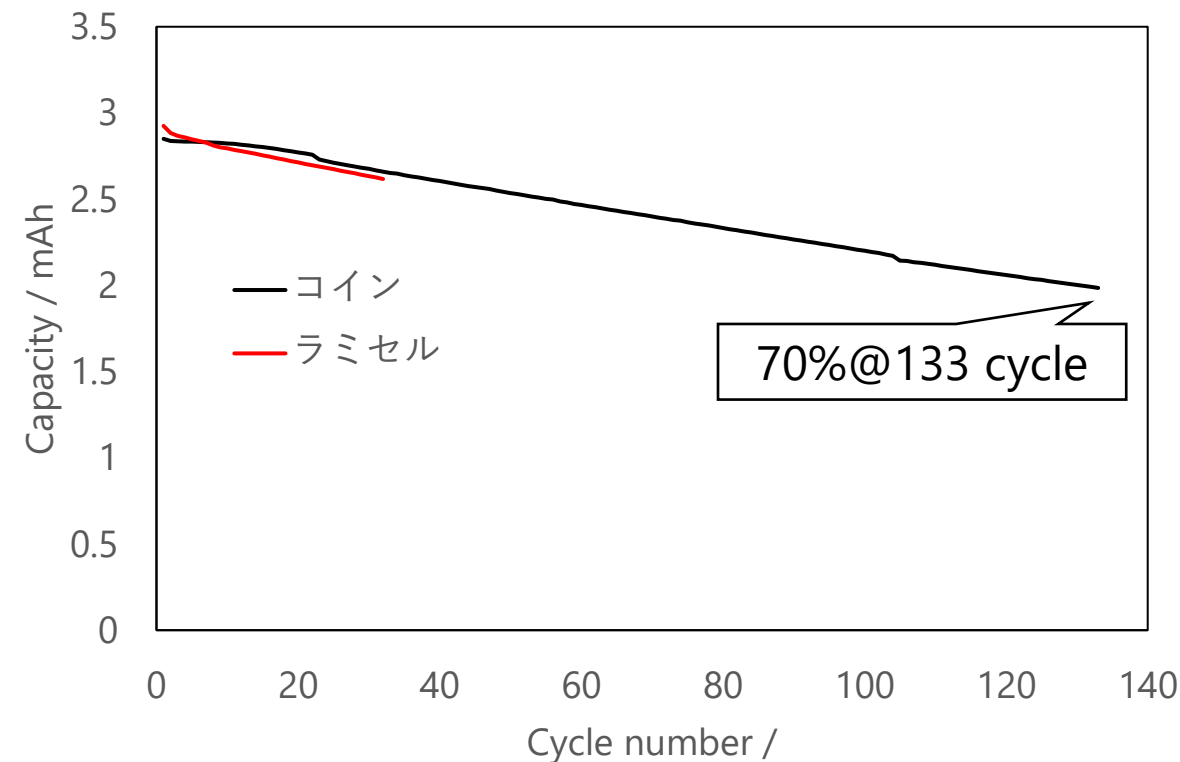
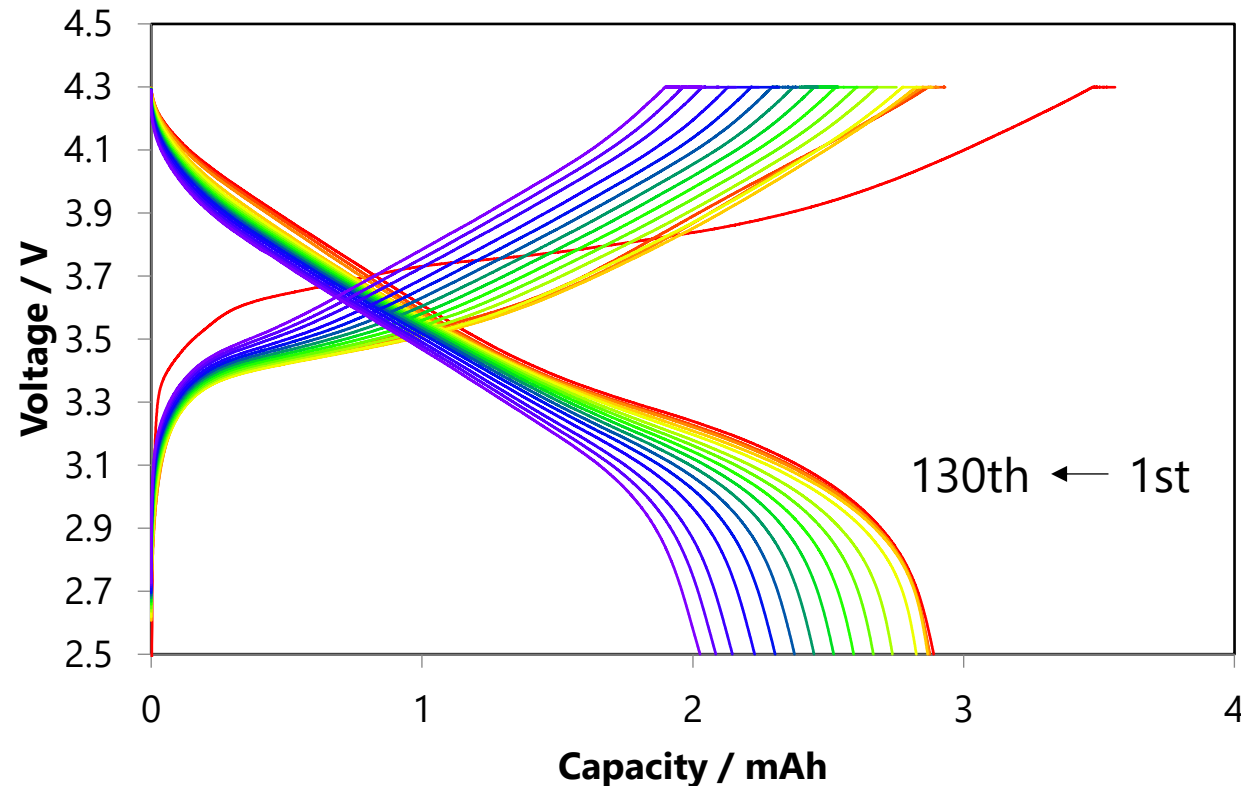


正極：NCM523 (2.5mAh)
負極：Si負極
電解液：1M LiPF₆ EC/EMC(3:7)

測定電圧：2.5-4.3V
レート：0.1C
温度：30℃
セル：ラミセル

No.	Si	MXene	PI
1	74%	5%	21%
2	78%	5%	16%
3	84%	6%	10%
4	69%	10%	20%
5	74%	KB5%*	21%

MXeneを用いたSi負極LIB試作



正極：NCM523 (2.9mAh)
負極：Si負極 (6.78mAh)
組成：Si:MXene (ジェットミル):PI=74:5:21
電解液：1M LiPF₆ EC/EMC(3:7)

測定電圧：2.5-4.3V
電流値：0.1C (0.273mA)
温度：30℃
セル：コインセル、ラミセル

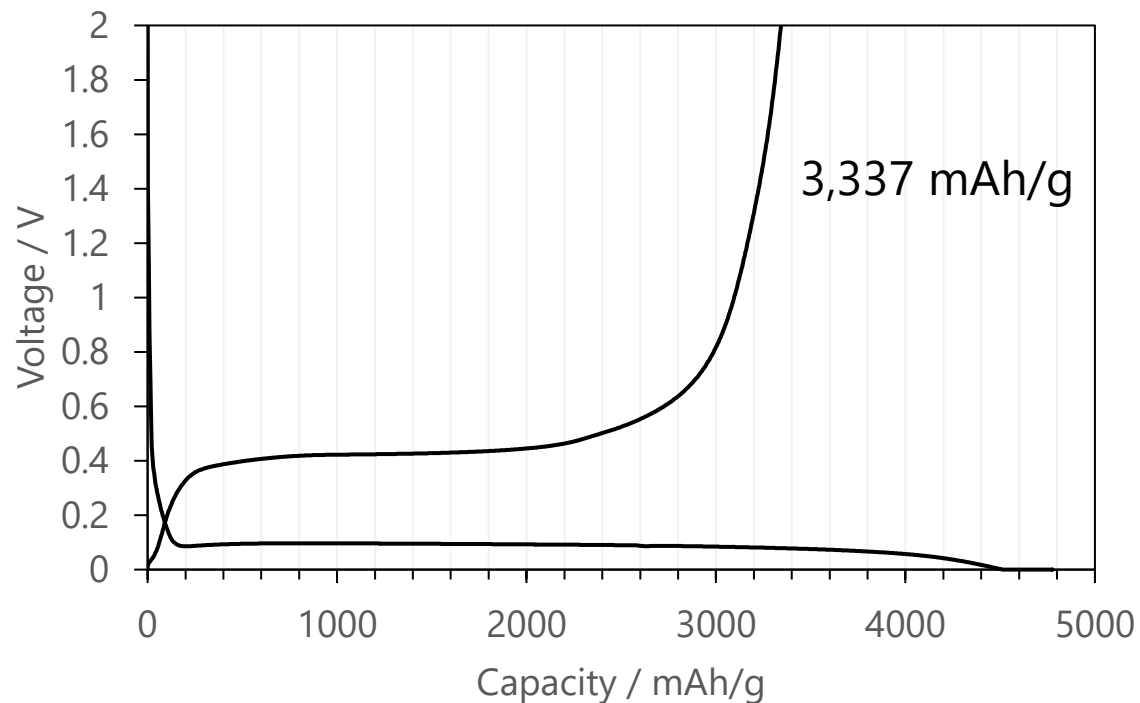
目的

- ジェットミル粉末（物理的剥離）とNMP分散液（化学的剥離）によって性能に差が出るか検証する

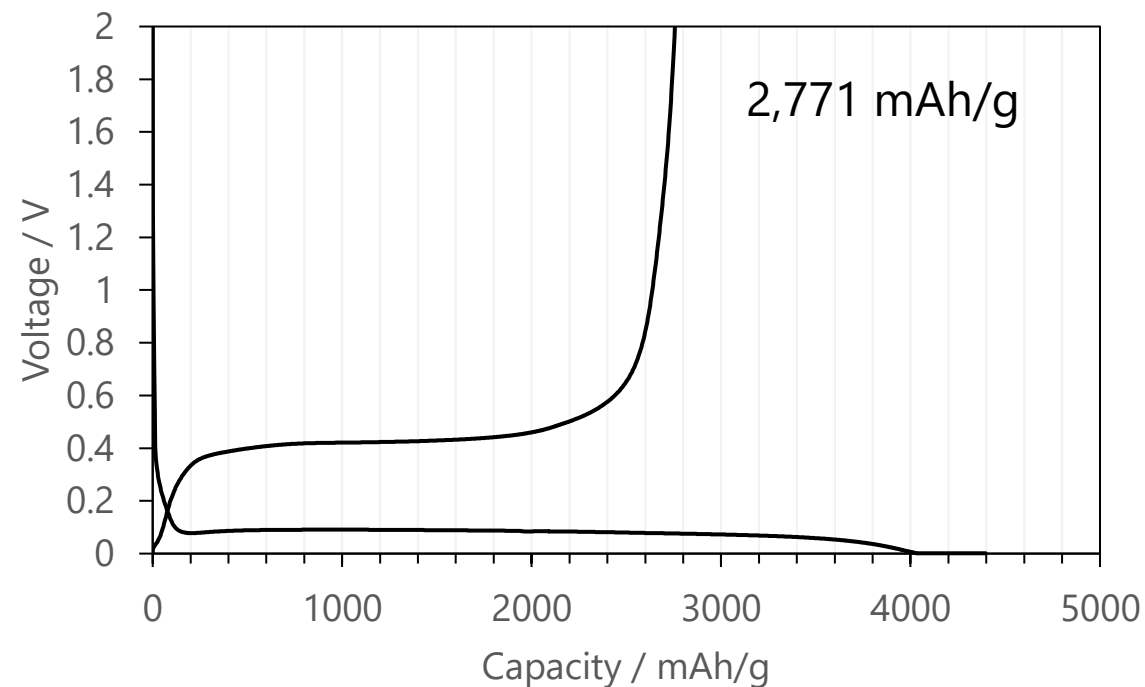
実験

- Li金属を対向電極とした電池を作製し容量を比較
- サイクル特性を比較（正極、負極の容量比を変えて実験）

NMP分散液MXene-Si負極の初回放電容量

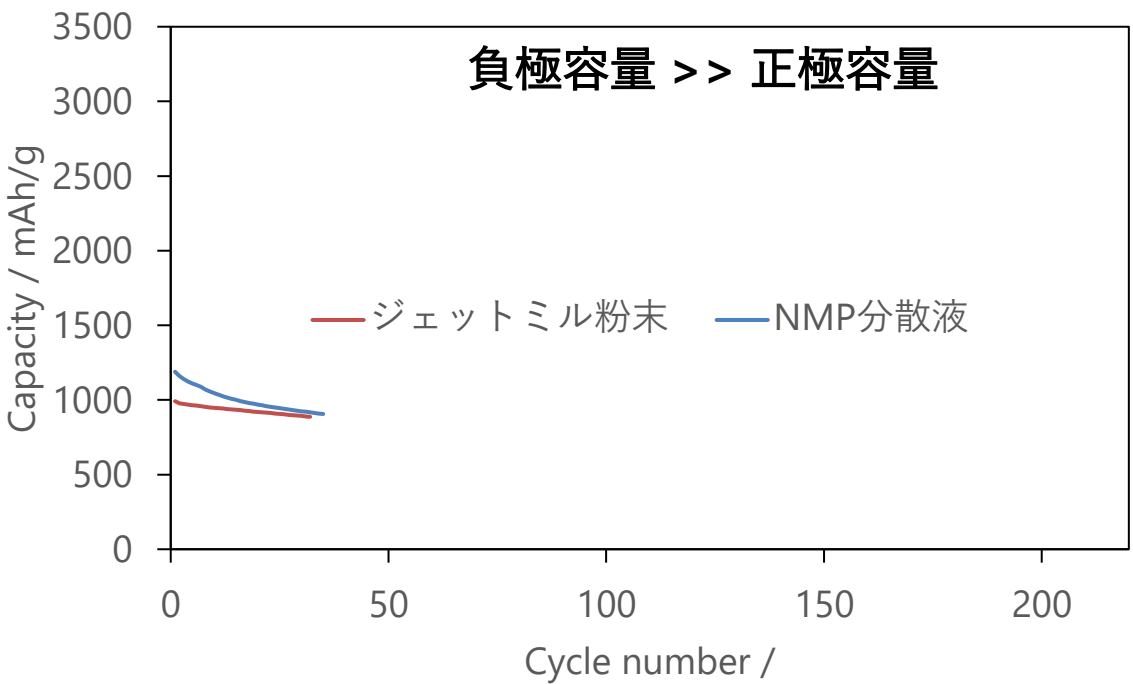
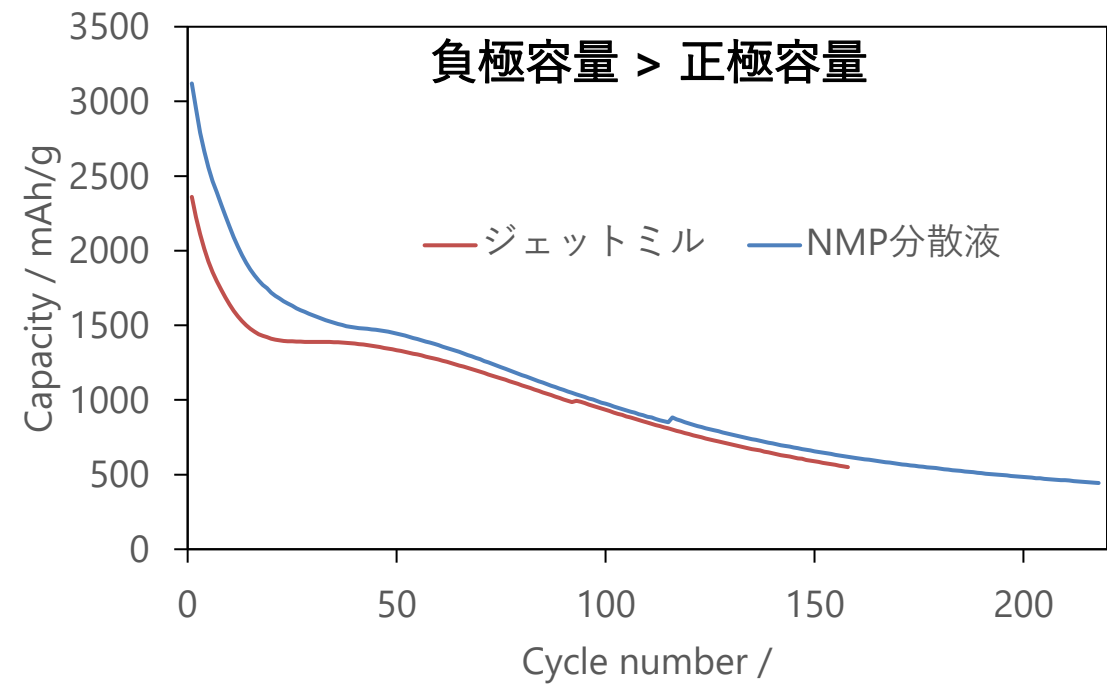


ジェットミル粉体MXene-Si負極の初回放電容量



負極：Si電極
組成：Si/MXene/PI=74:5:21
対極：100 μ m Liメタル
電解液：1M LiPF₆ EC/EMC(3:7)

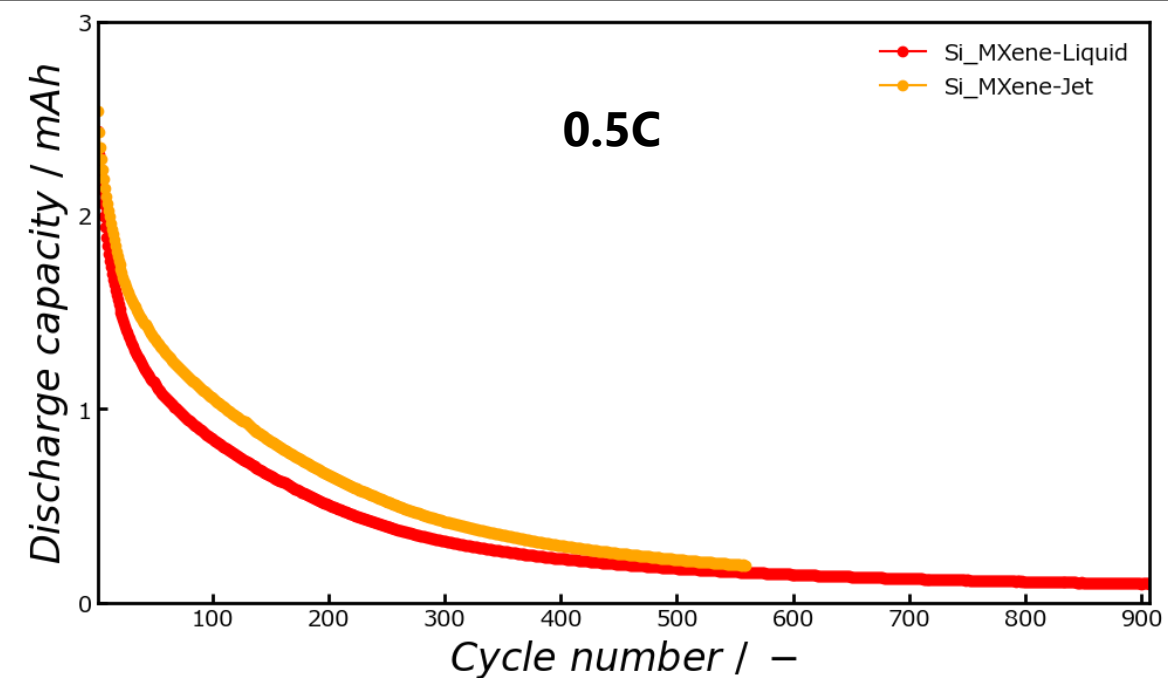
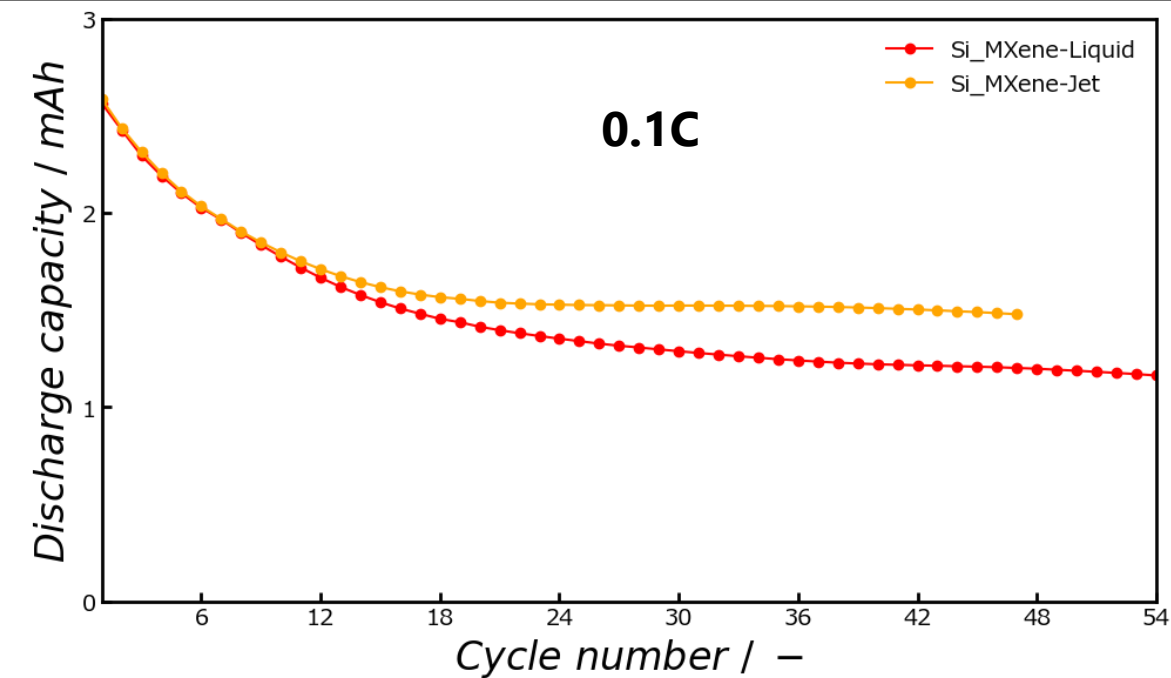
充電：CC/0.001V CV（終端0.02mA）
放電：CC（2V Cutoff）
電流値：0.2mA
コインセル



	ジェットミル	NMP分散液
正極	NCM523, 2.5 mAh	NCM523, 2.5 mAh
負極	Si/MXene/PI=74:5:21 3.0 mAh	Si/MXene/PI=74:5:21 2.75 mAh
電解液	1M LiPF ₆ EC/EMC(3:7)	1M LiPF ₆ EC/EMC(3:7)

	ジェットミル	NMP分散液
正極	NCM523, 2.9 mAh	NCM523, 2.5 mAh
負極	Si/MXene/PI=74:5:21 6.78 mAh	Si/MXene/PI=74:5:21 6.96 mAh
電解液	1M LiPF ₆ EC/EMC(3:7)	1M LiPF ₆ EC/EMC(3:7)

ラミセル；測定電圧：2.5-4.3V；電流値：0.1C（1C = 2.5mA）；温度：30℃



	ジェットミル	NMP分散液
正極	NCM523, 2.5 mAh	NCM523, 2.5 mAh
負極	Si/MXene/PI=74:5:21 3.0 mAh	Si/MXene/PI=74:5:21 2.75 mAh
電解液	1M LiPF ₆ EC/EMC(3:7)	1M LiPF ₆ EC/EMC(3:7)

ラミセル；測定電圧：2.5-4.3V；電流値：0.1C、0.5C（1C = 2.5mA）；温度：30℃

結果

- 物理的手法（ジェットミル）と化学的手法（TMAH）の2通りで剥離MXeneを作製した
- シリコンとポリイミドとMXeneを混錬、塗工成膜しSi負極を作製した
- 作製した負極の容量密度は2770~3330 mAh/gであった
- Si負極組成がSi : MXene : PI = 74 : 5 : 21のとき、良好な特性が得られた
- MXeneの物理粉碎品と化学粉碎品は同等の性能であった

今後の計画

- 異なるグレード（粒径違いやSiO等）のシリコン系活物質との複合化検討
- 他の導電材との併用の検討



日本材料技研株式会社

Japan Material Technologies Corporation