

Kesan Azanium Iodida terhadap Sifat Konduktif Elektrolit Berasaskan Polimer Campuran Poli(Etenol)-Selulosa Metil Eter

(Effect of Azanium Iodide on the Conductive Properties of Poly(Ethenol)-Methyl Ether of Cellulose Blend Based Electrolytes)

N.A. SHAMSURI¹, J.J. CHIA^{2,3}, M.H. HAMSAN⁴, M.F.Z. KADIR^{1,5} & M. F. SHUKUR^{3,6,*}

¹Department of Physics, Faculty of Science, Universiti Malaya, 50603 Kuala Lumpur, Malaysia

²Malaysia-Japan International Institute of Technology, Universiti Teknologi Malaysia, 54100 Kuala Lumpur, Malaysia

³Department of Fundamental and Applied Sciences, Universiti Teknologi PETRONAS, Seri 32610 Iskandar, Perak, Malaysia

⁴Pusat Pengajian Citra Universiti, Universiti Kebangsaan Malaysia, 43600 UKM Bangi, Selangor, Malaysia

⁵Universiti Malaya Centre for Ionic Liquids (UMCiL), Universiti Malaya, 50603 Kuala Lumpur, Malaysia

⁶Centre of Innovative Nanostructures and Nanodevices (COINN), Universiti Teknologi PETRONAS, 32610 Seri Iskandar, Perak, Malaysia

Diserahkan: 22 Julai 2024/Diterima: 28 Oktober 2024

ABSTRAK

Elektrolit polimer pepejal (EPP) telah menarik perhatian sebagai pengganti yang berpotensi disebabkan oleh kelenturan mekanikal yang ketara, kebolehterasan proses yang mudah, membolehkan pembentukan peranti penyimpanan yang selamat, ringkas dan mudah dibentuk. Dalam kajian ini, suatu sistem EPP yang terdiri daripada poli(etenol) (PE) dan selulosa metil eter (SME) telah disediakan melalui teknik pelapisan larutan. Pelbagai peratus berat (% bt.) azanium iodida (AI) telah digabungkan dengan EPP PE/SME sebagai pembekal ion untuk meningkatkan kekonduksian ion. Interaksi antara EPP PE/SME dan AI telah dianalisis melalui analisis spektroskopi inframerah transformasi Fourier (FTIR). Daripada mikroskopi imbasan elektron penyerakan medan (FESEM), didapati bahawa kandungan AI telah memberi kesan yang signifikan terhadap morfologi EPP lalu meningkatkan kekonduksian ion EPP. Pengaruh AI ke atas sifat elektrik EPP telah dikaji lebih lanjut melalui spektroskopi impedans elektrokimia (EIS). Penggabungan 40 %bt. AI telah mengoptimumkan kekonduksian suhu bilik elektrolit kepada $(2.34 \pm 0.48) \times 10^{-5} \text{ S cm}^{-1}$.

Kata kunci: Azanium iodida; elektrolit campuran polimer; kekonduksian; poli(etenol); selulosa metil eter

ABSTRACT

Solid polymer electrolytes (SPEs) have garnered interest owing to their notable mechanical flexibility and straightforward processability, enabling the creating of secure, compact and pliable storage devices. In this study, an SPE system consisting of poly(ethenol) (PE) and methyl ether of cellulose (MEC) was prepared via solution casting technique. Various weight percentage (wt.%) of azanium iodide (AI) were incorporated into the PE/MEC SPEs. The interaction between the PE/MEC SPEs and AI were analyzed by Fourier-transform infrared spectroscopy (FTIR) analysis. From field emission scanning electron microscopy (FESEM), AI contents had significantly affected the morphology of SPEs which improved the ion conductivity. The influence of AI on the electrical properties of SPEs were further studied by electrochemical impedance spectroscopy (EIS). Incorporation of 40 wt.% of AI has optimized the room temperature conductivity of the electrolyte to $(2.34 \pm 0.48) \times 10^{-5} \text{ S cm}^{-1}$.

Keywords: Azanium iodide; conductivity; methyl ether of cellulose; polymer blend electrolyte; poly(ethenol)

PENGENALAN

Elektrolit polimer pepejal (EPP) adalah bahan yang berpotensi memenuhi permintaan peranti tenaga generasi baharu yang semakin meningkat. Seperti yang dilaporkan oleh Chen et al. (2021), aplikasi EPP menambah baik ciri keselamatan dan keflexibelan kepada peranti tenaga berbanding peranti dengan elektrolit cecair. Pelbagai

bahan telah digunakan dalam pembangunan EPP, namun sebahagian besar EPP dihasilkan daripada bahan bersumberkan petroleum serta tidak boleh diperbaharui dan tidak terbiodegradasi. Perkara ini menimbulkan isu negatif yang berkaitan dengan alam sekitar (Abdel Naby & Al-Ghamdi 2014; Deng et al. 2022; Han & Ryu 2022; Mandal et al. 2016; Mei et al. 2020;

Muhammad & Winie 2020). Isu ini dapat diatasi dengan menggunakan polimer semula jadi seperti selulosa metil eter (SME) sebagai bahan elektrolit dalam peranti tenaga. SME dikenali sebagai polimer yang dapat menghasilkan filem elektrolit pepejal yang stabil secara terma, kimia dan mekanikal (Abdullah et al. 2020). SME adalah sebatian kimia yang boleh diperbaharui serta terbiodegradasi dan terdiri daripada rantaian linear unit glukosidik (1-4) dengan pengganti metil, hidroksipropil atau karboksil. Kumpulan berfungsi ini membantu pengaliran ion kerana ia berpolar dan serta terlibat dalam pembentukan ikatan kimia dengan ion tersebut (Nofal et al. 2021).

Cabaran utama dalam membangunkan sistem elektrolit polimer adalah untuk menghasilkan kekonduksian yang tinggi pada suhu bilik. Gabungan dua polimer untuk bertindak sebagai polimer perumah adalah teknik yang berkesan untuk mengoptimalkan kekonduksian elektrolit. Sebagai contoh, kekonduksian kanji-kitosan yang didop dengan ammonium bromida (NH_4Br) adalah ($\sim 10^{-5} \text{ S cm}^{-1}$), lebih tinggi berbanding dengan kekonduksian kitosan- NH_4Br ($\sim 10^{-7} \text{ S cm}^{-1}$) (Shukur, Ithnin & Kadir 2014; Shukur et al. 2013). Kekonduksian sistem campuran polimer yang lebih tinggi adalah kerana di dalam campuran polimer, lebih banyak kumpulan berfungsi tersedia untuk membentuk interaksi dengan kation lalu dapat meningkatkan ketumpatan bilangan ion (Jeedi, Narsaiah & Chary 2020). Dalam kajian ini, poli(etenol) (PE) digunakan sebagai salah satu komponen dalam campuran SME/PE. Seperti yang dilaporkan oleh Shamsuri et al. (2020), campuran PE-SME mempunyai keserasian yang baik berdasarkan kepada keputusan analisis kalorimetri imbasan pembezaan (DSC) dan termogram campuran PE-SME menunjukkan hanya ada satu suhu peralihan kaca (T_g). Pembentukan ikatan hidrogen antara PE dan SME telah mengurangkan darjah penghabluran polimer tersebut dan keadannya ini sangat sesuai untuk konduksi ion (Shamsuri et al. 2021).

Pembawa cas terhasil di dalam elektrolit apabila garam dilarutkan dalam perumah polimer. Garam litium digunakan secara meluas sebagai penghasil ion untuk elektrolit polimer disebabkan oleh saiz ion litium yang kecil dan memberi ketumpatan gravimetri yang tinggi serta keupayaan tettingkap yang besar (Zhou et al. 2019). Walau bagaimanapun, isu keselamatan timbul membabitkan bateri ion litium akibat daripada pengecasan berlebihan, lebih nyahcas, terlalu panas, proses pecutan dan degradasi, litar pintas dan pelarian haba (Hu et al. 2020). Bateri proton dilihat sebagai satu alternatif yang baik kepada bateri ion litium kerana potensinya untuk penyimpanan tenaga dengan keselamatan yang tinggi. Polimer yang didopkan dengan garam ammonium telah dikaji sebagai bahan elektrolit yang berpotensi dalam sistem bateri proton (Hemalatha et al. 2019). Azanium iodida (AI) mempunyai tenaga kekisi $605.3 \text{ kJ mol}^{-1}$, antara yang terendah dalam kalangan garam ammonium. Kekonduksian ion boleh

dioptimalkan jika polimer didop dengan garam bertenaga kekisi rendah. Ini kerana lebih mudah untuk memecahkan ikatan ion untuk menghasilkan ion di dalam elektrolit (Mohammed et al. 2021). Dalam kajian ini, kesan garam AI terhadap sifat konduktif elektrolit polimer berasaskan campuran PE/SME dianalisis.

BAHAN DAN KAEDAH

BAHAN-BAHAN

Poli (etenol) (PE) dengan 9,000-10,000 g berat molekul, selulosa metil eter (SME) dengan kelikatan 4,000 cP dan azanium iodida (AI) diperolehi daripada Sigma-Aldrich. Ketiga-tiga bahan ini digunakan tanpa melalui sebarang proses penulenan.

PENYEDIAAN ELEKTROLIT POLIMER

Larutan elektrolit disediakan dengan melarutkan serbuk SME di dalam air suling pada suhu bilik selama beberapa jam. Setelah larutan SME melarut, serbuk PE ditambah ke dalam larutan tersebut dengan nisbah berat PE kepada SME adalah 1:1. Campuran PE/SME tersebut dikacau pada suhu bilik sehingga melarut. Garam AI ditambah kepada larutan PE/SME pada peratus berat yang berbeza dan dikacau sehingga larutan itu menjadi homogen. Kesemua larutan dituang ke dalam piring Petri plastik dan dibiarkan meruap pada suhu bilik sehingga membentuk filem. Filem elektrolit polimer yang terbentuk disimpan di dalam desikator untuk proses pengeringan selanjutnya.

PENCIRIAN

Kumpulan berfungsi dan interaksi kimia antara PE, SME dan garam AI diteliti dengan menggunakan spektrometer inframerah transformasi Fourier (FTIR) Perkin Elmer. Spektroskopi FTIR direkod dengan mod transmisi nombor gelombang 4000 hingga 650 cm^{-1} dengan resolusi imbasan 4 cm^{-1} . Mikroskop imbasan elektron pancaran medan (FESEM) Zeiss Supra PV 55 digunakan untuk menganalisis morfologi permukaan elektrolit pada $2000\times$ pembesaran. Pengukuran impedans dijalankan dengan menggunakan Multi AutoLab Metrohm dalam julat frekuensi 50 Hz hingga 1 MHz pada suhu bilik. Polimer elektrolit diapit antara dua elektrod keluli tahan karat. Daripada plot Nyquist yang diperolehi daripada pengukuran impedans, rintangan pukal (R_{bulk}) ditentukan dan digunakan untuk analisis kekonduksian (σ) elektrolit menggunakan persamaan berikut:

$$\sigma = \frac{t}{R_{bulk} A} \quad (1)$$

dengan t adalah ketebalan elektrolit dan A adalah luas permukaan elektrolit yang bersentuhan dengan elektrod.

KEPUTUSAN DAN PERBINCANGAN

ANALISIS FTIR

Spektrum FTIR bagi elektrolit polimer campuran PE/SME ditunjukkan dalam Rajah 1 untuk menjelaskan interaksi antara polimer matriks. Spektrum FTIR bagi campuran polimer PE/SME tanpa kandungan garam menunjukkan puncak ciri pada 3321, 2939, 1732, 1245 dan 1049 cm^{-1} , masing-masing untuk kumpulan hidroksil (OH), regangan C-H, mod getaran C=O, regangan C-O-C dan regangan C-O (Patla, Mukhopadhyay & Ray 2018). Interaksi antara polimer perumah dan garam boleh dibuktikan berdasarkan anjakan puncak kumpulan berfungsi. Dengan penambahan 10 %bt. garam, puncak OH beranjak kepada nombor gelombang yang lebih rendah, 3318 cm^{-1} . Apabila kandungan AI meningkat kepada 20, 30 dan 40 %bt., puncak OH masing-masing beranjak kepada 3317, 3315 dan 3164 cm^{-1} . Puncak OH pada spektrum sampel dengan 50 %bt. berada pada posisi yang paling rendah, iaitu 3083 cm^{-1} . Anjakan puncak ini terjadi apabila berlaku interaksi secara ikatan datif kovalen antara kation garam dan atom oksigen kumpulan OH (Nadirah et al. 2020). Apabila kandungan garam meningkat, lebih banyak kation yang berinteraksi dengan kumpulan OH, lalu menghasilkan anjakan puncak kepada nombor gelombang yang rendah. Bukti interaksi yang lain juga dapat dilihat pada anjakan puncak getaran tidak simetri NH_4 dan puncak beranjak daripada 1370 kepada 1428 cm^{-1} dengan peningkatan 30 %bt. (Ahmed & Abdullah 2020). Jadual 1 menyenaraikan spektrum FTIR bagi PE/SME/AI. Daripada keputusan FTIR ini, dapat disimpulkan bahawa polimer perumah telah berinteraksi dengan garam AI.

ANALISIS FESEM

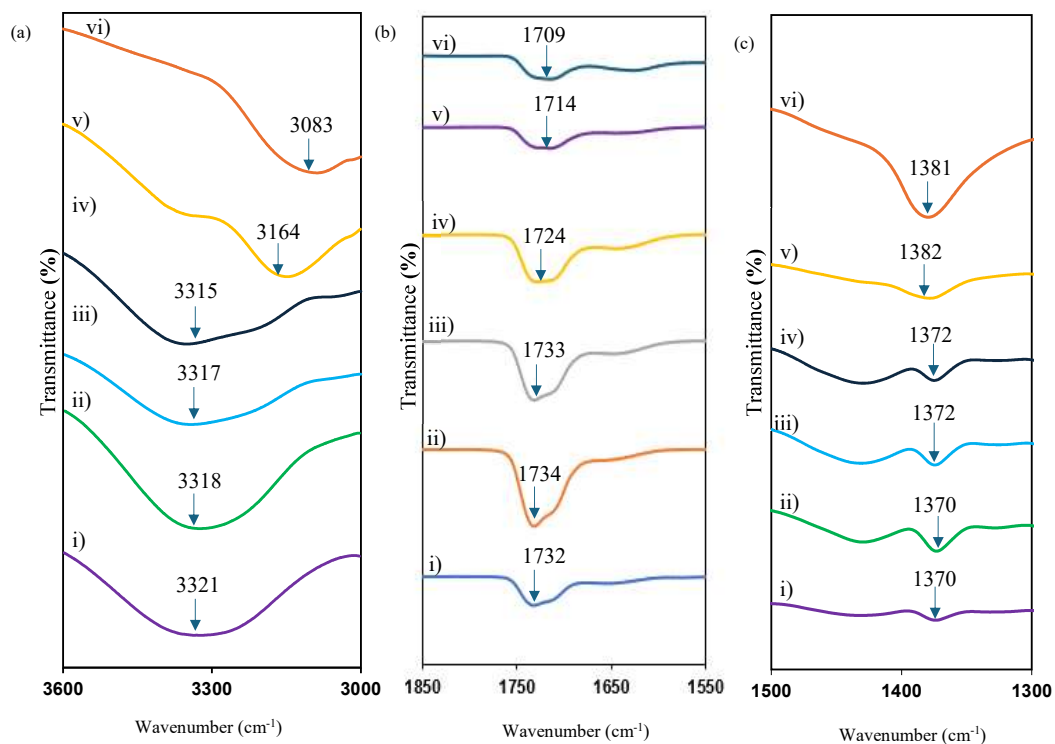
Mikrograf FESEM bagi elektrolit polimer PE/SME didop dengan AI ditunjukkan dalam Rajah 2. Morfologi permukaan elektrolit polimer dengan 10 dan 20 %bt. AI menunjukkan permukaan yang rata tanpa fasa pemisahan antara polimer perumah dengan kristal garam. Ini membuktikan bahawa sampel tersebut adalah homogen (Arya, Sadiq & Sharma 2019). Penambahan 30 %bt. AI kepada elektrolit PE/SME menukar permukaan menjadi lebih kasar. Morfologi permukaan elektrolit polimer dengan 40 %bt. AI menunjukkan permukaan kasar berserta pembentukan liang mikro. Permukaan polimer perumah yang berliang mikro bermakna permukaan elektrolit ini mempunyai luas permukaan yang tinggi. Luas permukaan yang tinggi menjadi penunjuk bahawa lebih banyak laluan untuk pengangkutan ion dengan tenaga pengaktifan yang rendah yang terbentuk, seterusnya meningkatkan kekonduksian ion (Brza et al. 2021). Walau bagaimanapun, kesan penghabluran garam AI dapat diperhatikan apabila kandungan garam meningkat kepada 50 %bt. Apabila kandungan garam terlalu banyak di dalam polimer perumah, jarak antara ion menjadi terlalu

kecil lalu menyebabkan kesesakan ion. Fenomena ini adalah punca kepada proses penghabluran semula garam, lalu mengurangkan ketumpatan bilangan ion seterusnya mengurangkan kekonduksian ion (Hamsan et al. 2019).

ANALISIS KEKONDUKSIAN

Plot Cole-Cole untuk sampel elektrolit PE/SME didop dengan AI pada suhu bilik ditunjukkan dalam Rajah 3. Plot Cole-Cole untuk sampel dengan 10 %bt. terdiri daripada satu lengkung separuh bulatan yang tidak lengkap. Apabila kandungan garam meningkat kepada 20 - 50 %bt., plot Cole-Cole terdiri daripada lengkok separuh bulatan pada kawasan frekuensi tinggi dan pancang condong pada kawasan frekuensi rendah. Bahagian separuh bulatan berkaitan dengan pengaliran ion dalam elektrolit pukal (Jenove et al. 2023). Kekonduksian pukal terhasil oleh gabungan selari rintangan pukal dan kapasitans pukal elektrolit polimer (Rag et al. 2022). Bahagian pancang condong adalah kesan daripada fenomena polarisasi elektrod (Saeed & Abdullah 2020). Kecondongan pancang adalah disebabkan oleh ketidakrataan permukaan elektrolit yang bersentuhan dengan elektrod (Mallikarjun et al. 2023). Untuk sampel dengan 10 %bt., nilai R_b ditentukan daripada pintasan lengkok separuh bulatan dengan paksi x pada kawasan frekuensi rendah. Untuk sampel dengan 20 %bt., nilai R_b ditentukan pintasan separuh bulatan dengan pancang condong. Elektrolit yang mengandungi 40 %bt. AI mempunyai nilai R_b terendah iaitu 766 ohm. Ini mungkin disebabkan oleh peningkatan ketumpatan bilangan ion apabila kandungan garam meningkat kepada 40 %bt. (Ahmed et al. 2019). Interaksi antara kation garam dan kumpulan berfungsi polimer menyumbang kepada penurunan sifat hablur bagi polimer perumah dan menjadi lebih amorfus. Rantai polimer dalam keadaan fasa amorfus adalah lebih fleksibel dan ia meningkatkan pergerakan bersegmen bagi polimer untuk pergerakan ion. Dalam keadaan kefleksibelan yang tinggi, nilai rintangan menurun seterusnya memudahkan pergerakan ion (Ramli et al. 2019). Daripada nilai R_b ini, kekonduksian elektrolit PE/SME dihitung menggunakan Persamaan (1).

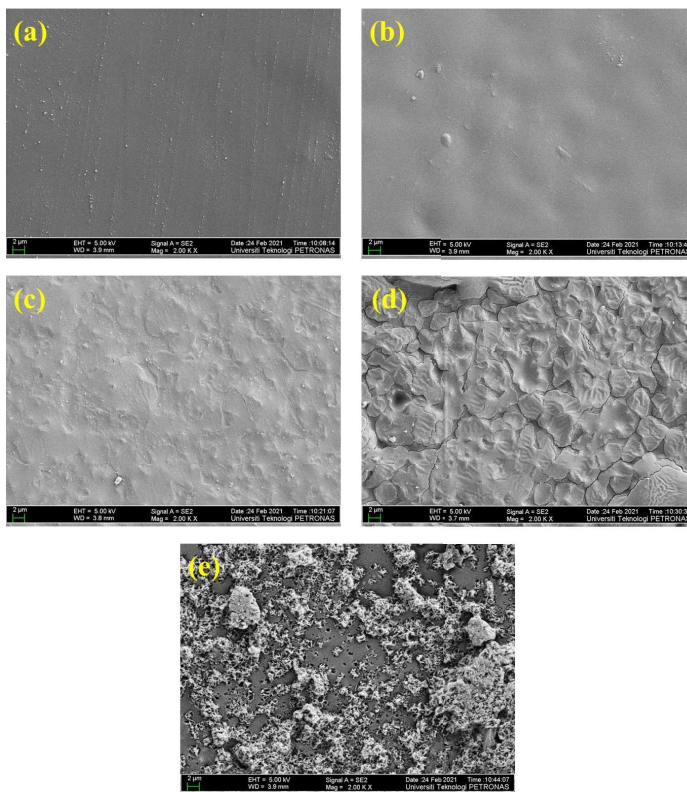
Kesan kandungan garam kepada kekonduksian elektrolit pada suhu bilik ditunjukkan dalam Rajah 4(a). Kekonduksian elektrolit polimer PE/SME tanpa garam AI adalah $(9.02 \pm 3.32) \times 10^{-11} \text{ S cm}^{-1}$, nilai yang secara relatifnya kecil kerana tiada ion di dalam matriks polimer. Apabila kandungan 10 %bt. AI ditambah kepada polimer perumah, kekonduksian ion meningkat kepada $(7.05 \pm 1.55) \times 10^{-10} \text{ S cm}^{-1}$. Kenaikan kandungan garam kepada 40 %bt. meningkatkan kekonduksian ion kepada $(2.34 \pm 0.54) \times 10^{-5} \text{ S cm}^{-1}$. Berdasarkan perbincangan analisis FESEM, permukaan elektrolit dengan 40 %bt. AI mengandungi liang mikro yang menyediakan laluan untuk pengangkutan ion. Pemerhatian yang hampir sama turut dilaporkan dalam Abdullah et al. (2021). Dapat disimpulkan bahawa pembentukan liang memudahkan mobiliti ion seterusnya membantu mengoptimumkan



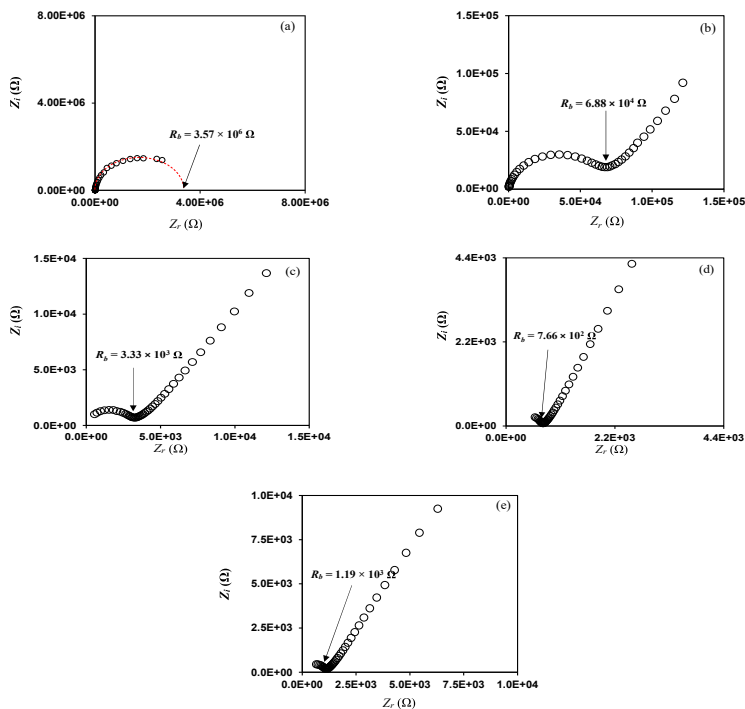
RAJAH 1. Spektra FTIR (a) O-H, (b) C=O getaran dan(c) N-H getaran untuk i) PE/SME, ii) 10 bt, iii) 20 bt, iv) 30 bt, v) 40 bt dan vi) 50 bt AI

JADUAL 1. Spektra FTIR untuk PE/SME/AI polimer elektrolit

Bilangan gelombang (cm ⁻¹)						Tugasan	Rujukan
PE/SME	PE/SME/10 % bt.	PE/SME/20 % bt.	PE/SME/30 % bt.	PE/SME/40 % bt.	PE/SME/50 % bt.		
3321	3318	3317	3315	3164	3083	O-H	Patla, Mukhopadhyay & Ray 2018
2939	2920	2912	2912	2942	2983	C-H regangan	Ahmed & Abdullah 2020
1732	1734	1733	1724	1714	1709	C=O getaran	Ahmed & Abdullah 2020
-	1370	1431	1428	1382	1381	N-H getaran	Ahmed & Abdullah 2020; Patla, Mukhopadhyay & Ray 2018
1245	1241	1251	1251	1251	1261	C-O-C regangan	Patla, Mukhopadhyay & Ray 2018
1049	1025	1028	1026	1026	1047	C-O regangan	Ahmed & Abdullah 2020



RAJAH 2. Morfologi permukaan bagi sampel PE/SME dengan (a) 10 bt, (b) 20 bt, (c) 30 bt, (d) 40 bt dan (e) 50 bt Al pada 2000× pembesaran



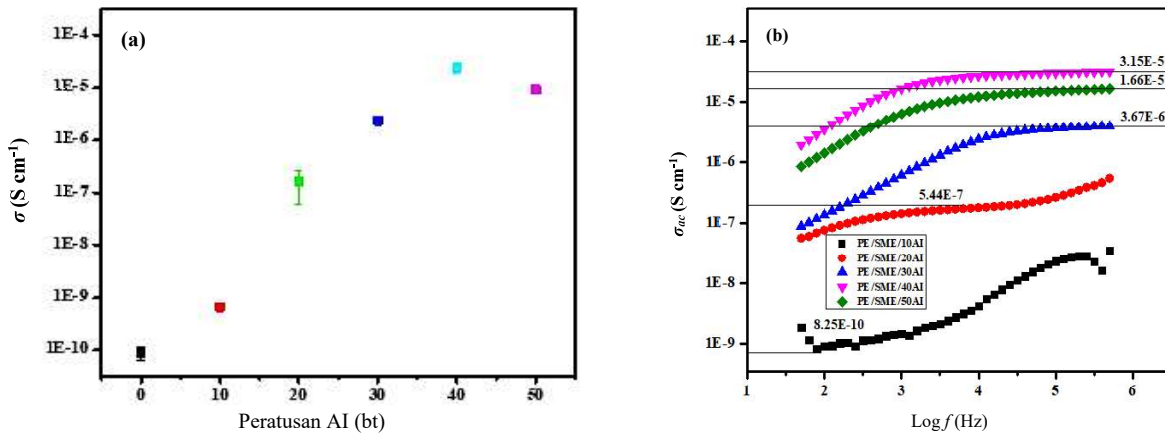
RAJAH 3. Plot Cole-cole bagi sampel PE/SME dengan (a) 10 bt, (b) 20 bt, (c) 30 bt, (d) 40 bt dan (e) 50 bt Al

kekonduksian ion. Penambahan 50 %bt. AI menurunkan kekonduksian kepada $(9.21 \pm 0.87) \times 10^{-6} \text{ S cm}^{-1}$. Kandungan garam yang berlebihan menyebabkan ruang untuk pengaliran ion menjadi terhad lalu meningkatkan kemungkinan pembentukan pasangan ion neutral serta penghabluran semula garam. Inferens ini terbukti menerusi analisis FESEM. Fenomena pembentukan pasangan ion neutral dan penghabluran semula garam mengurangkan ketumpatan bilangan ion seterusnya menurunkan kekonduksian ion (Chatterjee, Kulshrestha & Gupta 2016). Kekonduksian elektrik arus ulang-alik (ac) σ_{ac} , merujuk kepada kekonduksian yang bergantung kepada frekuensi. σ_{ac} dihitung menggunakan persamaan berikut:

$$\sigma_{ac} = \frac{t}{A} \left[\frac{Z_r}{Z_r^2 + Z_i^2} \right] \quad (2)$$

dengan Z_r adalah komponen impedans nyata dan Z_i adalah komponen maya impedans. Variasi σ_{ac} dengan frekuensi bagi setiap elektrolit diplot dalam Rajah 4(b). Untuk sampel dengan 30, 40 dan 50 %bt. AI, didapati bahawa plot σ_{ac} lawan frekuensi terbahagi kepada dua kawasan utama iaitu kawasan frekuensi rendah dan kawasan frekuensi tinggi. Pada kawasan frekuensi rendah, σ_{ac} meningkat dengan peningkatan frekuensi dan ini disebabkan oleh fenomena

polarisasi elektrod (Parida et al. 2013). Pada kawasan frekuensi tinggi, didapati bahawa σ_{ac} tidak berubah dengan kenaikan frekuensi. Kemunculan kawasan mendatar (plateau) adalah disebabkan oleh pergerakan lompatan ion dari satu tapak penempatan ke tapak penempatan yang lain lalu menyumbang kepada kekonduksian arus terus (dc), σ_{dc} . Ketidakupayaan ion untuk menghasilkan lompatan berturut-turut dalam skala masa kira-kira separuh kitaran juga menyumbang kepada kemunculan kawasan mendatar (Chatterjee, Kulshrestha & Gupta 2016). Untuk sampel dengan 20 %bt. AI, didapati bahawa plot σ_{ac} lawan frekuensi terbahagi kepada tiga kawasan utama iaitu kawasan frekuensi rendah, kawasan frekuensi medium dan kawasan frekuensi tinggi. Dapat diperhatikan bahawa kawasan mendatar muncul di kawasan frekuensi medium. Manakala bagi sampel dengan 10 %bt. AI, bahawa kawasan mendatar muncul di kawasan frekuensi rendah. Dapat disimpulkan bahawa apabila kandungan garam meningkat, frekuensi lompatan juga meningkat. Apabila ion melompat pada frekuensi yang tinggi, masa santai akan menjadi rendah (Gohel & Kanchan 2018). Perkara ini akan dibincangkan dengan lebih teliti di bahagian Analisis Dielektrik. Jadual 2 menyenaraikan σ_{dc} elektrolit PE/SME/AI. Kekonduksian σ_{dc} meningkat apabila jumlah kandungan garam AI meningkat kepada 40 %bt. σ_{dc} yang diperoleh daripada plot σ_{ac} hampir sama dengan keputusan



RAJAH 4. Kesan kandungan garam pada (a) kekonduksian elektrolit pada suhu bilik dan (b) kekonduksian elektrik arus ulang-alik

JADUAL 2. Kekonduksian arus terus (σ_{dc}) untuk PE/SME/AI polimer elektrolit

Sampel	σ_{dc} (S cm ⁻¹)
PE/SME/10 % bt.	8.25×10^{-10}
PE/SME/20 % bt.	5.44×10^{-7}
PE/SME/30 % bt.	3.67×10^{-6}
PE/SME/40 % bt.	3.15×10^{-5}
PE/SME/50 % bt.	1.66×10^{-5}

yang diperoleh menggunakan rintangan pukal. Peningkatan σ_{dc} apabila jumlah kandungan garam AI meningkat kepada 40 %bt. dapat dikaitkan dengan peningkatan ketumpatan bilangan ion (Abdalrahman, Aziz & Karim 2022). Apabila perumah polimer didop dengan garam, dua fenomena berlaku iaitu pemisahan ion dan penggabungan semula ion. Daripada kepekatan 10 hingga 40 %bt., fenomena pemisahan ion lebih dominan yang membawa kepada peningkatan ketumpatan bilangan ion lalu meningkatkan kekonduksian (Shamsuri et al. 2021). Apabila 50 %bt. AI ditambah kepada campuran PE-SME, jarak antara kation dan anion menjadi sangat kecil, lalu meningkatkan kemungkinan penggabungan semula ion yang menjadi lebih dominan. Ini menyebabkan penurunan kekonduksian.

ANALISIS DIELEKTRIK

Pemalar dielektrik (ϵ_r) dan kehilangan dielektrik (ϵ_i) masing-masing dihitung menggunakan persamaan berikut:

$$\epsilon_r = \frac{Z_i}{\omega C_0 (Z_r^2 + Z_i^2)} \quad (3)$$

$$\epsilon_i = \frac{Z_r}{\omega C_0 (Z_r^2 + Z_i^2)} \quad (4)$$

dengan C_0 adalah kapasitans vakum dan ω adalah frekuensi sudut. Kebergantungan pemalar dielektrik (ϵ_r) dan kehilangan dielektrik (ϵ_i) pada frekuensi untuk semua elektrolit polimer PE/SME/AI pada suhu bilik ditunjukkan dalam Rajah 5. Trend yang sama diperhatikan untuk semua elektrolit dengan ϵ_r dan ϵ_i menurun secara tidak linear dengan peningkatan frekuensi. Pada julat frekuensi rendah, ion terkumpul pada antara muka antara elektrod dan elektrolit menyebabkan fenomena polarisasi elektrod lalu menghasilkan pemalar dielektrik yang tinggi (Liu et al. 2020). Apabila frekuensi meningkat, pergerakan ulang-alik ion menjadi lambat kerana tidak sejajar dengan

medan elektrik yang digunakan. Ini menyebabkan majoriti ion terkumpul dalam elektrolit pukal lalu menurunkan ϵ_r dan ϵ_i . Daripada Rajah 5, elektrolit dengan 40 %bt. AI mempunyai nilai ϵ_r dan ϵ_i tertinggi pada semua nilai frekuensi. Keputusan spektrum dielektrik ini menyokong keputusan kekonduksian ion dan mengesahkan bahawa kekonduksian ion dipengaruhi oleh ketumpatan bilangan ion. Apabila kandungan garam dinaikkan kepada 50 % bt., pembentukan pasangan ion neutral berlaku menyebabkan jumlah ion berkurang yang membawa kepada penurunan pemalar dielektrik (Fuzlin et al. 2019).

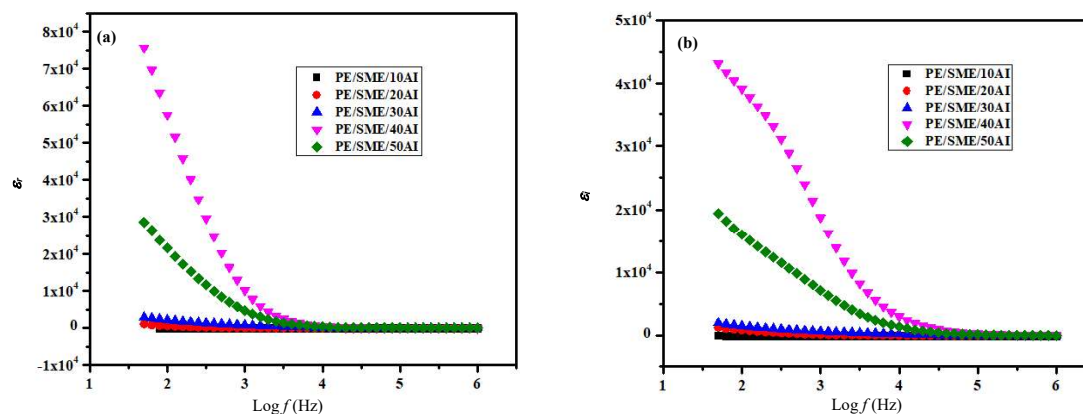
Analisis plot kehilangan tangen ($\tan \delta$) melawan frekuensi member maklumat tentang fenomena santonan dielektrik. $\tan \delta$ dihitung menggunakan persamaan berikut:

$$\tan \delta = \frac{\epsilon_r}{\epsilon_i} \quad (5)$$

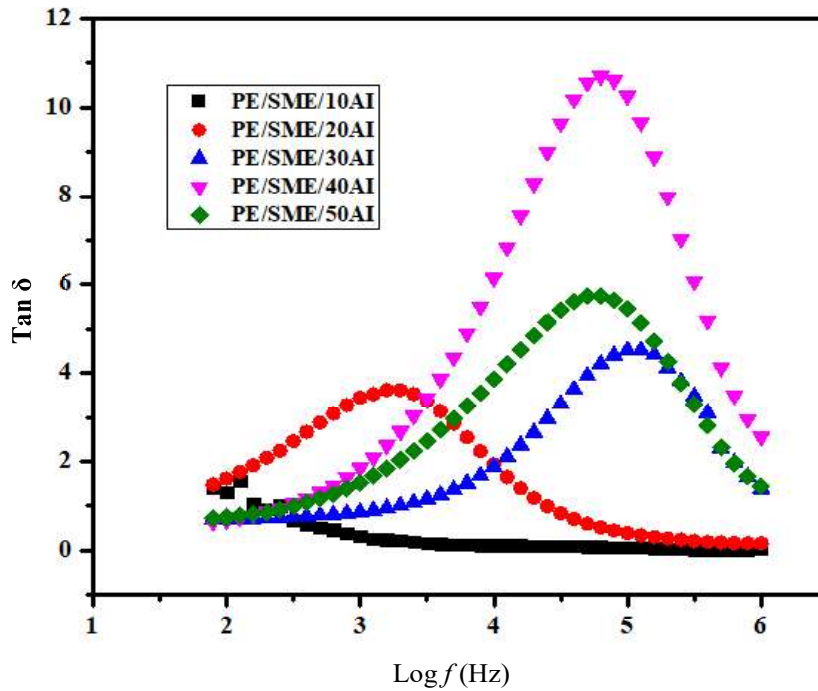
Graf $\tan \delta$ melawan frekuensi ditunjukkan dalam Rajah 6. Puncak maksimum $\tan \delta$ ($\tan \delta_{\max}$) terletak pada frekuensi yang lebih tinggi untuk elektrolit polimer berkekonduksian lebih tinggi. Masa santonan (t_r) untuk setiap elektrolit diperoleh daripada persamaan:

$$t_r = \frac{1}{\omega_{\text{peak}}} \quad (6)$$

dengan ω_{peak} adalah frekuensi sudut bagi $\tan \delta_{\max}$. Masa santonan adalah skala masa untuk santonan pembawa cas dalam elektrolit polimer. Dalam erti kata lain, masa santonan yang lebih lama menunjukkan bahawa lebih banyak usaha diperlukan daripada pembawa cas untuk menuruti perubahan arah medan elektrik luaran (Pritam, Arya & Sharma 2019; Sundaramahalingam et al. 2019). Jadual 3 menyenaraikan t_r untuk elektrolit polimer PE/SME/AI. Didapati elektrolit dengan kekonduksian yang lebih tinggi mempunyai t_r yang lebih rendah. Untuk sampel



RAJAH 5. Kepelbagaian (a) pemalar dielektrik dan (b) kehilangan dielektrik pada pelbagai frekuensi



RAJAH 6. Analisis plot kehilangan tangen ($\tan \delta$) melawan frekuensi

JADUAL 3. Masa santaian untuk PE/SME/AI polimer elektrolit

Sampel	Masa santaian (s)
PE/SME/10 % bt.	–
PE/SME/20 % bt.	1.01×10^{-4}
PE/SME/30 % bt.	7.98×10^{-6}
PE/SME/40 % bt.	2.52×10^{-6}
PE/SME/50 % bt.	2.52×10^{-6}

dengan 10 %bt. AI, nilai frekuensi sudut bagi $\tan \delta_{max}$ tidak diperoleh kerana puncak maksimum terletak di luar julat ukuran. Daripada Jadual 3, t_r yang terendah adalah 1.33×10^{-5} s. bagi sampel dengan 40 %bt. AI.

KESIMPULAN

Sistem polimer elektrolit berunsurkan campuran PE/SME digabungkan dengan AI berjaya dihasilkan menggunakan teknik pelapisan larutan. Kompleksan oleh komponen elektrolit dan garam telah dibuktikan oleh teknik FTIR. FESEM analisis menunjukkan peningkatan kandungan AI menghasilkan pembentukan liang dan morfologi permukaan kekasaran yang memberi lebih laluan kepada pengakutan ion. Campuran PE/SME dengan 40 %bt. kandungan garam mencapai tahap optimum kekonduksi $(2.34 \pm 0.48) \times 10^{-5}$ S cm^{-1} pada suhu bilik. Daripada analisis dielektrik, masa santaian menurun dengan kenaikan kandungan garam sehingga mencapai optimum %bt. dan selari dengan

pengaruh oleh morfologi permukaan pada persembahan kekonduksi. Analisis dielektrik mengesahkan tingkah laku bukan Debye oleh PE/SME/AI yang disediakan polimer elektrolit.

PENGHARGAAN

Penulis merakamkan penghargaan kepada penaja geran daripada Universiti Teknologi PETRONAS untuk geran YUTP-FRG (015LC0-317) dan Kementerian Pengajian Tinggi untuk geran (FRGS/1/2022/STG05/um/02/9).

RUJUKAN

Abdullah, O.G., Hanna, R.R., Ahmed, H.T., Mohamad, A.H., Saleem, S.A. & Saeed, M.A.M. 2021. Conductivity and dielectric properties of lithium-ion biopolymer blend electrolyte based film. *Results in Physics* 24: 104135.

- Abdullah, S., Ahmad, A.S., Latif, K.S.A., Sobri, N.A.M., Abdullah, N., Hashim, N., Yahya, N.M. & Mohamed, R.M. 2020. Characterization of solid polymer electrolyte membrane made of methylcellulose and ammonium nitrate. *Journal of Physics: Conference Series* 1532: 012017.
- Abdalrahman, A.A., Aziz, S.B. & Karim, W.O. 2022. EIS and FTIR approaches to study the ion transport parameters and relaxation dynamics of Na^+ ion in SPE based on MC polymer inserted with sodium salt. *Results in Physics* 36: 105439.
- Ahmed, H.T., Jalal, V.J., Tahir, D.A., Mohamad, A.H. & Abdullah, O.G. 2019. Effect of PEG as a plasticizer on the electrical and optical properties of polymer blend electrolyte MC-CH- LiBF_4 based films. *Results in Physics* 15: 102735.
- Ahmed, H.T. & Abdullah, O.G. 2020. Structural and ionic conductivity characterization of PEO:MC- NH_4I proton-conducting polymer blend electrolytes based films. *Results in Physics* 16: 102861.
- Arya, A., Sadiq, M. & Sharma, A.L. 2019. Structural, electrical and ion transport properties of free standing blended solid polymeric thin films. *Polymer Bulletin* 76: 5149-5172.
- Brza, M.A., Aziz, S.B., Anuar, H.M., Alshehri, S.M., Ali, F., Ahamad, T. & Hadi, J.M. 2021. Characteristics of a plasticized PVA based polymer electrolyte membrane and H^+ conductor for an electrical double-layer capacitor: structural, morphological and ion transport properties. *Membranes* 11: 296.
- Chatterjee, B., Kulshrestha, N. & Gupta, P.N. 2016. Nano composite solid polymer electrolytes based on biodegradable polymers starch and poly vinyl alcohol. *Measurement* 82: 490-499.
- Chen, H., Zheng, M., Qian, S., Ling, H.Y., Wu, Z., Liu, X., Yan, C. & Zhang, S. 2021. Functional additives for solid polymer electrolytes in flexible and high-energy-density solid-state lithium-ion batteries. *Carbon Energy* 6: 929-956.
- Deng, W., Shi, W., Wang, S., Yan, Z., Rui, Z., Wang, Q. & Li, C.M. 2022. A polypropylene (PP) supported solid polymer electrolyte enables high-stability organic lithium batteries at low temperature. *Physical Chemistry and Chemical Physics* 24: 14424-14429.
- Fuzlin, A.F., Bakri, N.A., Sahraoui, B. & Samsudin, A.S. 2019. Study on the effect of lithium nitrate in ionic conduction properties based alginate biopolymer electrolytes. *Materials Research Express* 7: 015902.
- Gohel, K. & Kanchan, D.K. 2018. Ionic conductivity and relaxation studies in PVDF-HFP:PMMA-based gel polymer blend electrolyte with LiClO_4 salt. *Journal of Advanced Dielectrics* 08(01): 1850005.
- Hamsan, M.H., Shukur, M.F., Aziz, S.B. & Kadir, M.F.Z. 2019. Dextran from *Leuconostoc mesenteroides*-doped ammonium salt-based green polymer electrolyte. *Bulletin of Materials Science* 42: 57.
- Han, S-w. & Ryu, K-Y. 2022. Increased clearance of non-biodegradable polystyrene nanoplastics by exocytosis through inhibition of retrograde intracellular transport. *Journal of Hazardous Materials* 439: 129576.
- Hemalatha, R., Alagar, M., Selcasekarapandian, S., Sundaresan, B. & Moniha, V. 2019. Studies of proton conducting polymer electrolyte based on PVA, amino acid proline and NH_4SCN . *Journal of Science: Advanced Materials and Devices* 4: 101-110.
- Hu, X., Zhang, K., Liu, K., Lin, X., Dey, S. & Onori, S. 2020. Advanced fault diagnosis for lithium-ion battery systems: A review of fault mechanisms, fault features, and diagnosis procedures. *IEEE Industrial Electronics Magazine* 14: 65-91.
- Jeedi, V.R., Narsaiah, E.L. & Chary, A.S. 2020. Structural and electrical studies of PMMA and PVDF based blend polymer electrolyte. *SN Applied Sciences* 2: 2093.
- Jenova, I., Venkatesh, K., Karthikeyan, S. & Madeswaran, S. 2023. Characterization of proton conducting polymer blend electrolyte based on gum tragacanth and polyvinyl alcohol. *Materials Today Proceedings* <https://doi.org/10.1016/j.matpr.2023.02.018>
- Liu, J., Khanam, Z., Muchakayala, R. & Song, S. 2020. Fabrication and characterization of Zn-ion-conducting solid polymer electrolyte films based on PVDF-HFP/ $\text{Zn}(\text{Tf})_2$ complex system. *Journal of Materials Science: Materials in Electronics* 31(8): 6160-6173.
- Mandal, D.K., Bhunia, H., Bajpai, P.K., Chaudhari, C.V., Dubey, K.A. & Varshney, L. 2016. Radiation-induced grafting of acrylic acid onto polypropylene film and its biodegradability. *Radiation Physics and Chemistry* 123: 37-45.
- Mallikarjun, A., Kumar, J.S., Sreekanth, T., Sangeetha, M., Mettu, M.R., Kumar, P.A. & Reddy, M.J. 2023. Investigation of FT-IR and impedance spectroscopy of nanocomposite PVDF-HFP based polymer electrolytes. *Materials Today Proceedings* <https://doi.org/10.1016/j.matpr.2023.01.215>
- Mei, X., Zhao, W., Ma, Q., Yue, Z., Dunya, H., He, Q., Chakrabarti, A., McGarry, C. & Mandal, B.K. 2020. Solid polymer electrolytes derived from crosslinked polystyrene nanoparticles covalently functionalized with a low lattice energy lithium salt moiety. *ChemEngineering* 4(3): 44.
- Mohammed, M.I., Bouzidi, A., Zahran, H.Y., Jalalah, M., Harraz, F.A. & Yahia, I.S. 2021. Ammonium iodide salt-doped polyvinyl alcohol polymeric electrolyte for UV-shielding filters: Synthesis, optical and dielectric characteristics. *Journal of Materials Science: Materials Electronic* 32: 4416-4436.
- Muhammad, F.H. & Winie, T. 2020. Influence of 1-methyl-3-propylimidazolium iodide ionic liquid on the performance of dye-sensitized solar cell using hexanoyl chitosan/poly(vinyl chloride) based polymer electrolyte. *Optik* 208: 164558.

- Abdel Naby, A.S. & Al-Ghamdi, A.A. 2014. Poly(vinyl chloride) blend with biodegradable cellulose acetate in presence of N-(phenyl amino) maleimides. *International Journal of Biological Macromolecules* 70: 124-130.
- Nadirah, B.N., Ong, C.C., Saheed, M.S.M., Yusof, Y.M. & Shukur, M.F. 2020. Structural and conductivity studies of polyacrylonitrile/methylcellulose blend based electrolytes embedded with lithium iodide. *International Journal of Hydrogen Energy* 45(38): 19590-19600.
- Nofal, M.M., Hadi, J.M., Aziz, S.B. & Brza, M.A. 2021. A study of methylcellulose based polymer electrolyte impregnated with potassium ion conducting carrier: impedance EEC modeling, FTIR, dielectric, and device characteristics. *Materials* 14: 4859.
- Parida, B.N., Das, P.R., Padhee, R. & Choudhary, R.N.P. 2013. Structural, dielectric and electrical properties of $\text{Li}_2\text{Pb}_2\text{La}_2\text{W}_2\text{Ti}_4\text{Nb}_4\text{O}_{30}$ ceramic. *Bulletin of Materials Science* 36: 883-892.
- Patla, S.K., Mukhopadhyay, M. & Ray, R. 2018. Ion specificity towards structure-property correlation of poly (ethylene oxide) [PEO]- NH_4I and PEO-KBr composite solid polymer electrolyte. *Ionics* 25(2): 627-639.
- Pritam, Arya, A. & Sharma, A.L. 2019. Dielectric relaxations and transport properties parameter analysis of novel blended solid polymer electrolyte for sodium-ion rechargeable batteries. *Journal of Materials Science* 54: 7131-7155.
- Rag, S.A., Dhamodharan, D., Selvakumar, M., Bhat, S., De, S. & Byun, H.S. 2022. Impedance spectroscopic study of biodegradable PVA/PVP doped TBAI ionic liquid polymer electrolyte. *Journal of Industrial and Engineering Chemistry* 111: 43-50.
- Ramli, N.S., Noor, S.A.M., Su'ait, M.S., Khoon, L.T. & Ahmad, A. 2019. The study of electrochemistry and chemical interaction SPE based PVDF-HFP/ENR50-LiTf. *Journal of Polymer Science and Technology* 4: 16-21.
- Saeed, M.A.M. & Abdullah, O.G. 2020. Effect of structural features on ionic conductivity and dielectric response of PVA proton conductor-based solid polymer electrolytes. *Journal of Electronic Materials* 50: 432-442.
- Shamsuri, N.A., Zaine, S.N.A., Yusof, Y.M., Yahya, W.Z.N. & Shukur, M.F. 2020. Effect of ammonium thiocyanate on ionic conductivity and thermal properties of polyvinyl alcohol-methylcellulose-based polymer electrolytes. *Ionics* 26: 6083-6093.
- Shamsuri, N.A., Zaine, S.N.A., Yusof, Y.M. & Shukur, M.F. 2021. Ion conducting methylcellulose-polyvinyl alcohol blend based electrolytes incorporated with ammonium thiocyanate for electric double layer capacitor application. *Journal of Applied Polymer Science* 139: e52076.
- Shukur, M.F., Ithnin, R. & Kadir, M.F.Z. 2014. Protonic transport analysis of starch-chitosan blend based electrolytes and application in electrochemical device. *Molecular Crystal and Liquid Crystal* 603: 52-65.
- Shukur, M.F., Azmi, M.S., Zawawi, S.M.M., Majid, N.A., Illias, H.A. & Kadir, M.F.Z. 2013. Conductivity studies of biopolymer electrolytes based on chitosan incorporated with NH_4Br . *Physical Scripta* T157: 014049.
- Sundaramahalingam, K., Muthuvinayagam, M., Nallamuthu, N., Vanitha, D. & Vahini, M. 2019. Investigations on lithium acetate-doped PVA/PVP solid polymer blend electrolytes. *Polymer Bulletin* 76: 5577-5602.
- Zhou, D., Shanmukaraj, D., Tkacheva, A., Armand, M. & Wang, G. 2019. Polymer electrolytes for lithium-based batteries: Advances and prospects. *Chem.* 5: 2326-2352.

*Pengarang untuk surat-menyurat; email: mfaadhullah.ashukur@utp.edu.my